

УДК 536.2, 538.9, 53.06

ІМІТАЦІЙНЕ МОДЕЛЮВАННЯ ШТАТНИХ ТА АВАРІЙНИХ РАДІАЦІЙНИХ НАВАНТАЖЕНЬ НА ЯДЕРНІ МАТЕРІАЛИ ІЗ ЗАСТОСУВАННЯМ ЕЛЕКТРОФІЗИЧНИХ УСТАНОВОК

С. Є. Донець¹, В. В. Литвиненко¹, Ю. О. Касаткін¹, А. Г. Пономарьов², В. Т. Уваров²

¹Інститут електрофізики і радіаційних технологій НАН України, вул. Гуданова, 13, 61024,
Харків, Україна

²ІНЦ «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України, вул. Академічна, 1, 61108,
Харків, Україна

E-mail: vvlytvynenko@ukr.net

Надійшла до редакції 12.01.2018

У роботі вивчені особливості застосування прискорювачів важких іонів та прискорювачів сильнострумових електронів для дослідження процесів, які відбуваються в цирконієвих сплавах при штатних та аварійних режимах роботи ядерного реактора. Опроміненням прискореними пучками іонів криптону моделювався вплив газоподібних уламків ядерного палива в штатному режимі роботи. Опроміненням сильно струмовими пучками електронів моделювався вплив екстремальних чинників, які виникають в аварійних ситуаціях.

Ключові слова: прискорені пучки іонів криптону, сильнострумові електронні пучки, цирконієвий сплав, внутрішня структура, механічні властивості.

THE IMITATION SIMULATION OF STUFF AND EMERGENCY LOADINGS ON NUCLEAR MATERIALS BY USE THE ELECTROPHYSICAL EQUIPMENTS

Stanislav Donets¹, Volodymyr Lytvynenko¹, Yuriy Kasatkin¹, Anatoliy Ponomarev²,
Viktor Uvarov²

¹Institute of Electrophysics & Radiation Technologies National Academy of Sciences of Ukraine, 13
Gudanova Str., 61024, Kharkiv, Ukraine

²NSC «Kharkiv Institute of Physics and Technology» National Academy of Sciences of Ukraine, 1
Academic Str., 61108, Kharkiv, Ukraine

In this paper, we studied the features of the use of heavy ion accelerators and high-current electron accelerators to study the processes that occur in zirconium alloys under normal and emergency operating conditions of a nuclear reactor. Irradiation of accelerated beams of krypton ions simulated the effect of gas-like fission fragments of nuclear fuel in the regular operating mode of the reactor. By irradiating high-current electron beams, the influence of extreme factors that arise in emergency situations was modeled.

Key words: accelerated beams of krypton ions, high-current electron beams zirconium alloy, internal structure, mechanical properties.

ИМИТАЦИОННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ШТАТНЫХ И АВАРИЙНЫХ РАДИАЦИОННЫХ НАГРУЗОК НА ЯДЕРНЫЕ МАТЕРИАЛЫ С ПРИМЕНЕНИЕМ ЭЛЕКТРОФИЗИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

С. Е. Донець¹, В. В. Литвиненко¹, Ю. А. Касаткин¹, А. Г. Пономарев², В. Т. Уваров²

¹Інститут електрофізики і радіаційних технологій НАН України, ул. Гуданова, 13,
61024, Харків, Україна

²ІНЦ «Харьковский физико-технический институт» НАН Украины, ул. Академическая, 1,
61108, Харьков, Украина

В работе изучены особенности применения ускорителей тяжелых ионов и ускорителей сильнотоочных электронов для исследования процессов, которые происходят в циркониевых сплавах при штатных и аварийных режимах работы ядерного реактора. Облучением ускоренными пучками ионов криптона моделировалось влияние газоподобных осколков деления ядерного топлива в штатном режиме работы реактора. Облучением сильноточ-

ними пучками електронів моделювалось впливання екстремальних факторів, которые возникают в аварийных ситуациях.

Ключевые слова: ускоренные пучки ионов криптона, сильноточные электронные пучки, циркониевый сплав, внутренняя структура, механические свойства.

ORCID IDs

Stanislav Donets: <https://orcid.org/0000-0002-1258-1434>

Volodymyr Lytvynenko: <https://orcid.org/0000-0003-4850-2555>

Yuriy Kasatkin: <https://orcid.org/0000-0003-3824-8354>

Anatoliy Ponomarev: <https://orcid.org/0000-0001-6914-6057>

Viktor Uvarov: <https://orcid.org/0000-0002-3435-2077>

ВСТУП

На даний час суспільство впритул стикається з проблемою пошуку балансу між зростаючими потребами в енергії, впливом на довкілля домінуючих технологій генерації та необхідністю дотримуватися припустимих меж видатків на розвідку і видобуток сировини а також заходів стосовно запобігання забруднення оточуючого середовища, а отже і безпеку життєдіяльності людини. Не зважаючи на стрімкий розвиток альтернативних джерел енергії, їх питома вага в балансі виробництва ще не скоро стане домінуючою, тоді як потреби людства венергоносіях постійно зростають, що також кореспондується з постулатами підвищення якості життя і безпеки життєдіяльності. Домінуючими способами генерації електроенергії в світі та Україні є атомна і теплова енергетика. В Україні питома вага атомної енергетики складає понад 50 %. Теплова енергетика перебуває в складному стані не тільки через застарілість енергетичного обладнання, але й проблему постачання проектного вугілля, поклади якого знаходяться на тимчасово неконтрольованих територіях.

Основною екологічною проблемою атомної енергетики є утворення радіоактивного відпрацьованого ядерного палива. Серед стратегічних підходів, щодо її подолання протягом декількох десятиріч розглядається конструкція реактора, сполученого з прискорювачем заряджених частинок, який би міг примусово ініціювати реакції поділу в радіонуклідах з високим періодом напіврозпаду, доводячи їх до утворення стабільних елементів [1]. В той же час непередбачуваність процесів у світовому океані призвела і до наймасштабнішої аварії на атомній електростанції (АЕС) Фукусіма – 1. [2]. Ця трагічна

подія дала підставу для висновку, що аварійні ситуації виникають внаслідок нехтування чинниками, які є малоімовірними або ймовірність яких співвимірна з флуктуаційним фоном. До речі про доцільність перегляду ймовірнісного підходу до безпеки АЕС докладно йдеться в роботі [3]. Сценарій розвитку аварії полягав в тому, що поштовх магнітудою в 9 балів на відстані близько 150 км від станції, був зареєстрований сейсмодатчиками, що передбачало вимкнення системи аварійного захисту і зупинку реакторів з переходом системи охолодження активної зони на живлення від дизель генераторів. Але цунами висотою в 14-15 метрів затопило прибережні дизельні станції, оскільки захисна дамба проектувалась на висоту цунамі близько 6 метрів.

Відсутність охолодження ініціює перебіг паро цирконієвої реакції [4.], яка спричиняє підвищення температури руйнування стінок тепловидільних елементів, та виділення водню з подальшим його вибухом. Таким чином розробка ядерно-енергетичних установок майбутнього з більш високим рівнем надійності та безпечності передбачає їх випробування до стійкості в умовах впливу як екстремальних чинників, так і штатних навантажень.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧІ

Для відтворення експлуатаційних навантажень на матеріали активної зони ядерних установок, зокрема цирконієвих сплавів, з яких виготовляються стінки тепловидільних елементів, необхідно розробити низку методик, які б моделювали вплив радіаційно-термічних факторів. Одним з ефективних інструментів, які використовуються при реалізації згаданих методик є прискорювачі заряджених частинок. Разом з тим, оскільки про-

дукти поділу ядерного палива являють собою широкі спектр іонізуючих частинок, припустимим є виокремлене вивчення особливостей впливу тих або інших частинок. Так, відомо, що близько 16 % продуктів поділу ядерного палива припадає на газоподібні продукти іонів криптону та ксенону [5 – 7]. Ці осколки ділення мають дві характерні особливості – надзвичайну малу розчинність і переважно газоподібний стан. Перше говорить про те, що ці гази виділяються з палива завжди, коли це кінетично можливо, а друге – гази, які виділилися будуть намагатися чи повністю виділятися з паливної матриці і накопичуватися у вільному об'ємі твела, чи утворювати газові бульбашки всередині палива. Для них властиві невеликі глибини занурення в оболонку твела, але і відповідно наявність зони зосередженого пошкодження внутрішньої структури.

Іншою проблемою є розуміння процесів, які відбуваються в умовах аварійних режимів опромінення, для яких характерні високі значення густини потоку енергії іонізуючих частинок.

МЕТОДИКА ПРОВЕДЕННЯ ЕКСПЕРИМЕНТУ

Для відтворення впливу газоподібних уламків поділу ядерного палива, зокрема, криптону на цирконієвий сплав $Zr1\%Nb$ нами використовувалася циклотрон ІЦ-100 Міжнародної міжурядової організації Об'єднаний інститут ядерних досліджень. Зразки опромінювалися до значень флюенсів 10^{13} та 10^{14} іон $см^{-2}$.

Для вивчення механічних характеристик поверхні використовувалася метод наноіндентування за допомогою пристрою Nano Indenter G200 (ННЦ ХФТІ), з використанням алмазної кристалічної пірамідки Берковича з радіусом затуплення при вершині близько 20 нм, середнє навантаження 10 мН, глибина проникнення індентора від нульового відліку до глибини 200 нм. Точність вимірювання глибини сліду $\pm 0,04$ нм, а навантаження на індентор ± 75 нН. Відбитка наносилася на відстані 15 мкм один від одного, на кожному зразку проводили по чотири вимірювання. Прецезійна точність навантаження і вимірю-

вання зміщень забезпечувалася електромагнітним приводом зонду та ємнісними датчиками зміщень. Обробку отриманих експериментальних даних проводили шляхом аналізу кривої навантаження за методом Олівера і Фарра [8]. Растрова електронна мікроскопія виконувалася на приладі JEOL JSM – 840, металографічні дослідження на мікроскопі МІМ-10.

Моделювання поведінки цирконієвого сплаву під впливом екстремальних режимів опромінення було проведено шляхом опромінення зразку сплаву $Zr1\%Nb$ сильнострумовим електронним пучком на прискорювачі ТЕМП-А (ННЦ «Харківський фізико-технічний інститут» НАН України).

ОБГОВОРЕННЯ РЕЗУЛЬТАТІВ ДОСЛІДЖЕНЬ

В результаті впливу на матеріал пучка заряджених частинок при збереженні сталої температури (для випадку лопромінення пучком іонів криптону температура становили 300 К) в шарі поверхні товщиною порядком довжини пробігу частинок відбувається ланцюжок процесів – утворення вакансії та міжвузловин. Які еволюціонуючи в подальшому здатні ініціювати низку перетворень на рівні зеренного масштабу та масштабу кристалу.

- змінюється мікроструктура – розмір зерен зменшується, з можливим переходом в аморфний стан;

- змінюється фазовий склад, при цьому можлива поява метастабільних фаз та з'єднань, які при звичайних методах термообробки матеріалів утворюватися не можуть;
- гомогенізується фазовий склад.

Опромінення пучками іонів до значень флюенсу 10^{14} $см^{-2}$ зумовлена тим, що це є для багатьох легких сплавів межею насичення приросту мікротвердості [7], після чого йде утворення дислокаційних петель та.

На рис. 1. (ліва вісь) показані залежності нанотвердості поверхні цирконієвого сплаву $Zr1\%Nb$ вихідного та після опромінення, побудовані за результатами наноіндентування при послідовному заглибленні індентора в поверхню зразків.

З результатів вимірювання (див. рис. 1), видно, що після опромінення іонами з біль-

шим флюенсом на поверхні сформувався на-ношар з підвищеною твердістю. Максимальна нанотвердість зразку сплаву Zr1%Nb досягає 4,8 ГПа порівняно з 3,6 ГПа для вихідного зразку. Хоча, величина нанотвердості монотонно зменшується до 4,2 на глибині 200 нм.

Для зразку цього ж сплаву при інших умовах опромінення (рис.1 крива 2)) виникає зворотна ситуація - на глибині 50 нм, де в попередньому випадку відбувалося збільшення твердості, спостерігається зменшення нанотвердості з 3,5 ГПа до 2,4 ГПа, порівняно з неопроміненим матеріалом, та монотонно збільшується і досягає величин як у вихідного зразку на глибині 200 нм. Як вважають автори [9], таке зменшення можна пояснити зняттям наклепу з поверхні зразку, який був отриманий під час прокатки.

Також визначили, що максимальне значення модуля Юнга для зразку обробленого іонами з флюенсом 10^{14} cm^{-2} складає 125 ГПа порівняно з 100 ГПа для вихідного сплаву на глибині 50 нм, а для зразку опроміненого іонами з флюенсом 10^{13} cm^{-2} спостерігається зменшення модуля пружності до 92 ГПа на тій же глибині. Варто зауважити, що величина модуля пружності для першого зразку монотонно прямує до 120 ГПа, а для другого - до 110 ГПа (як для вихідного) на глибині 200 нм.

Таким чином, виявилось, що при відповідних параметрах опромінювання можна отримати загартування поверхні. Важливим результатом, отриманого за допомогою методу наноіндентування, є те, що при обробці високоенергетичним пучком Kr з флюенсом 10^{14} cm^{-2} відбувається зміцнення приповерхневого шару цирконієвого сплаву Zr1%Nb.

Відтворення умов аварійних випромінювальних навантажень потребує застосування відповідних джерел іонізуючого випромінювання. Прискорювач ННЦ «Харківський фізико-технічний інститут» ТЕМП-А був створений в рамках програми з реалізації керованого термоядерного синтезу. Його вплив супроводжується миттєвим підвищенням температури мішені.

Опромінення сплаву сильноточним електронним пучком середньою потужністю

$\sim 10^8$ Вт/см² при цьому зважаючи на нерівномірність густини пучка по перетину значення потужності варіювалось в межах 10^6 - 10^8 Вт/см². Це зумовило різну інтенсивність впливу на мішені.

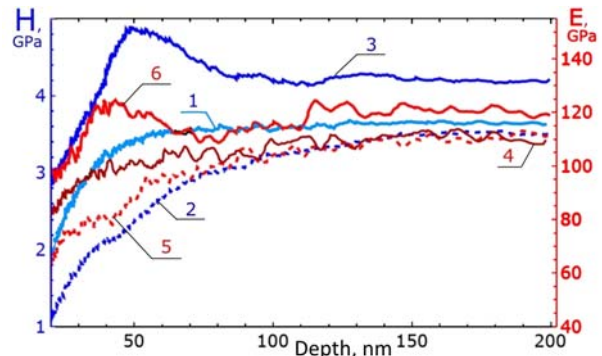


Рис. 1. Значення поверхневої нанотвердості в залежності від глибини поверхні зразку (ліва вісь крива 1 – вихідний зразок, крива 2 – флюенс 10^{13} іон/см², крива 3 флюенс 10^{14} іон/см²) та модуля пружності (права вісь, крива 4 – вихідний зразок, крива 5 – флюенс 10^{13} іон/см², крива 6 флюенс 10^{14} іон/см²) [10]

Фактор величини потужності дози відображається не тільки на розподілі температурного поля, але й на формуванні поля ударно акустичної дії. Так, згідно [11], ударні хвилі виникають за умови дотримання нерівності

$$I \leq \frac{C_L^4 \rho R_0 \tau}{S}, \quad (1)$$

де I – інтенсивність пучка, C_L – повздовжня швидкість звуку в матеріалі мішені, ρ – густина, R_0 – пробіг електронів в мішені, S – площа опромінюваної поверхні, τ – тривалість імпульсу.

З опроміненої мішені були виготовлені зразки з ділянок, що опромінювалися різними значеннями інтенсивності. Злам відбувся перпендикулярно напрямку прикладеного навантаження. Одержані нами фрактограми зламів опроміненої мішені цирконієвого сплаву показують відмінність структурного стану ділянок, що опромінювалися з різною інтенсивністю. Так для зони з найвищою інтенсивністю рис. 2а характерне відшарування зони, що була переплавлена пучком. Енергія пучка була витрачена на абляційний викид верхнього шару розплавленої речовини.

Для зони з помірнішим переплавом рис. 2б властиве утворення шаруватої структури в області, що лежить під зоною пучкового переплаву. До того ж в проміжній перехідній області спостерігаються пори та виділення в місцях присутності ротаційних мод, які виникають, як наслідок ділянок з підвищеною кривизною границь зерен [12]. Також відомо [13], що обробка металів сильноточковим релятивістським електронним пучком спричиняє утворення просторово складної поверхні поділу зерен.

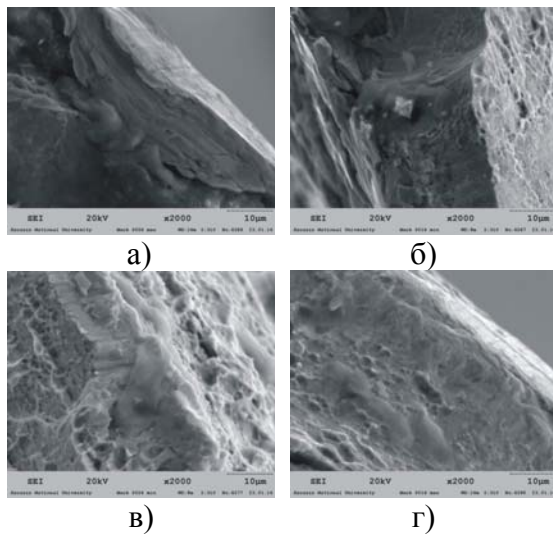


Рис. 2. Фрактограми зламів мішені зі сплаву Zr1%Nb, опроміненої СРЕП (від а до г інтенсивність опромінювання послідовно зменшується від 10^6 до 10^8 Вт/см²)

З рис. 2в та рис. 2г випливає, що подальше зменшення інтенсивності опромінення призводить до появи плавного переходу між опроміненою та неопроміненими областями а характер їх зламу стає в'язкішим.

Становить інтерес аналіз металографічних зображень шліфу мішені в області максимальної густини пучка. Якщо зазвичай на шліфі мішені відслідковується зона переплаву, перехідна зона, яка формується в полі високої температури та механічних напружень та зона з початковою структурою, то для цирконієвого сплаву, опроміненого з найбільшою інтенсивністю ми спостерігаємо більшу кількість відмінних між собою модифікованих пучком областей.

Так на рис. 3а спостерігаємо чотири шари з відмінною будовою, при цьому слід зважа-

ти, що інтефейсні шари між ними також являють собою окремі утворення.

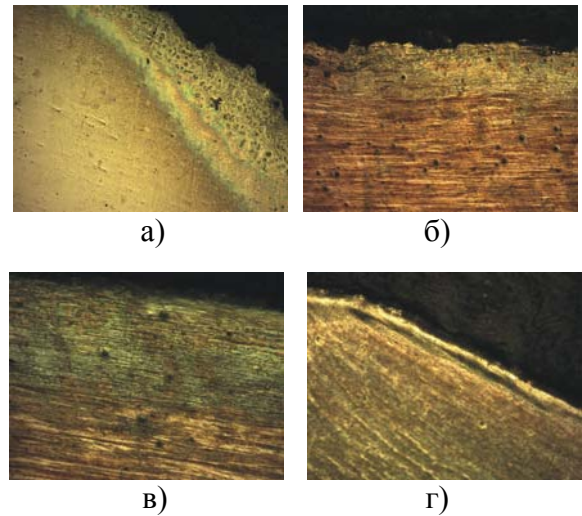


Рис. 3. Металографічні шліфи (збільшення x200) ділянок мішені зі сплаву Zr1%Nb, опроміненої СРЕП (від а до г інтенсивність опромінювання послідовно зменшується від 10^6 до 10^8 Вт/см²)

Зі зниженням інтенсивності рис. 3б – 3г, спостерігається зниження шорсткості поверхні та зменшення товщини переплавленого шару, відповідно з цим у меншій мірі модифікується і підповерхневий шар.

ВИСНОВКИ

У роботі реалізований підхід на основі імітаційного моделювання впливу на сплав Zr1%Nb газоподібних уламків поділу, яке полягало в його опроміненні пучком іонів $^{86}\text{Kr}^{+15}$ з енергією 107 МеВ. Досліджено фізико-механічні властивості приповерхневого шару сплаву, в межах якого частинки втрачали свою енергію та утворювали дефекти. Механічні властивості було визначено методом наноіндентування. Встановлено граничне значення флюенсу, яке призводить до змінювання механічних характеристик унаслідок генерації дефектів.

З огляду на необхідність прогнозування аварійних ситуацій на об'єктах атомної енергетики, є важливим вивчення стійкості матеріалів під впливом екстремальних чинників. Сильноточковий пучок електронів дозволяє відтворити низку чинників, що виникають при аварійних ситуаціях – потоки іонізуючого випромінювання, високі температури, ударно-хвильовий вплив.

Застосування сильноточових релятивістських електронних пучків при певній критичній потужності дозволяє одержувати багаточастотну поверхневу модифіковану структуру, властивості якої потребують подальшого дослідження, оскільки вони можуть мати вищу стійкість до високотемпературного окислення.

ЛІТЕРАТУРА

1. Риволь Ж.-П. Электроядерная установка для уничтожения радиоактивных отходов // УФН. – 2003. – Т. 173. – № 3. – С. 747-755.
2. <https://www.iaea.org/newscenter/news/fukushima-nuclear-accident-update-log-15>
3. Маслов В. П. Фазовые переходы нулевого рода и квантование закона Ципфа // ТМФ. – 2007. – Т. 150. – № 1. – С. 118-142.
4. Neeb K.-H. The radiochemistry of nuclear power plants with light water reactors. – Berlin, New York: Walter de Gruyter, 1997. – 733 p.
5. Годин Ю. Г., Тенишев А. В., Новиков В. В. Том 6, часть 2. Ядерные топливные материалы // Физическое материаловедение: Учебник для вузов / Под общей ред. Б.А. Калина. – М.: МИФИ, 2008. – 604 с.
6. Шмаков А. А. Водородное охрупчивание и гидридное разрушение циркониевых изделий водоохлаждаемых ЯЭУ. – <http://www.dissercat.com/>, вільний.
7. Дидык А. Ю., Регель В. Р., Скуратов В. А., Михайлова Н. Ю. Радиационное упрочнение металлов, облученных тяжелыми ионами // ЖТФ. – 1989. – Т. 59, в. 5. – С. 107-111.
8. Oliver W. C., Pharr G. M. An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments // J. Mater. Res. – 1992. – No. 7. – P. 1564-1583.
9. Довбня А. Н., Лавриненко С. Д., Закутин В. В., Аксёнова А. Н. Модификация поверхности циркония и сплава Zr1%Nb электронным пучком ускорителя на основе магнетронной пушки // ВАНТ, №2. – 2011. – с. 39-45.
10. Klepikov V. F., Lonin Yu. F., Lytvynenko V. V., Ponomarev A. G., Startsev O. S., Uvarov V. T. / Behavior of Zr1%Nb Alloy Under Swift Kr Ion and Intense Electron Irradiation // Journal of Nano- and Electronic Physics. 2015. – Vol. 7. – No. 4. – P. 040166(7pp).
11. Бойко В. И., Валяев А. Н., Погребняк А. Д. Модификация металлических материалов импульсными мощными пучками частиц // УФН. – 1999. – Т. 169, № 11. – С. 1243-1271.

12. Панин В. Е., Егорушкин В. Е. Солитоны кривизны как обобщенные волновые носители пластической деформации и разрушения // Физ. мезомех. – 2013. – Т. 16. – № 3. – С. 7-26.
13. Klepikov V. F., Lonin Yu. F., Ponomarev A. G. et. al. Fractality of Fractures of Aluminum and Titanium Alloys Irradiated by Intensive Electron Beam // Journal of Nano- and Electronic Physics. – 2016. – Vol. 8. – No. 3, 03009 (5pp).

REFERENCES

1. Rivol Zh.-P. Elektroyadernaya ustanovka dlya unichtozheniya radioaktivnykh otkhodov // UFN. – 2003. – Т. 173. – № 3. – S. 747-755.
2. <https://www.iaea.org/newscenter/news/fukushima-nuclear-accident-update-log-15>
3. Maslov V. P. Fazovyye perekhody nulevogo roda i kvantovaniye zakona Tsipfa // TMF. – 2007. – Т. 150. – № 1. – S. 118-142.
4. Neeb K.-H. The radiochemistry of nuclear power plants with light water reactors. – Berlin, New York: Walter de Gruyter, 1997. – 733 p.
5. Godin Yu. G., Tenishev A. V., Novikov V. V. Tom 6. chast 2. Yadernyye toplivnyye materialy // Fizicheskoye materialovedeniye: Ucheb-nik dlya vuzov / Pod obshchey red. B.A. Kalina. – M.: MIFI. 2008. – 604 s.
6. Shmakov A. A. Vodorodnoye okhrupchivaniye i gidridnoye razrusheniye tsirkoniyevykh izdeliy vodoohlazhdayemykh YaEU. – <http://www.dissercat.com/>. vilniy.
7. Didyk A. Yu., Regel V. R., Skuratov V. A., Mikhaylova N. Yu. Radiatsionnoye uprochneniye metallov. obluchennykh tyazhelymi ionami // ZhTF. – 1989. – Т. 59. v. 5. – S. 107-111.
8. Oliver W. C., Pharr G. M. An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments // J. Mater. Res. – 1992. – No. 7. – P. 1564-1583.
9. Dovbnya A. N., Lavrinenko S. D., Zakutin V. V., Aksenova A. N. Modifikatsiya poverkhnosti tsirkoniya i splava Zr1%Nb elektronnyim puchkom uskoritelya na osnove magnetronnoy pushki // VANT. №2. – 2011. – s. 39-45.
10. Klepikov V. F., Lonin Yu. F., Lytvynenko V. V., Ponomarev A. G., Startsev O. S., Uvarov V. T. / Behavior of Zr1%Nb Alloy Under Swift Kr Ion and Intense Electron Irradiation // Journal of Nano- and Electronic Physics. 2015. – Vol. 7. – No. 4. – P. 040166(7pp).
11. Boyko V. I., Valyayev A. N., Pogrebnyak A. D. Modifikatsiya metallicheskih materialov im-

- pulsnymi moshchnymi puchkami chastits // UFN. – 1999. – Т. 169. № 11. – S. 1243-1271.
12. Panin V. E., Egorushkin V. E. Solitony krivizny kak obobshchennyye volnovyye nositeli plasticheskoy deformatsii i razrusheniya // Fiz. mezhomekh. – 2013. – Т. 16. – № 3. – S. 7-26.
13. Klepikov V. F., Lonin Yu. F., Ponomarev A. G. et. al. Fractality of Fractures of Aluminum and Titanium Alloys Irradiated by Intensive Electron Beam // Journal of Nano- and Electronic Physics. – 2016. – Vol. 8. – No. 3, 03009 (5pp).