

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

95-319

P14-95-319

А.Хофман

МОДЕЛИРОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ
ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ
НА МАТЕРИАЛ ОБОЛОЧКИ
ТЕПЛОВЫДЕЛЯЮЩИХ ЭЛЕМЕНТОВ ВВЭР

1995

Моделирование влияния осколков деления
на материал оболочки тепловыделяющих элементов ВВЭР

Для моделирования повреждений, созданных осколками деления на внутренней поверхности оболочки твэлов ВВЭР, образцы циркония были облучены тяжелыми ионами Ar (энергия 460 МэВ) и Ne (энергия 230 МэВ). Изучено влияние радиационных повреждений и имплантированных ионов на изменение механических свойств образцов циркония. Обсуждены возможные механизмы хрупкости.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных реакций им. Г.Н.Флерова ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1995

Перевод автора

A Simulation of the Effect of Fission Recoils
on Cladding Surfaces of WWER (PWR) Fuel Using Heavy Ions

In order to simulate the damage induced by fission recoils of the inner surface of WWER reactor, fuel cladding, Zr samples were irradiated with heavy ions (Ar with energy 460 MeV and Ne with energy 230 MeV). The effect of radiation damage and implanted ions on the change in mechanical properties of Zr samples has been determined. The possible embrittlement mechanisms are discussed.

The investigation has been performed at the Flerov Laboratory of Nuclear Reactions, JINR.

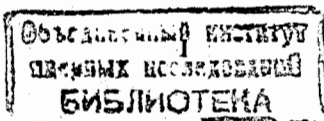
Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 1995

1. ВВЕДЕНИЕ

Важной проблемой, которая влияет на поведение тепловыделяющих элементов в водо-водяных энергетических реакторах (ВВЭР), является взаимодействие топлива с оболочкой. Эффектом такого взаимодействия, подтвержденным во многих экспериментальных работах [1-4], служит растрескивание циркониевых оболочек твелов в результате коррозии под напряжением. Существует мнение, что основной причиной такого явления может быть наработка йода и его воздействие на оболочку, которая находится в напряженном состоянии в результате расширения двуокиси урана, в особенности при изменениях мощности реактора.

Выполнен ряд работ, в которых определены зависимости времени до растрескивания оболочки и скорость роста трещин. Исследовано также влияние облучения нейтронами на восприимчивость циркония к коррозии под напряжением [5-7]. В работе [5] показано, что радиационные повреждения увеличивают пороговые напряжения (примерно на 10%). Рассматриваются два механизма влияния облучения на восприимчивость Zr к коррозии под напряжением [7]. При низких дозах (до 10^{20} н/см²) действует эффект радиационного упрочнения, а при дозах выше 10^{20} н/см² реализуется "другой механизм", который не имеет объяснения. В работе [8] высказано предположение, что это может быть связано с неоднородной пластической деформацией, а авторы [9] считают, что повышенная хрупкость внутренней поверхности оболочки вызвана имплантированными осколками деления ядер урана.

Для типичных условий работы реактора ВВЭР и PWR скорость деления составляет $1.3 \cdot 10^{13}$ делений/(см³·с). Каждое деление дает два осколка деления с массами 140 - 95 а.е.м. и 70 - 98 МэВ (для среднетяжелых и среднелегких осколков соответственно [9]). Для таких осколков деления легко оценить их пробег в UO₂: 6.7 - 9.3 мкм [10] и 8.2 - 10.4 мкм BZr [11]. Эти скорости деления и пробеги осколков деления создают поток высокоэнергетических продуктов, доходящих до внутренней поверхности оболочки, с плотностью потока $5 \cdot 10^9$ ион/(см²·с). В слое с толщиной примерно 10 мкм находится около 2% посторонних атомов при стандартном выгорании ядерного топлива. Тогда с внутренней стороны циркониевой оболочки создается слой с радиационными повреждениями, вызванными упругими столкновениями осколков с атомами циркония (примерно 2 сна), и ионно-имплантированный слой.



Цель настоящей работы - применение тяжелых ионов для моделирования радиационных повреждений, возникающих в результате воздействия осколков деления, и определение их влияния на механические свойства циркония.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В работе был использован цирконий в виде фольги с толщиной 22 мкм. Химический состав и механические свойства представлены в таблице 1. Образцы для испытаний на растяжение имели размеры рабочей части 15x3 мм. Подробно методика растяжения миниатюрных образцов представлена в работе [12].

Таблица 1. Химический состав и механические свойства циркониевых образцов

Химический состав (вес. %):

Cr - 0.0011; Mg - 0.0001; Pb - 0.0010; Sn - 0.0001; Ge - 0.0019;
 Ni - 0.0002; V - 0.0001; Zn - 0.0070; Fe - 0.0050; Mn - 0.0001;
 Cu - 0.0005; Ti - 0.0050; Hf - 0.0025; N - 0.0011; C - 0.0050.

Механические свойства при 20°C:

Предел текучести $\sigma_{0,2}$ - 202 МПа;
 прочности - 288 МПа;
 удлинение - 18 %;
 микротвердость HV20 - 121 кг/мм²;
 толщина фольги - 22±0.1 мкм;
 размер зерна - 7 мкм;
 температура отжига - 600°C, 20 мин.

Образцы облучались на ускорителе У-400 ионами ²²Ne с энергией E = 230 МэВ и ионами ⁴⁰Ar с энергией E = 460 МэВ. Предварительно все образцы были уложены в сборки по 5 фольг (Ne) и по 4 фольги (Ar) в каждой. Энергия ионов была выше энергии продуктов деления в реакторе ВВЭР, но для исследований механических свойств при облучении ионами нужна высокая энергия с тем, чтобы создать однородное дефектообразование по толщине образца [13]. Во время облучения образцы

охлаждались потоком воздуха, в связи с чем температура облучения не превышала 50°C.

Образцы были облучены до двух флюенсов: Ft = 1·10¹⁴ и Ft = 2·10¹⁴ ион/см² для ионов ²²Ne и Ft = 3.6·10¹⁴, Ft = 9.37·10¹⁴ и Ft = 1.57·10¹⁵ ион/см² для ионов ⁴⁰Ar. Средняя плотность потока ионов составляла F = 1.2·10¹¹ ион/(см²с).

После облучения образцы растягивались на испытательной машине INSTRON-1121 со скоростью деформации 5.5·10⁻⁵ с⁻¹.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 и 2 представлены изменения сечения дефектообразования дефектов (σ_d) в зависимости от глубины вдоль пробега ионов Ne и Ar в цирконии соответственно. Расчет сечений выполнен с использованием компьютерной программы TRIM-90 [11].

Пробег ионов Ne (230 МэВ) и Ar (460 МэВ) в Zr составляет 108 мкм и 85 мкм соответственно. На рис. 1 и 2 показаны средние величины сечения в каждом образце из сборки. Результаты изменения предела текучести образцов Zr представлены в таблицах 2 и 3, а дозовая зависимость предела текучести Zr после облучения ионами Ne и Ar показана на рис. 3.

Результаты, представленные на рис. 3, можно аппроксимировать выражением

$$\Delta\sigma_{0,2} = A (1 - \exp(-B \sigma_d Ft))^{1/2},$$

где D = $\sigma_d Ft$ - доза повреждений, параметр A = 25.97 МПа для ионов Ne и A = 70 МПа для ионов Ar; параметр B = 6.28·10³ сна⁻¹ (Ne) и B = 0.33·10³ сна⁻¹ (Ar).

При дозах более 2 сна, которые может набрать оболочка твела [9], $\Delta\sigma_{0,2} = 70$ МПа для ионов Ar, если принять, что имеет место насыщение эффекта радиационного упрочнения. Тогда с точки зрения радиационного упрочнения изменение предела текучести достигает примерно 35 % при облучении ионами аргона при температуре менее 100°C. В реальных условиях оболочка работает при температуре 300°C.

Таблица 2. Предел текучести $Zr - \sigma_{0,2}$ после облучения ионами Ne (230 МэВ) в сборке (по 5 фольг)

№ образца в сборке	Доза [сна] повреждений	$\sigma_{0,2}$ [МПа]	$\Delta\sigma_{0,2}$ [МПа]
1	$5.79 \cdot 10^{-5}$	216	14
2	$6.80 \cdot 10^{-5}$	217	15
3	$8.90 \cdot 10^{-5}$	221	19
4	$1.41 \cdot 10^{-4}$	223	21

5	$8.70 \cdot 10^{-4}$	234	32
образец с остановившимися ионами Ne при флюенсе $Ft = 1 \cdot 10^{14}$ ион/см ²			
1	$1.15 \cdot 10^{-4}$	220	18
2	$1.38 \cdot 10^{-4}$	220	18
3	$1.78 \cdot 10^{-4}$	223	21
4	$2.28 \cdot 10^{-4}$	226	24

5	$1.74 \cdot 10^{-3}$	242	40
образец с остановившимися ионами Ne при флюенсе $Ft = 2 \cdot 10^{14}$ ион/см ²			

В образцах 5 и 4 (смотри таблицы 2 и 3) кроме слоя с радиационными повреждениями находится слой с имплантированными ионами. Такие слои находятся с внутренней стороны оболочки.

Изменение предела текучести по сравнению с необлученным цирконием достигает примерно 50 % при дозе $1.52 \cdot 10^{-2}$ сна при облучении ионами Ag (образец 4, таблица 3). Рассчитанная средняя концентрация Ne и Ag в образцах толщиной 22 мкм (образцы 5 и 4) составляет $2.1 \cdot 10^{-6}$ (ион Ne)/(атом Zr) при флюенсе $Ft = 2 \cdot 10^{14}$ ион/см² и $1.66 \cdot 10^{-5}$ (ион Ag)/(атом Zr) при флюенсе $Ft = 1.57 \cdot 10^{15}$ ион/см² соответственно. В тоже время в ионно-легированном слое с толщинами $\Delta R_p = 0.275$ мкм (Ne) и $\Delta R_p = 0.35$ мкм (Ag) рассчитанная концентрация для указанных выше флюенсов составляет $1.79 \cdot 10^{-4}$ (ион Ne)/(атом Zr) и $1.04 \cdot 10^{-3}$ (ион Ag)/(атом Zr). При таких концентрациях имплантированные газы имеют тенденцию к собиранию в малые пузырьки [14].

Таблица 3. Предел текучести $Zr - \sigma_{0,2}$ после облучения ионами Ag (460 МэВ) в сборке (по 4 фольги).

№ образца в сборке	Доза [сна] повреждений	$\sigma_{0,2}$ [МПа]	$\Delta\sigma_{0,2}$ [МПа]
1	-	-	-
2	$8.24 \cdot 10^{-4}$	240	38
3	$1.32 \cdot 10^{-3}$	246	44

4	-	-	-
образец с остановившимися ионами Ag при флюенсе $Ft = 3.6 \cdot 10^{14}$ ион/см ²			
1	$1.68 \cdot 10^{-3}$	243	41
2	$2.15 \cdot 10^{-3}$	248	46
3	-	-	-

4	$1.52 \cdot 10^{-2}$	304	102
образец с остановившимися ионами Ag при флюенсе $Ft = 9.37 \cdot 10^{15}$ ион/см ²			
1	$2.81 \cdot 10^{-3}$	257	55
2	$3.60 \cdot 10^{-3}$	263	61
3	$5.78 \cdot 10^{-3}$	267	65

4	$2.54 \cdot 10^{-2}$	282	-
образец с остановившимися ионами Ag при флюенсе $Ft = 1.57 \cdot 10^{15}$ ион/см ²			

В облученных образцах 4 и 5 с пластической деформацией примерно в 3%, с использованием стандартной процедуры для металлографических исследований, обнаружены короткие трещины в поверхностном слое, перпендикулярные направлению растяжения. Хрупкость этого слоя является результатом, связанным с имплантированными ионами и выделениями маленьких газовых пузырьков, так же, как и с радиационными повреждениями. Кроме того, имеет место дополнительное упрочнение, которое нарабатывается в оболочке в результате нейтронного облучения [15]. Растрескивание в хрупком поверхностном слое может быть первой стадией повреждения оболочек в результате взаимодействия с топливом.

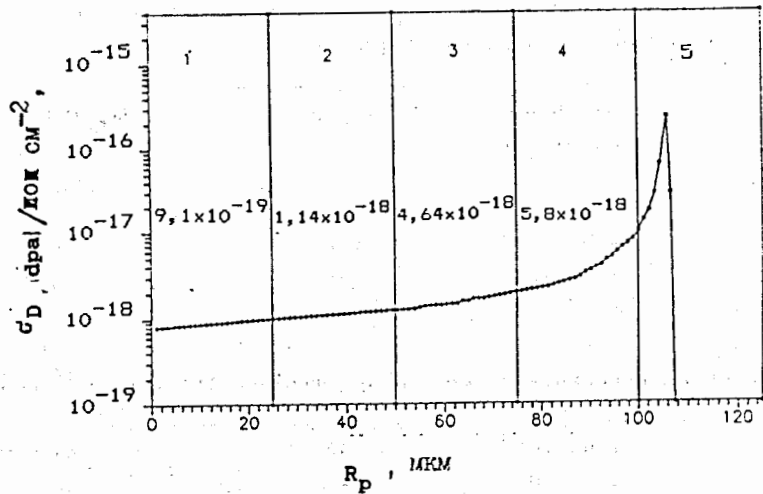


Рис.1. Изменение сечения образования френкелевских пар в Zr, облученном ионами Ne (230 МэВ).

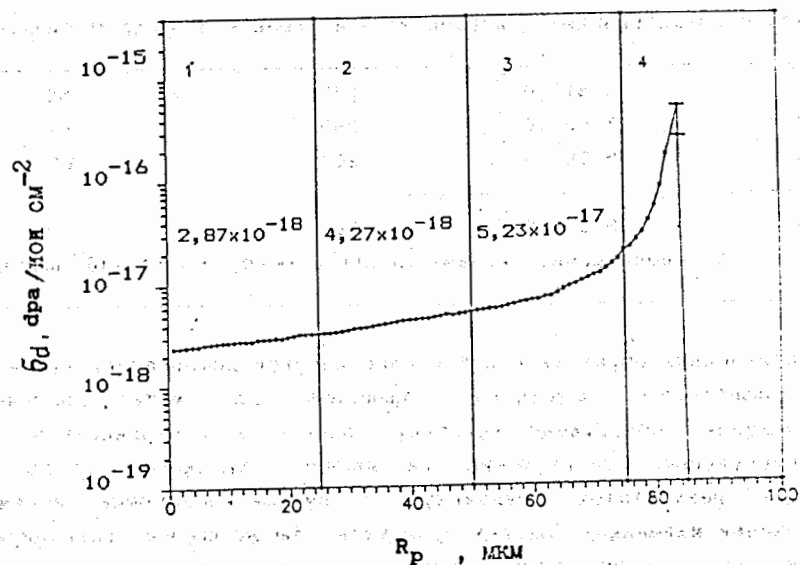


Рис.2. Изменение сечения образования френкелевских пар в Zr, облученном ионами Ag (460 МэВ).

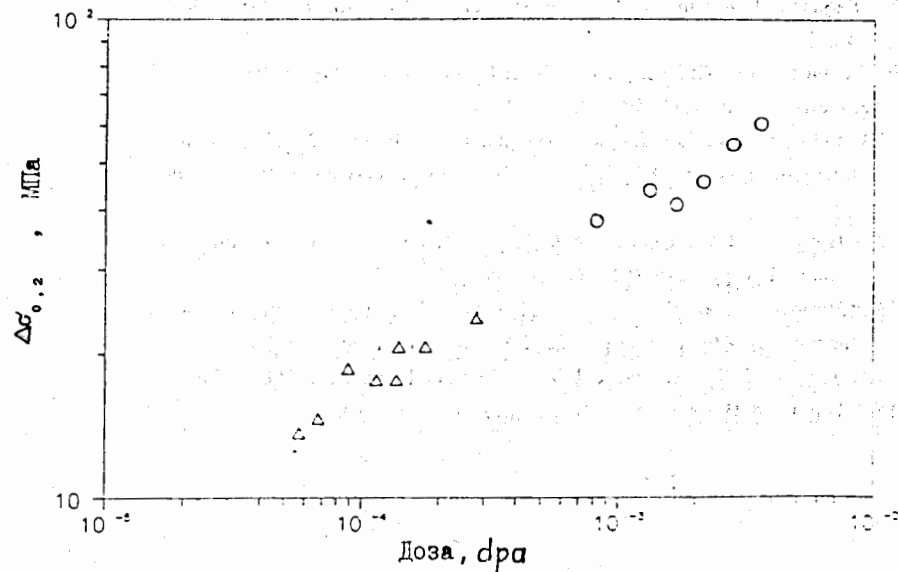


Рис.3. Изменение предела текучести циркония после облучения ионами Ne (230 МэВ) - Δ и ионами Ag (460 МэВ) - \circ .

Для более полного понимания процессов, приводящих к растрескиванию оболочек тепловыделяющих элементов, требуется проведение экспериментов, соответствующих реальным условиям работы (температурным, уровням повреждений, концентрациям имплантированных осколков деления и др.). Такие работы предполагается провести в дальнейшем.

ЛИТЕРАТУРА

1. R.L.Jones et al. J.Nucl.Mater., 91, 1980, p.277.
2. L.Brunisholz and Cl.Lemaignar. 7th Int. Conf. on Zirconium in Nuclear Industry, Strasburg, France, June 24-27, 1985.
3. K.N.Choo, S.I.Pyun and J.K.Choi. J.Nucl.Mater., 149, 1987, p.289.
4. Ф.Г.Решетников и др. Атомная энергия, т.64, вып.4, 1988, с.
5. K.Videm and L.Lunde. ASTM STP 681, 1979, p.229.
6. M.Griffiths. J.Nucl.Mater., 150, 1987, p.159.
7. L.Lunde and K.Videm. J.Nucl.Mater., 95, 1980, p.210.

8. T.Onchi, H.Kayano and Y.Higashichuchi. J.Nucl.Mater., 116, 1983, p.211.
9. I.Schuster and Cl.Lenaigan. J.Nucl.Mater., 151, 1988, p.108.
10. J.Soullard et.al. Rad. Eff. 38, 1978, p.119.
11. U.Littmark and J.F.Ziegler. Handbook of Range Distribution for Energetic Ions in All Elements. New York, Pergamon Press, 1980, 403.
12. A.Hofman, T.Kochanski, A.Malczyk. Raport of the Institute of Atomic Energy, 2152/VI, Swierk, Poland, 1993.
13. A.Hofman, T.Kochanski, A.Malczyk, V.Skuratov. Raport of the Institute of Atomic Energy, 2262/VI, Swierk, Poland, 1995.
14. H.Malzke, C.Ronchi and C.Baker. Nucl.Sci.Technol., 5, 1984, p.1105.
15. A.Didyk, A.Hofman et.al. Nukleonika, 40, 1995, p.81-86.

Рукопись поступила в издательский отдел
14 июля 1995 года.