

УДК 621.039.56

## РАДИАЦИОННАЯ СТОЙКОСТЬ ТАБЛЕТОК КАРБИДА БОРА РАЗЛИЧНОЙ СТЕХИОМЕТРИИ С ВЫСОКИМ ОБОГАЩЕНИЕМ ПО ИЗОТОПУ БОР-10

© 2012 В.Д. Рисованый, Е.М. Муралева, А.В. Захаров, Е.П. Клочков

ОАО «Государственный Научный Центр –  
Научно-исследовательский институт атомных реакторов», г. Димитровград

Поступила в редакцию 20.11.2012

Приведены результаты испытаний в реакторе БОР и послереакторных исследований таблеток карбида бора различной стехиометрии с обогащением по изотопу бор-10. Максимальный флюенс быстрых нейтронов составил  $5,8 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ . После испытаний таблетки карбида бора имели трещины, увеличение диаметра таблеток не превышало 3,9 %. Кристаллическая структура таблеток сохранилась после облучения, ее параметры увеличились не более, чем на 1,5 %. Выгорание изотопа  $^{10}\text{B}$  во всех таблетках не превышало 3 %. Проведенные исследования показали возможность применения в качестве поглощающих материалов карбида бора высокого обогащения по изотопу  $^{10}\text{B}$  (98,4 %) нестехиометрического состава вплоть до  $\text{B}_{10}\text{C}$ .

**Ключевые слова:** карбид бора, свойства, структура, обогащение по изотопу бор -10, радиационная стойкость, быстрый реактор.

### ВВЕДЕНИЕ

Карбид бора ( $\text{B}_4\text{C}$ ) широко применяется в качестве поглощающего материала органов регулирования ядерных реакторов различного типа [1,2]. В стержнях аварийной защиты (АЗ) реакторов на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем используют только карбид бора, обогащенный до 80-92 % изотопом  $^{10}\text{B}$ , что обусловлено требованием их высокой физической эффективности [3,4]. В стержнях АЗ проектируемого реактора БН-800 планируется увеличение обогащения до 95 % по изотопу  $^{10}\text{B}$  [5].

Ядерная плотность изотопа  $^{10}\text{B}$  может быть повышена и другими способами, например, увеличением физической плотности материала, использованием соединений нестехиометрического состава, либо других соединений с более высокой плотностью ядер бора, чем у карбида бора. Так ядерная плотность бора в карбиде бора  $\text{B}_{10}\text{C}$  на ~ (6-8) % выше, чем у  $\text{B}_4\text{C}$ .

В настоящей работе представлены результаты испытаний в реакторе на быстрых нейтронах БОР-60 и материаловедческие исследования таблеток карбида бора различного стехиометрического состава с обогащением 98,4 % по изотопу  $^{10}\text{B}$ . Таблетки были изготовлены в Национальном центре высоких технологий Гру-

зии (г. Тбилиси), испытания и исследования проведены в Государственном Научном Центре Российской Федерации «Научно-исследовательском институте атомных реакторов» (г. Димитровград, Ульяновской обл.).

### 1. ИССЛЕДУЕМЫЕ МАТЕРИАЛЫ И УСЛОВИЯ ОБЛУЧЕНИЯ

Для проведения испытаний были разработаны и изготовлены ампулы, конструкция которых показана на рис. 1. Ампулы в верхнем концевике имеют узел негерметичности, обеспечивающий заполнение внутренних зазоров ампулы натрием при помещении их в реактор, а также выход выделяющегося газа в теплоноситель. Для изготовления оболочки ампулы использовали трубу из стали 12Х18Н10Т ( $\varnothing 10,0 \times 0,4$  мм).

Облучение ампул проводили в стандартном материаловедческом пакете.

В ампулах в качестве сердечника испытывались таблетки карбида бора различной стехиометрии, характеристики которых представлены в табл. 1.

Реакторные испытания ампул с таблетками карбида бора проводили в ячейке Д-02 восьмого ряда (радиус 31,2 см) ядерного реактора на быстрых нейтронах БОР-60 до максимального флюенса  $5,8 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$  ( $E > 0,1 \text{ МэВ}$ ). Значения флюенсов нейтронов по высоте ампул представлены на рисунке 2. Температура на внешней поверхности оболочек ампул составляла 345-350°C, в центре таблеток 600-660°C. Расчетное выгорание изотопа  $^{10}\text{B}$  во всех таблетках было практически одинаковым и составило 2,3 %.

*Рисованый Владимир Дмитриевич, доктор технических наук, заместитель директора. E-mail: rvd@niiar.ru  
Муралева Елена Михайловна, кандидат технических наук, научный сотрудник. E-mail: muraleva@niiar.ru  
Захаров Анатолий Васильевич, кандидат технических наук, начальник лаборатории. E-mail: ris@niiar.ru  
Клочков Евгений Петрович, доктор технических наук, главный научный сотрудник.*

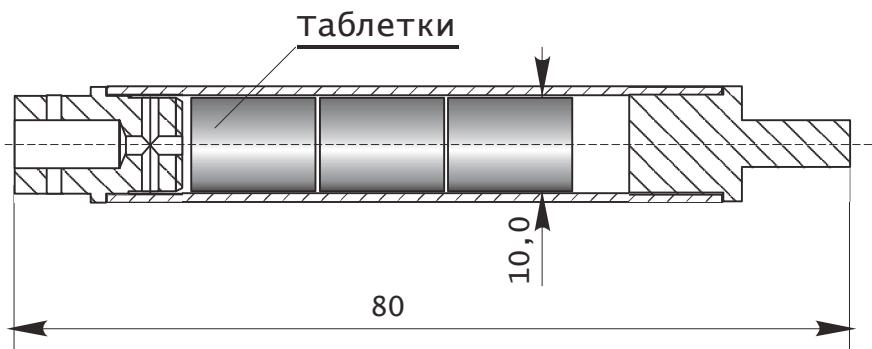


Рис. 1. Конструкция ампул с таблетками

Таблица 1. Характеристики таблеток карбida бора

Наименование материала	Стехиометрия	Обогащение, ат.%	До облучения							
			Обозначение образца	Диаметр, мм	Высота, мм	Масса, г	Плотность, г/см <sup>3</sup>	Плотность по <sup>10</sup> B, г/см <sup>3</sup>		
Карбид бора, обогащенный изотопом <sup>10</sup> B	<sup>10</sup> B <sub>4,3</sub> C	98,4	9-1	6,844	12,425	1,0841	2,37	1,82	0,03	
			9-2	6,851	12,573	1,0993	2,37	1,82	0,03	
	<sup>10</sup> B <sub>6,5</sub> C		11-1	6,851	12,306	1,0556	2,33	1,94	0,03	
			11-2	6,843	12,595	1,0786	2,33	1,94	0,03	
	<sup>10</sup> B <sub>10</sub> C		6-1	6,82	12,6	1,0563	2,29	2,01	0,03	
			6-2	6,85	12,32	1,0473	2,31	2,03	0,03	

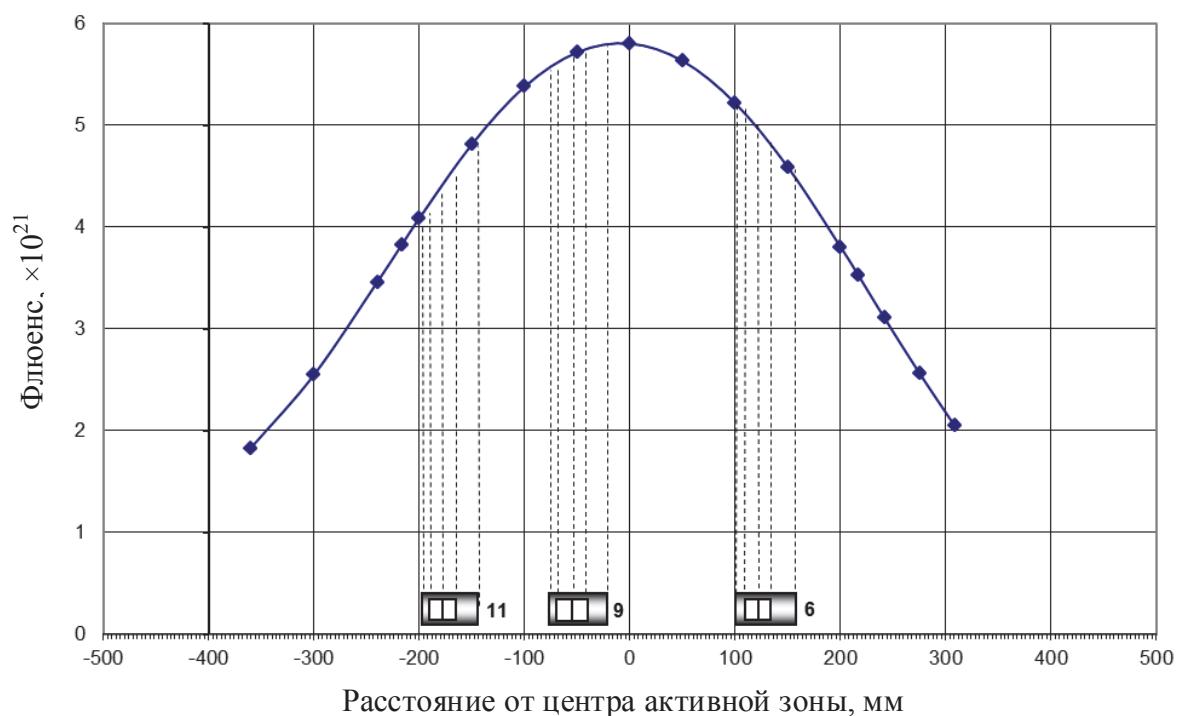


Рис. 2. Распределение флюенса нейтронов по высоте активной зоны ядерного реактора БОР-60 (цифрами указаны номера ампул)

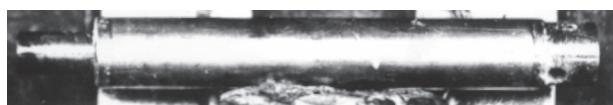
## 2. ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

После окончания облучения материаловедческий пакет был отмыт от натрия в спиртоводной смеси и направлен на материаловедческие исследования.

Визуальный осмотр макетов не выявил формоизменений и каких-либо дефектов оболочки (нарушений целостности, изгибов, вмятин, коррозионных повреждений). Оболочки сохранили характерный блестящий цвет (рисунок 3, а). На поверхности оболочек отсутствовали отложения, налеты и цвета побежалости. Не было обнаружено каких-либо повреждений сварных соединений.

После реакторных испытаний размеры ампул не изменились. Зазоры между таблетками и оболочкой сохранились (рис. 3, б).

После разделки ампул и выщелачивания натрия свободно извлекли все таблетки. Таблетки имели трещины (рис. 4), часть из них разрушилась при незначительном механическом воздействии. Увеличение диаметра составило 1,3-3,9 %. Корреляции между стехиометрией карбида бора и распусканием не обнаружено, что объясняется растрескиванием таблеток практически одинакового характера – радиальные трещины, распространяющиеся от центра к поверхности (рис. 5).



а

Параметры гексагональной кристаллических решёток карбидов бора до и после реакторного облучения представлены в таблице 3. Дифрактограммы карбидов бора были проиндцированы как относящиеся к тригональной структуре с пространственной группой R-3m (166). Изменение стехиометрии карбида бора  $B_xC$  с  $x=4,3$  до  $x=10$  не сильно влияет на параметры кристаллической структуры. Облучение приводит к увеличению параметров на величину не более 1,5 %.

После реакторных испытаний определялся изотопный состав бора в образцах карбида бора. Относительное содержание  $^{10}B$  в образце  $B_{6,5}C$  -  $95,3 \pm 0,5\%$ , что соответствует выгоранию  $^{10}B$  3,1 %, в образце  $B_{4,3}C$  -  $96,2 \pm 0,5\%$  (выгорание  $^{10}B$  2,2 %), в образце  $B_{10}C$  -  $96,3 \pm 1,0\%$  (выгорание  $^{10}B$  2,1 %).

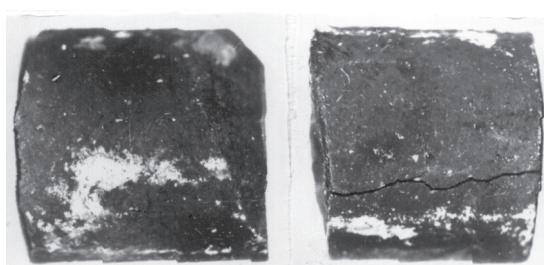
## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные исследования показали возможность применения в качестве поглощающих материалов карбида бора высокого обогащения по изотопу  $^{10}B$  (98,4 %) нестехиометрического состава вплоть до  $B_{10}C$ , что позволяет повысить физическую эффективность органов регулирования ядерных реакторов на быстрых нейтронах.

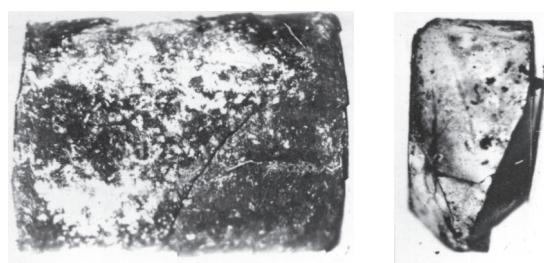


б

**Рис. 3.** Внешний вид ампулы (а) и рентгеновский снимок ампулы (б) с таблетками борсодержащих материалов после реакторного облучения в реакторе БОР-60



а



б

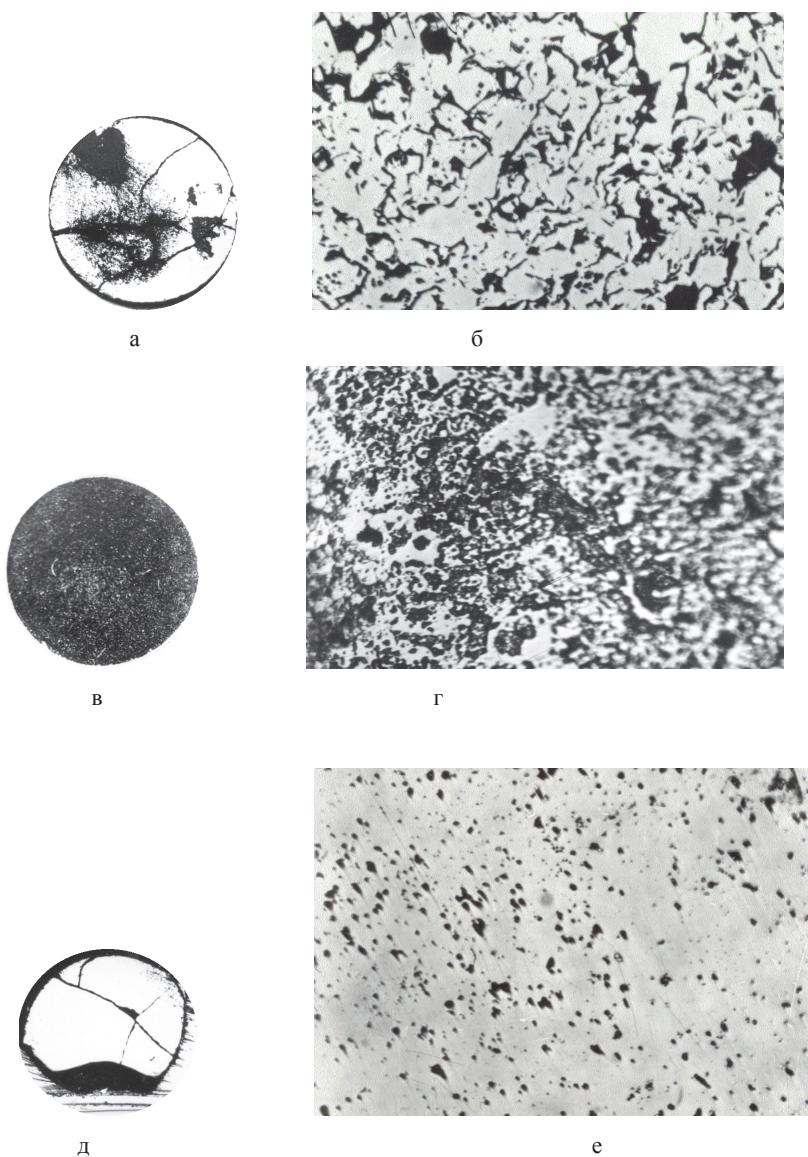


в

**Рис. 4.** Внешний вид таблеток карбида бора после облучения в реакторе БОР-60:  
 $B_{10}C$  (а);  $B_{4,3}C$  (б);  $B_{6,5}C$  (в)

**Таблица 2.** Характеристика таблеток из боросодержащих материалов, испытанных в реакторе БОР-60

Наимено- вание материала	Стехио- метрия	Обогаще- ние, ат.%	До облучения				После облучения				
			Диаметр, мм	Высота, мм	Масса, г	Плот- ность, г/см <sup>3</sup>	Диаметр, мм	Высота, мм	Плот- ность, г/см <sup>3</sup>	Изменение диаметра, %	
Карбид бора, обогаш- енный изотопом <sup>10</sup> B	<sup>10</sup> B <sub>4,3</sub> C	98,4	6,844	12,425	1,0841	2,37	7,11	8,57	2,32	3,9	
			6,851	12,573	1,0993	2,37	7,09	10,82	2,23	3,5	
			6,851	12,306	1,0556	2,33	6,97	-	2,34	1,7	
	<sup>10</sup> B <sub>6,5</sub> C		6,843	12,595	1,0786	2,33	6,94	-	2,32	1,4	
			6,82	12,6	1,0563	2,29	6,98	12,8	2,25	2,3	
			6,85	12,32	1,0473	2,31	6,94	-	2,25	1,3	



**Рис. 5.** Поперечный разрез и микроструктура таблеток карбида бора после облучения в реакторе БОР-60: B<sub>10</sub>C (а, б); B<sub>4,3</sub>C (в, г); B<sub>6,5</sub>C (д, е)

**Таблица 3.** Параметры кристаллических решёток карбидов бора до и после реакторного облучения

Материал	a, нм		c, нм	
	до обл.	после обл.	до обл.	после обл.
$^{10}\text{B}_{10}\text{C}$	$0,56558 \pm 0,00023$	$0,56746 \pm 0,00016$	$1,22335 \pm 0,00094$	$1,22417 \pm 0,00152$
$^{10}\text{B}_{4,3}\text{C}$	$0,56148 \pm 0,00006$	$0,56438 \pm 0,00016$	$1,21112 \pm 0,00019$	$1,22348 \pm 0,00155$
$^{10}\text{B}_{6,5}\text{C}$	$0,56088 \pm 0,00023$	$0,56376 \pm 0,00016$	$1,20831 \pm 0,00079$	$1,20831 \pm 0,00147$

**СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Рисованый В.Д., Захаров А.В., Клочков Е.П., Гусева Т.М. Бор в ядерной технике. 2е, перераб. и доп. Димитровград: ОАО «ГНЦ НИИАР», 2011. 668 с.
2. Рисованый В.Д., Захаров А.В., Клочков Е.П. Поглощающие материалы и органы регулирования ядерных реакторов. М.: Издательский дом МЭИ, 2012. 392 с.
3. Кузнецов С.А., Меламед В.Е., Неворотин В.К., Пономаренко В.Б. Стержни регулирования для быстрых реакторов с натриевым теплоносителем// Summary Report Meeting of Specialists on Development and Application of Absorber Materials. Dimitrovgrad: RIAR, 1973. P.381-390.
4. Alexandrov Yu.K., Vasilyev B.A., Iskhakov S.A. at al. Experience of the BN-600 reactor control rod development. Vienna: IAEA, 1996. TECDOC-884. P.33-45.
5. Захаров А.В., Рисованый В.Д., Клочков Е.П. и др. Материаловедческие исследования стержней АЗ быстрых реакторов БОР-60, БН-600 и проблемы увеличения их ресурса // Сб.докл. Четвертой межотраслевой конференции по реакторному материаловедению. Димитровград: ГНЦ РФ НИИАР, 1996. Т.4. С.82-107.

**RADIATION RESISTANCE OF BORON CARBIDE PELLETS DIFFERENT STOICHIOMETRY WITH HIGH ENRICHED IN THE BORON-10**

© 2012 V.D. Risovaniy, E.M. Muraleva, A.V. Zakharov, E.P. Klochkov

Joint Stock Company “State Scientific Center Research Institute of Atomic Reactors”, Dimitrovgrad

The results of the tests in the BOR and the post-irradiation examination of boron carbide pellets different stoichiometry enriched in the boron-10. Maximum fast neutron fluence was  $5,8 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ . After testing of boron carbide tablets had cracks, increasing the diameter of tablets did not exceed 3.9%. The crystal structure of tablets remained after irradiation, its parameters have increased by no more than 1.5%. Burnout isotope  $^{10}\text{B}$  in all tablets should not exceed 3%. Studies have shown the possibility of use as absorbent materials boron carbide highly enriched in the isotope  $^{10}\text{B}$  (98.4%) nonstoichiometric until  $\text{B}_{10}\text{C}$ .

Keywords: boron carbide, properties, structure, enriched in the boron-10, radiation resistance, fast reactor.

Vladimir Risovaniy, Doctor of Technics, Deputy Director.  
E-mail: rvd@niiar.ru

Elena Muraleva, Candidate of Technics, Research Fellow.  
E-mail: muraleva@niiar.ru

Anatoliy Zaharov, Candidate of Technics, Head of Laboratory.  
E-mail: ris@niiar.ru

Evgenyi Klochkov, Doctor of Technics, Chief Research Fellow.