

УДК 538.9

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ТАНТАЛА ДЛЯ ОРГАНОВ РЕГУЛИРОВАНИЯ ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ

© 2012 Е.П. Клочков¹, Е.М. Муралева^{1,2}

¹ ОАО «ГНЦ РФ НИИАР», г. Димитровград

² Ульяновский государственный университет

Поступила в редакцию 20.11.2012

Тантал имеет достаточно высокое сечение поглощения нейтронов в быстрой области энергий и в 70-е годы рассматривался как кандидатный материал для органов регулирования ядерных реакторов на быстрых нейтронах [1-8]. В данной работе исследуется возможность применения тантала в качестве материала для органов регулирования ядерных реакторов на быстрых нейтронах. Исследуются свойства тантала в зависимости от химического состава и термомеханической обработки изделий. Рассмотрено влияние реакторного облучения на структуру и химический состав материала. Исследуется влияние различных механизмов на увеличение объема образцов тантала под облучением. Облучение исследуемого материала проводилось в реакторе БОР-60.

Ключевые слова: тантал, органы регулирования, ядерный реактор

ВВЕДЕНИЕ

Тантал в 70-е годы рассматривался как кандидатный материал для органов регулирования ядерных реакторов на быстрых нейтронах [1-8]. Согласно [1] в этом качестве его использовали в UK Prototype Fast Reactor. В ограниченном объеме исследования радиационной стойкости различных образцов тантала проводились и в России.

Свойства тантала могут заметно изменяться в зависимости от химического состава и термомеханической обработки изделий. На рис. 1 приведены структуры тантала после механической обработки и отжига при температурах 1000, 1500 и 2000°C в течение 1 часа. После температуры отжига 1000°C появляются первые мелкие зерна размером до 50 мкм, структура полностью сформирована по всему объему после отжига 1500°C, размер зерен лежит в диапазоне 50...200 мкм. После отжига 2000°C размер зерен достигает 0,9 мм. По-видимому, наиболее оптимальный размер зерна тантала 10...50 мкм.

В табл. 1 представлены типичные химические составы тантала, исследованные в различных странах.

Во всех случаях содержания примесей в нем не превышает 0,1 %. Наибольший вклад вносят ниобий (50-700 ppm), вольфрам (100-150 ppm), молибден (150 ppm).

ИССЛЕДОВАНИЕ МЕХАНИЧЕСКИЙ СВОЙСТВ ТАНТАЛА ПОД ОБЛУЧЕНИЕМ

Реакторное облучение приводит к увеличению прочности и снижению пластичности тантала

(табл. 2). Изменяется не только структура, но и химический состав материала, в котором при реакторном облучении накапливается вольфрам. Из таблицы видно, что добавка вольфрама в тантал в исходном состоянии сопровождается заметным увеличением его прочности. Так, предел прочности тантала составил 290 МПа, а добавка 3%W привела к увеличению этой характеристики до 361 МПа.

Следует отметить, что пластичность тантала сохраняется на достаточно высоком уровне ($\delta_p = 7\%$) даже после облучения флюенсом тепловых нейтронов $1,6 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$.

Образцы тантала диаметром 6 мм и высотой 300 мм облучали в реакторе LMFBR в среде натрия, скорость протекания которого составляла 7 м/с, а содержание кислорода – 2,7 ppm [1]. Испытания проводили при температуре 858 К. Наблюдалось окисление образцов тантала с образованием на поверхности оксидного слоя Ta_2O_5 . Скорость потери массы образцов тантала составила 0,4 мм/год.

Нанесение на образцы тантала тонкого слоя молибдена полностью предотвращает протекание процессов коррозии. Эти результаты получены после испытаний образцов в реакторе на быстрых нейтронах Dounreay в течение 5 лет до флюенса быстрых нейтронов $7 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,11 \text{ МэВ}$) [6].

Реакторное облучение приводит к увеличению объема образцов тантала (рис. 2)

Максимальное распухание тантала соответствует температуре 600-650°C. До температуры 450°C оно не наблюдалось. Выше температуры 600-650°C происходит снижение распухания и при $t=1100^\circ\text{C}$ оно не превышает 0,3%. Таким образом, распухание тантала не является линейной функцией от температуры облучения и для его

Клочков Евгений Петрович, доктор технических наук, главный научный сотрудник.

Муралева Елена Михайловна, кандидат технических наук, научный сотрудник. E-mail: muraleva@niiar.ru

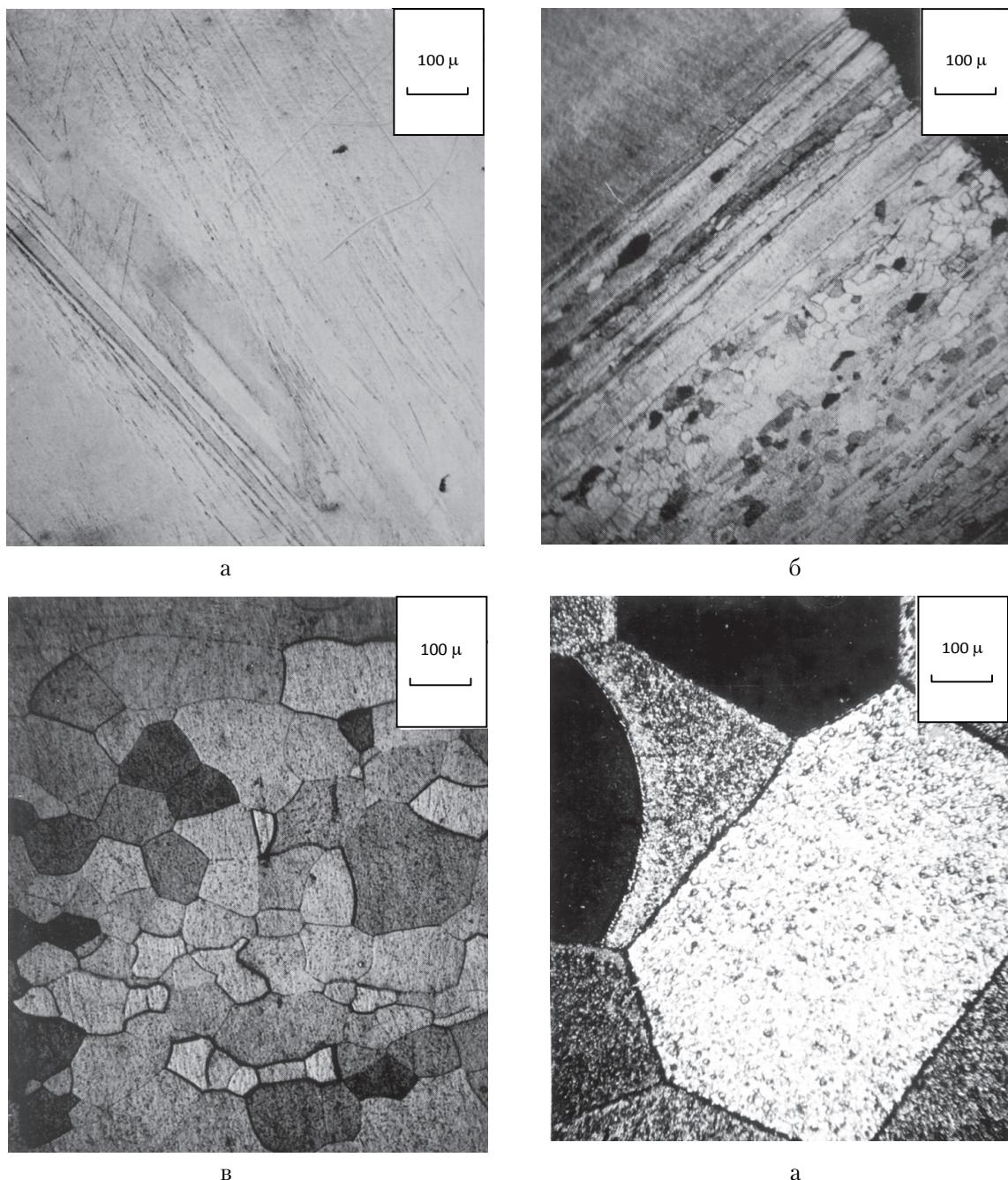


Рис. 1. Структура tantalа:

а – после деформации; б – после деформации и отжига при температуре 1000 °C; в – после деформации и отжига при температуре 1500 °C; г – после деформации и отжига при температуре 2000 °C

Таблица 1. Типичный химический состав tantalа, ppm [1]

Страна	Ta, %	C	Fe	Cu	Ni	Si	Nb	W	Mo	O	H	N
Великобритания	99,9 min	10	20	10	20	30	50	100	150	25	4	10
США		30	-	-	-		240	150	-	22	-	21
Франция		4	-	-	-		700	<150	-	4,3	-	6,3

- нет данных

определения предложена формула [1]:

$$\frac{\Delta V}{V} = F(t)(\phi t)^{0.4}, \quad (1)$$

где $\frac{\Delta V}{V}$ – изменение объёма, %; F(t) – темпера-

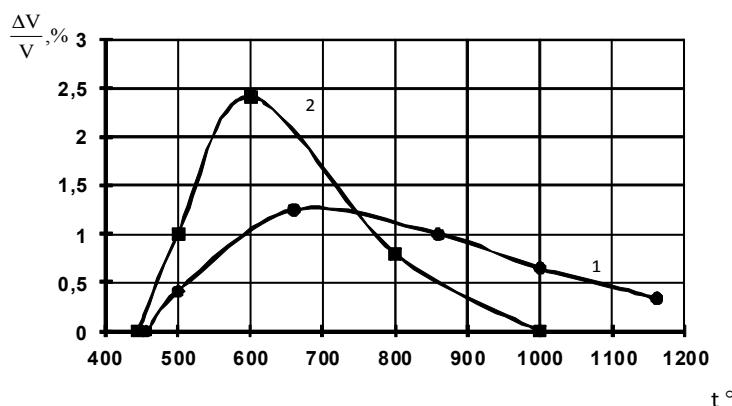
турная функция, равная $= 1,69 \exp(0,01T 11,75)^2 / \alpha$; T – температура, °F.

$$\alpha = \frac{14,87 + 44,57 \exp(0.005(T - 1950))}{1 + \exp(0.005(T - 1950))}. \quad (2)$$

В работе [5] представлены результаты, под-

Таблица 2. Влияние реакторного облучения на механические свойства тантала [1]

Образец	Флюенс тепловых нейтронов, $\times 10^{20} \text{ см}^{-2}$	Предел прочности σ_b , МПа	Предел текучести σ_{02} , МПа	Относительное удлинение, δ_p , %
Ta	-	290	207	40
Ta + 1.5%W	-	310	214	39
Ta + 3%W	-	361	266	35
Ta	7,8	479	454	16
Ta	16,0	595	561	7

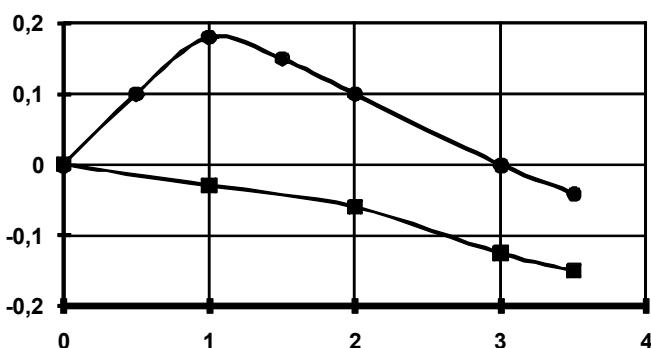
**Рис. 2.** Изменение объёма образцов тантала от температуры облучения:1 – флюенс нейтронов $5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) [5];2 – флюенс нейтронов $2,5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) [7]

твреждающие влияние трансмутационного вольфрама на изменение объёма образцов тантала (рис. 3). Облучение при температуре 770–820К до флюенса нейтронов $5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) привело к увеличению длины образцов до 0,2%, а начиная с флюенса нейтронов $1 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$), происходит её уменьшение вплоть до исходных значений при $F_{0,1} = 3 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$.

Размеры атомов вольфрама меньше, чем размеры атомов тантала (рис. 4). Поэтому процесс нейтронного захвата атомами тантала и накопление атомов вольфрама приводит к уменьшению объема образцов. Этот эффект незначителен и экспериментально обнаружить его удалось только при измерениях высоты образцов, имеющих значительно большие размеры, чем диаметр.

Основной вклад в распухание тантала вносят поры. До температуры облучения 698К образования пор и распухание тантала не обнаружено. При температуре облучения 858К диаметр пор достигает 205Е, а концентрация $1,9 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}$ (табл. 3). При флюенсе быстрых нейтронов $2,5 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) это привело к увеличению объёма на 2,4%.

Таблетки тантала диаметрами 8,2 мм и 28 мм облучали в герметичных и негерметичных ампулах в виде оболочек диаметрами 9,5x0,5мм и 30x0,5мм с концевыми деталями, выполненными из нержавеющей стали ОХ16Н15М3Б. Зазор между таблетками тантала и оболочкой заполнялся гелием. Негерметичные ампулы имели аксиальные отверстия в концевых деталях диамет-

**Рис. 3.** Изменение длины образцов тантала от флюенса быстрых нейтронов при температуре облучения 770-820 К [5]:

1 – общее удлинение образцов; 2 – вклад трансмутационного вольфрама в изменение длины образцов

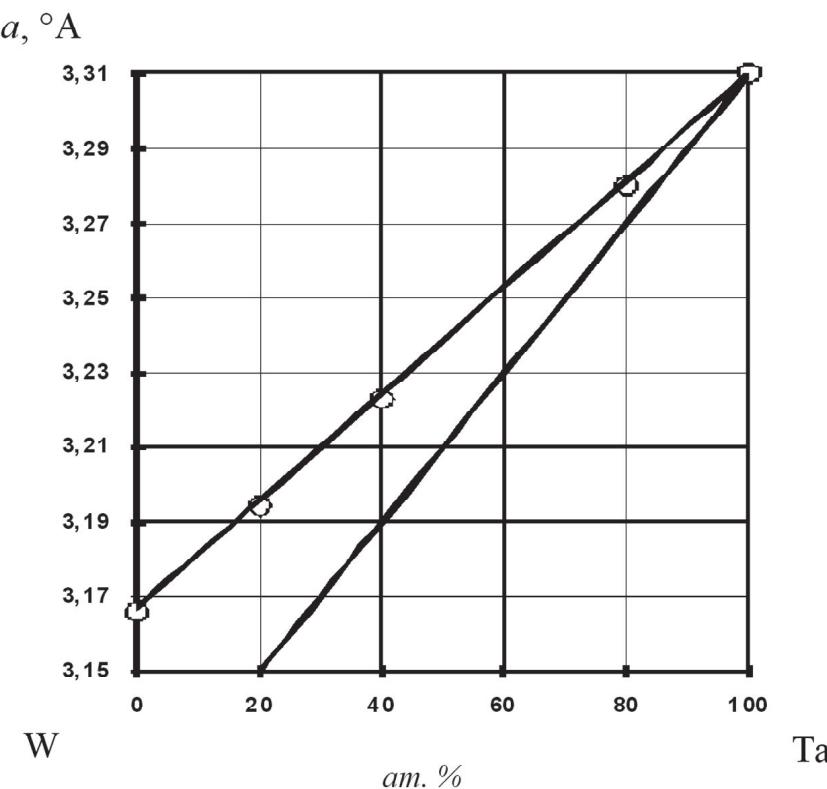


Рис. 4. Зависимость изменения размера параметра «а» кристаллической решетки Та от содержания в нем В

Таблица 3. Результаты измерений параметров пор и распухания образцов тантала при реакторном облучении [7]

Температура облучения, К	Флюенс нейтронов, $\times 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$)	Параметры пор		Изменение объема, %
		Концентрация, $\times 10^{21} \text{ м}^{-3}$	Средний диаметр, Å	
698	2,5	0	-	-
850	2,5	190	61	2,4
1063	2,5	6,1	117	0,65
1223-1323	4,4	< 0,3	130	< 0,3

рами 2-3 мм. Ампулы размещали в материало-введческом пакете реактора БОР-60.

Облучение проводили в реакторе БОР-60 в течение 480 эф.сут. до максимального флюенса быстрых нейтронов $4,7 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$). Таблетки тантала диаметров 8,2 мм, облучавшиеся в герметичных ампулах, имели максимальную температуру 395°C , в негерметичных ампулах - 340°C . Температура таблеток тантала большого диаметра ($\varnothing 28\text{мм}$), облучавшихся в контакте с теплоносителем – натрием, составляла $710...750^\circ\text{C}$. Для определения температуры использовали плавкие индикаторы. Удельное энерговыделение равнялось $33...37 \text{ Вт}/\text{см}^3$.

После реакторных испытаний все ампулы видимых повреждений не имели. Поверхность ампул была блестящей, отсутствовали вздутия, трещины, искривления и другие видимые дефекты. На рис 5. показана структура тантала после облучения.

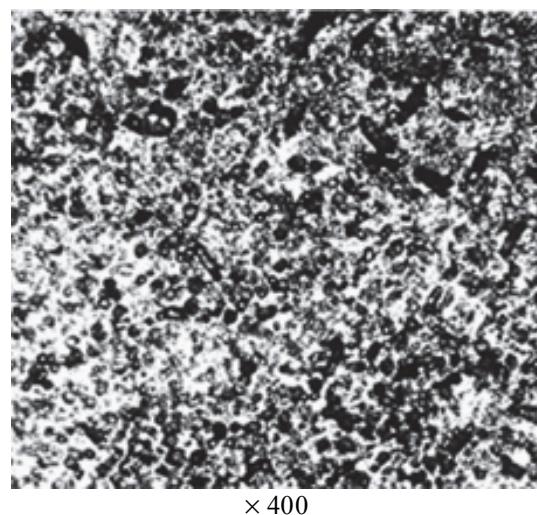


Рис. 5. Структура тантала после облучения в реакторе БОР-60 при температуре 395°C флюенсом быстрых нейтронов $4 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$)

До разделки ампулы около одного месяца хранились в "горячей" камере в воздушной среде. Это привело к разрушению ампул с таблетками tantalа диаметром 28 мм. Наиболее вероятная причина такого поведения – разогрев tantalа от остаточного тепловыделения и его взаимодействие с натрием и парами воды, имевшимися в "горячей" камере, что привело к распуханию таблеток и разрыву оболочки. Высокие тепловыделения подтверждаются наличием цветов побежалости на герметичных ампулах с таблетками tantalа.

ВЫВОДЫ

Проведенные исследования показали, что tantal может эксплуатироваться в качестве поглощающего материала в ядерных реакторах на быстрых нейтронах, по крайней мере, до флюенсов быстрых нейтронов порядка $(5\text{-}7) \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ МэВ}$) и температуре ниже 750°C при условии обеспечения хорошего теплоотвода. При этом возникают большие проблемы по обращению с изделиями с tantalом после извлечения их из реактора, т.к. требуется применение специальных технологий, обеспечивающих принудительное охлаждение, предотвращение контакта

с воздушной и паро-водяной средой. Эти ограничения не позволяют рекомендовать использование tantalа в качестве поглощающего материала для отечественных регулирующих органов ядерных реакторов на быстрых нейтронах.

Работа выполнена при поддержке министерства образования и науки Российской Федерации.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Murgatroyd R.A., Kelly B.T. Technology and assessment of neutron absorbing materials // Atomic Energy Rev, 15, 1 (1977).
2. Murgatroyd R.A., Bell I.P. IDevelopment of tantalum as absorbing material in the UK Fast Reactor Program / / IAEA, IWGFR Specialist Meeting, Dimitrovgrad, USSR (1973). P.58-68.
3. Савицкий Е.М., Бурханов Г.С. Материаловедение тугоплавких металлов и сплавов. М.: Наука. 1967. 324 с.
4. Hampel C.A. Rare metals handbook, Reinhold, New York (1981).
5. Bates J.F. Pitner A.L. Nucl Technol. 16 (1972) 406.
6. Murgatroyd R.A., Bell I.P., Bland J.T. ASTM STP 570(1975) 421-32.
7. Wiffen F.W., Trans. Am. Nucl. Soc. 14(1971) 603.
8. Specht E.R., Bennett J.W. Tantalum control elements for LWFBR'S., IAEA, IWGFR Specialist Meeting, Dimitrovgrad, USSR (1973). P.129-140.

USE TANTALUM FOR CONTROL ROD NUCLEAR REACTORS ON FAST NEUTRONS

© 2012 E.P. Klochkov¹, E.M. Muraleva^{1,2}

¹Joint Stock Company "State Scientific Center Research Institute of Atomic Reactors", Dimitrovgrad

Tantalum has a sufficiently high neutron absorption cross section in the fast energy region in 70 years was considered as a candidate material for a regulatory nuclear reactors on fast neutrons [1-8]. In this paper we investigate the possibility of using tantalum as a material for regulators nuclear reactors on fast neutrons. We study the properties of tantalum, depending on the chemical composition and thermomechanical processing products. The influence of reactor irradiation on the structure and chemical composition of the material. We investigate the influence of different mechanisms to increase the volume of tantalum samples under irradiation. Exposure of the material held in BOR-60.

Keywords: tantalum, control rod, nuclear reactor.

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