

П. А. Пономаренко¹, Е. П. Таборовская²,
В. А. Тяпкина¹, М. А. Фролова¹

¹Севастопольский университет ядерной энергии
и промышленности, г. Севастополь, Украина

²Украинская кредитная компания, г. Киев, Украина

О ядерном гидрировании оболочек ТВЭЛОВ из циркония и его сплавов в реакторе типа ВВЭР-1000

Рассмотрены физические модели процессов ядерного гидрирования оболочек тепловыделяющих элементов из циркония и его сплавов, происходящих в нейтронных полях активной зоны реактора типа ВВЭР с диоксидом урана в качестве ядерного топлива, следствием которых является потеря пластичности материала оболочки и появление трещин в ней в процессе работы.

Ключевые слова: оболочка ТВЭЛА, цирконий и его сплавы, ядерное гидрирование оболочек ТВЭЛОВ, нейтронное поле.

**П. А. Пономаренко, Е. П. Таборовська, В. О. Тяпкина,
М. О. Фролова**

Про ядерне гідрування оболонок твелів з цирконію та його сплавів у реакторі типу ВВЕР-1000

Розглянуто фізичні моделі процесів ядерного гідрування оболонок тепловидільних елементів з цирконію та його сплавів, що відбуваються в нейтронних полях активної зони реактора типу ВВЕР з діоксидом урану як ядерним паливом, наслідком яких є втрата пластичності матеріалу оболонок і поява тріщин у ній під час роботи.

Ключові слова: оболочка твела, цирконій та його сплави, ядерне гідрування оболонок твелів, нейтронне поле.

Оболочка тепловыделяющего элемента (ТВЭЛА) служит главным сдерживающим барьером на пути возможного распространения ядерного топлива и высокоактивных продуктов его деления в теплоноситель-замедлитель (воду первого контура), а следовательно, в окружающую среду в условиях нормальной эксплуатации и аварийной обстановки. Этим и объясняется актуальность вопросов обеспечения надежности и долговечности оболочек ТВЭЛОВ, а значит, безопасности реакторных установок (как в процессе эксплуатации уже созданных, так и в процессе разработки новых) в современной стратегии развития атомной энергетики.

Активная зона реактора типа ВВЭР-1000 состоит из набора шестигранных ячеек, состоящих из ТВЭЛА и относящегося к нему замедлителя-теплоносителя (H₂O). ТВЭЛ представляет собой цилиндрический стержень, состоящий из герметичной циркониевой оболочки толщиной 0,65 мм и топливной композиции внутри этой оболочки — двуокиси урана в виде керамики. Тепловые нейтроны образуются в замедлителе ячейки, создавая поле тепловых нейтронов высокой плотности. Под действием закона диффузии, движущей силой которой является различие плотностей нейтронов в различных точках ячейки, образуется поток этих тепловых нейтронов из замедлителя через оболочку ТВЭЛА в топливную композицию. В ней тепловые нейтроны поглощаются в основном ядрами урана (²³⁵₉₂U) и делят их, генерируя нейтроны деления с энергией в диапазоне 0,1—18 МэВ, высокоактивные осколки деления — источники запаздывающего гамма-излучения, а также мгновенные гамма-лучи высокой энергии. Нейтроны деления в топливной композиции создают поле нейтронов деления высокой плотности. В результате диффузии нейтронов деления образуется их поток из топливной композиции через оболочку в замедлитель. В замедлителе вследствие упругих столкновений в основном с ядрами водорода нейтроны деления замедляются, создавая в замедлителе высокоплотное поле тепловых нейтронов, которые через оболочку ТВЭЛА направляются в топливную композицию, и т. д.

Под действием нейтронного поля, состоящего из нейтронов в основном тепловых энергий и нейтронов деления, а также поля высокоэнергетических мгновенных и запаздывающих гамма-квантов продуктов деления изменяются прочностные характеристики оболочки из циркония и его сплавов: предел прочности и предел текучести увеличиваются, а предел пластичности снижается. Последнее ведет к охрупчиванию оболочки и появлению в ней трещин. Появлению трещин способствует и увеличение объема топливной композиции: объем атома урана до деления меньше объема двух атомов продуктов деления [1, 2].

Причиной потери пластичности считается появление водорода в кристаллической решетке циркония и его сплавов. Это было подтверждено и опытами, проведенными на исследовательском реакторе ИР-100.

Известны два способа гидрирования циркония при его контакте с водой и образования в ней свободного водорода:

1) внедрение водорода в кристаллическую решетку циркония за счет его химического выделения и поглощения в электрохимических процессах коррозии;

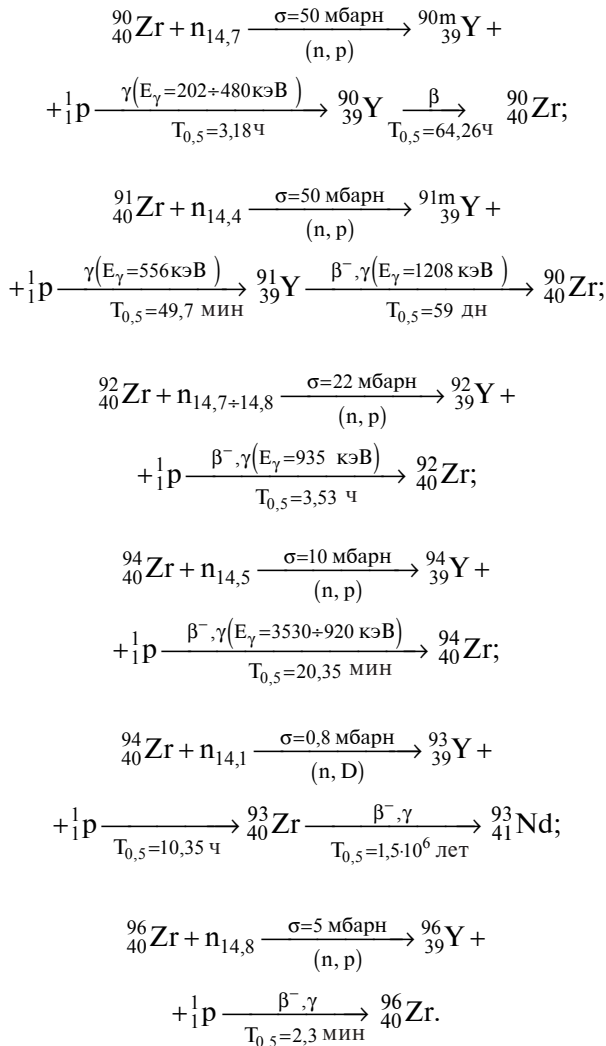
2) внедрение в кристаллическую решетку оболочки свободных атомов водорода на границе вода—оболочка за счет термодиффузии [3].

Второй способ способствует усиленному процессу гидрирования при температуре циркония 700 °С и выше, однако в ядерном реакторе типа ВВЭР-1000 температура оболочек не превышает 400 °С.

Авторы считают, что основными процессами гидрирования циркониевых оболочек твэлов в ВВЭР-1000 являются ядерные процессы. Поэтому в данной статье и рассматриваются физические модели ядерного гидрирования циркония в условиях активной зоны реактора типа ВВЭР-1000, т. е. водо-водяного реактора на тепловых нейтронах при использовании в качестве ядерного топлива двуоксида урана.

Задача создания физической модели ядерного гидрирования решалась с помощью проведения множества экспериментов по облучению циркония и его сплавов в нейтронных полях различного качества на исследовательском реакторе ИР-100 Севастопольского национального университета ядерной энергии и промышленности. В результате проведенных экспериментов установлено [4]:

1. Процесс внутреннего гидрирования циркония и его сплавов происходит в результате взаимодействия изотопного состава природного циркония с нейтронами спектра деления 0,1–18 МэВ по следующим нейтронно-ядерным реакциям [5]:

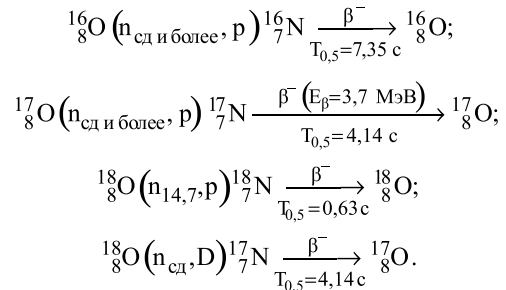


Получаемый в этих реакциях протон представляет собой ядро водорода, при рождении обладает определенной энергией и может создавать вакансии и дислокации в кристаллической решетке основного металла. Кроме того, ионизируя атомы циркония, он теряет свою энергию, в конечном итоге останавливается и, присоединив к себе один из свободных электронов, превращается в атом водорода

внутри кристаллической решетки циркония. Таким образом, при толщине оболочки из циркония и его сплавов $d \geq 0,65$ мм [6] возникшие в результате ядерного взаимодействия протоны, в связи с их низкой проникающей способностью, остаются в оболочке твэла и образуют в ней атомы водорода.

2. Кроме внутреннего ядерного гидрирования оболочек существует и внешнее гидрирование как со стороны топлива, так и со стороны теплоносителя. Это происходит по следующим физическим моделям:

2.1. Гидрирование циркония со стороны ядерного топлива. Топливная композиция состоит из оксида урана, а природный кислород — из трех изотопов (^{16}O — 99,76 %; ^{17}O — 0,037 %; ^{18}O — 0,204 %). При взаимодействии ядер кислорода с нейтронами спектра деления ($n_{\text{сд}}$), начальная энергия которых составляет $E_{0n} = 0,1 \div 18$ МэВ, в результате ядерных реакций образуются протоны или ядра дейтерия:



Эти протоны и дейтроны обладают значительной энергией, а следовательно, имеют проникающую способность от нескольких микрометров до десятков микрометров. Образующиеся на границе топливо—оболочка протоны и дейтроны, при изотропном испускании их в результате ядерной реакции, могут оказаться в кристаллической решетке циркония или его защитной окисной пленке. В результате потери энергии в кристаллической решетке циркония или в защитной окисной пленке частицы останавливаются и протоны, присоединяя к себе по одному из свободных электронов, превращаются в атомы водорода.

По этой модели происходит внешнее поверхностное гидрирование циркония со стороны ядерного топлива.

2.2. Аналогичные реакции ядер изотопов кислорода с нейтронами спектра деления наблюдаются и в теплоносителе-замедлителе (в воде), поэтому гидрирование оболочек идет не только со стороны топлива, но и со стороны теплоносителя.

2.3. Образование протонов в теплоносителе может происходить не только в результате ядерного взаимодействия изотопов кислорода с нейтронами высоких энергий, но и в результате упругого столкновения нейтронов с ядрами водорода. В этом случае образуются высокоэнергетические протоны отдачи, энергия которых описывается формулой

$$E_p \approx E_{0n} (1 - e^{-\xi}),$$

где E_{0n} — начальная энергия нейтрона до столкновения (для нейтронов спектра деления $E_{0n} = 0,1 \div 18$ МэВ); ξ — средний логарифмический декремент потери энергии нейтроном при одном столкновении в рассеивающей среде.

В соответствии со средним логарифмическим декрементом потери энергии при одном столкновении нейтрона с ядром водорода ($\xi = 0,948$) [7] и с почти изотропным рас-

сеянием нейтронов при этих столкновениях ($\overline{\cos \varphi} = 0,324$) [7] энергия генерируемых протонов отдачи составит от 11 до 0,06 МэВ.

Если такое столкновение произошло на границе вода—цирконий, часть протонов отдачи не только за счет термодиффузии, но и за счет высокой их проникающей способности, связанной с высокой кинетической энергией, проникает с границы вода—оболочка внутрь окисной пленки и даже в оболочку. Здесь, теряя энергию при взаимодействии с ядрами металла оболочки, протоны останавливаются и, присоединив один из множества свободных электронов металла, превращаются в атомы водорода внутри кристаллической решетки металла оболочки.

Выводы

В статье рассмотрены четыре физические модели ядерного гидрирования циркониевых оболочек твэлов ядерного реактора типа ВВЭР-1000 на тепловых нейтронах. Ядерное гидрирование происходит при любых температурах, но обязательно в поле нейтронов с энергией $E_{0n} = 0,1 \div 18$ МэВ.

Представленный качественный процесс технологии гидрирования оболочек твэлов ВВЭР на тепловых нейтронах, изготовленных из циркония и его сплавов, позволит разработать меры по устранению отдельных технологических процессов, отрицательно влияющих на общую долговечность оболочек твэлов, изготовленных из циркония и его сплавов.

Список использованной литературы

1. Чиркин В. С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники. Справочник / В. С. Чиркин. — М.: Атомиздат, 1968. — 484 с.
2. Влияние облучения на материалы и элементы электронных схем: Перевод с англ. / Под ред. В. Н. Быкова и С. П. Соловьева. — М.: Атомиздат, 1967. — 427 с.
3. Некрасова Г. А. Цирконий в атомной промышленности // Опыт эксплуатации кабельных труб в реакторах CANDU: Обзор. — Вып. 14. — М.: ЦНИИАтоминформ, 1985. — 36 с.
4. Пат. 64305 Украина, МПК(2011.01), G01T1/00 / П. А. Пономаренко, Е. П. Таборовская, В. А. Тяпкина, М. А. Фролова — № и 201102387; заявл. 28.02.2011; опубл. 10.11.2011, Бюл. № 21. — 4 с.
5. Справочные таблицы для нейтроноактивационного анализа / И. В. Меднис. — Рига: Знание, 1974. — 412 с.
6. Эксплуатационные режимы водоводяных энергетических ядерных реакторов / Ф. Я. Овчинников, П. И. Голубев, В. Д. Добрынин, В. И. Клочков, В. В. Семенов, В. М. Цыбенко. — М.: Атомиздат, 1977. — 280 с.
7. Гордеев И. В. Ядерно-физические константы. Справочник / И. В. Гордеев, Д. А. Кардашев, А. В. Малышев. — М.: Госатомиздат, 1963. — 507 с.

Получено 13.12.2012.