

ЭКСПЛУАТАЦИЯ ОБЪЕКТОВ  
АТОМНОЙ ОТРАСЛИ

УДК 621.039.5.66.045.8

**О ЯДЕРНОМ ГИДРИРОВАНИИ ОБОЛОЧЕК  
ТЕПЛОЫДЕЛЯЮЩИХ ЭЛЕМЕНТОВ ИЗ АЛЮМИНИЯ  
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО РЕАКТОРА ИР-100**

© 2015 П.А. Пономаренко, М.А. Фролова

*Севастопольский государственный университет, Севастополь, Крым, Россия*

Известно, что под действием нейтронного излучения в алюминии и в его сплавах увеличиваются пределы прочности и текучести, но уменьшается предел пластичности, что, в силу распухания топливной композиции, приводит к растрескиванию оболочек ТВЭЛов. Проведенные исследования показали, что причиной растрескивания алюминиевых оболочек ТВЭЛ реакторов на тепловых нейтронах является замедленное ядерное гидрирование алюминия в нейтронных полях, а растрескивание оболочек, связанное с потерей пластичности, зависит от содержания водорода в кристаллической решетке металла оболочек. Так, возникшие в результате ядерного взаимодействия нейтронов и ядер металла протоны, в связи с их низкой проникающей способностью, остаются в оболочке ТВЭЛа и образуют в ней атомы водорода, что снижает долговечность работы оболочек ТВЭЛов по их основному назначению.

*Ключевые слова:* гидрирование, нейтрон, алюминий, оболочка ТВЭЛ, ядерное топливо.

Поступила в редакцию 10.11.2015 г.

*Постановка проблемы в общем виде и ее связь с важными научными и практическими задачами.* Исследовательский реактор ИР-100, тепловой мощностью 200 кВт, начал работать в апреле 1967 года. До настоящего времени он работает на первой загрузке ядерного топлива. Она состоит из металлокерамических стержней  $\text{UO}_2$ , диаметром 7 мм, плотностью топлива  $4,8 \text{ г/см}^3$ , обогащением урана 10 %, размещенных в активной зоне по треугольной решетке с шагом 17 мм. Каждый металлокерамический стержень заключен в герметичную оболочку из алюминиевого сплава АД-1. в настоящее время энерговыработка активной зоны реактора ИР-100 составляет  $2 \cdot 10^6$  кВтчасов [1].

За указанное время эксплуатации реактора его активная зона несколько раз подвергалась детальной метрологии и спектрометрии нейтронных и гамма полей в ней.

В результате таких измерений можно допустить, что средняя плотность потока нейтронов спектра деления по активной зоне за это время составила  $\approx 3,74 \cdot 10^{12} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ . средняя плотность потока нейтронов с энергией более 14 МэВ для таких же условий составляет  $1,45 \cdot 10^8 \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ .

Нейтронами указанных энергий в силу их диффузии из топливного сердечника в замедлитель - теплоноситель ( $\text{H}_2\text{O}$ ) облучались оболочки тепловыделяющих элементов из алюминия марки АД-1.

В связи с тем, что в сумме примеси других металлов в этом сплаве не превышают 0,85%, нейтронно-ядерными процессами нейтронов спектра деления и с энергией более 14 МэВ с ядрами примесей можно пренебречь [2].

Нейтроны деления генерируются в топливной композиции тепловыделяющего элемента (ТВЭЛ), которая очень часто представляет собой  $\text{UO}_2$ , а делящийся нуклид в ней –  $^{235}_{92}\text{U}$ . Энергия нейтронов деления находится в пределах от 0,05 до 18 МэВ [3].

Нейтронное деление в области граничных энергий очень мало. Энергетический спектр нейтронов деления наиболее часто описывают спектром Уатта (верхняя граница энергии нейтронов в этом спектре заканчивается 10 МэВ).

Пространственная качественная картина изменения плотности нейтронов деления  $n_{дел}$  в ячейке (блок топлива – замедлитель) активной зоны реактора на тепловых нейтронах представлена на рисунке 1.

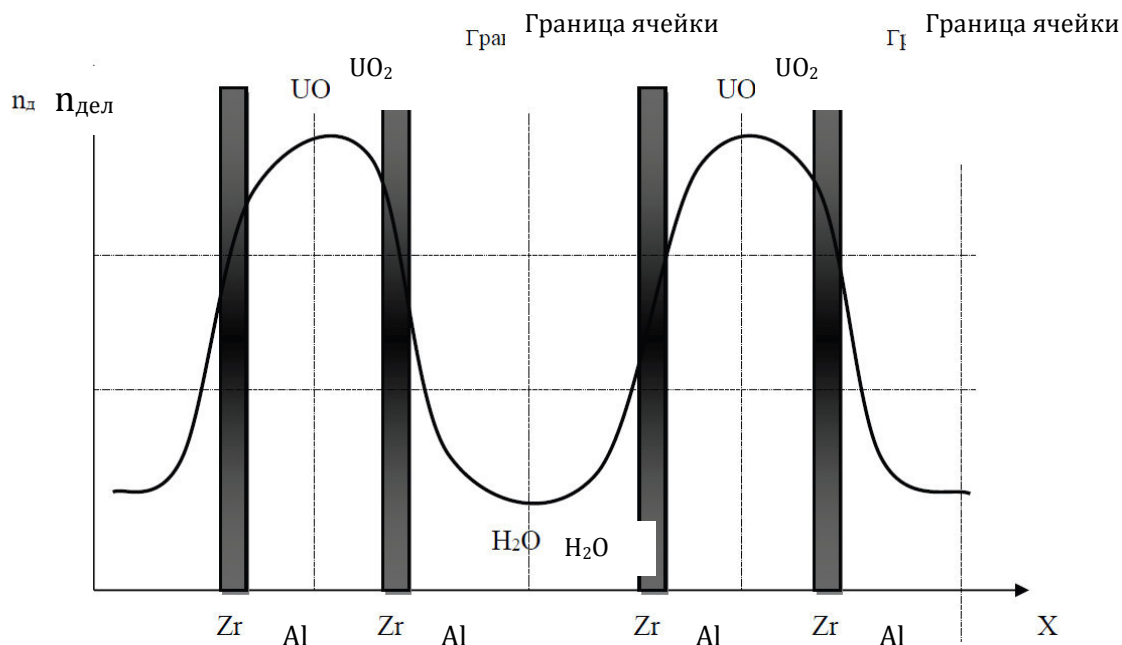
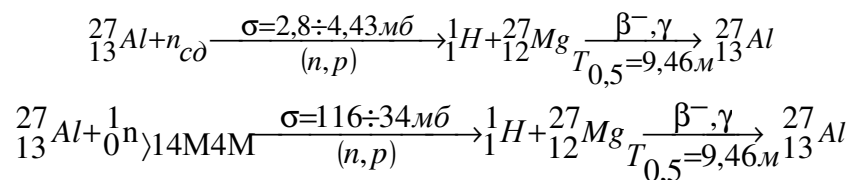


Рис. 1. – Характеристика распределения нейтронов деления по радиусу многозонной ячейки

Таким образом, согласно рисунку, налицо пространственная неравномерность плотности нейтронов  $n_{дел}(x)$ . Это ведет к диффузии нейтронов деления из точки с большей  $n_{дел}$  в точку с меньшей  $n_{дел}$ . Значит, почти все нейтроны деления проходят через оболочки ТВЭЛ от центра ядерного топлива к границе замедлителя между ячейками [3, 4].

Материал тепловыделяющего элемента – алюминий, который состоит из ядер  $^{27}_{13}Al$ .

Схемы физических моделей взаимодействия таких ядер алюминия с нейтронами уже указанных энергий имеют вид [2, 5, 6]:



Вычисленные средние микросечения представленных реакций будут соответственно равны  $\sigma_{сд} = 3,62 \text{ мбарн}$  и  $\sigma_{^{14}Mg} = 75 \text{ мбарн}$  [2].

Как видно из приведенных реакций, каждый вид взаимодействия, характеризующийся приведенными сечениями, дает 1 ядро водорода противя  $^1_1H$ .

Так как оболочка ТВЭЛ из алюминия имеет толщину 1 мм, допускаем, что образующиеся протоны, представляющие собой ядра противя, остаются в толще алюминия, присоединяя на оболочку атома один из свободных в алюминии электронов. Таким образом, в кристаллической решетке сплава АД-1 появляется атом

водорода [7-9]. Назовем этот процесс ядерным гидрированием или ядерным наводороживанием.

Внедренные атомы водорода через эффекты Вигнера [7] могут образовывать вакансии или смещения в кристаллической решетке сплава АД-1, или образовывать дефекты Френкеля [7, 8]. Сами же атомы водорода могут оставаться в междоузлиях решетки или заполнять образовавшиеся в кристаллической решетке вакансии. Кроме того, как нам кажется, атомы водорода могут служить и зарождением новой фазы. Описанные процессы проявляются в изменении механических свойств металла. Проведенные многочисленные опыты по влиянию нейтронного излучения на механические свойства алюминия говорят о росте предела прочности и снижении предела пластичности. Результатом снижения предела пластичности является хрупкость, которая ведет к образованию микротрещин в оболочках ТВЭЛ, через которые газообразные и возгоняющиеся высоко активные продукты деления попадают в теплоноситель-замедлитель (H<sub>2</sub>O), повышая его удельную активность и оказывая негативное влияние на эксплуатационные характеристики и безопасность реакторной установки [10].

В связи со сказанным, оценим степень гидрирования оболочек ТВЭЛ реактора ИР-100 за время его работы. Параметром степени гидрирования будет число ядер водорода в 1 см<sup>3</sup> сплава АБ-1.

Допускаем, что всю энерговыработку активной зоны в 2·10<sup>6</sup> кВт·часов достигли при работе на полной мощности 200 кВт. Тогда время работы активной зоны составит 10000 часов или  $t_{\text{раб}} = 10^4 \cdot 3600 \text{ с} = 3,6 \cdot 10^7 \text{ с}$ .

Математическая модель процессов для нейтронов спектра деления и нейтронов с E>14 МэВ, дающая количественное соотношение между выгоревшим материнским нуклидом Al и образовавшимся дочерним продуктом водородом, и составленная по схеме физических моделей будет иметь вид [2, 6]:

$$\frac{dN_{Al}}{dt} = -\overline{\sigma_{cd}^{Al}} \cdot \Phi_{cd} \cdot N_{Al}$$

$$\frac{dN_{Al}}{dt} = -\overline{\sigma_{>14MэВ}^{Al}} \cdot \Phi_{>14MэВ} \cdot N_{Al}$$

Решение этих математических моделей дает зависимости числа материнских ядер от времени работы активной зоны:

$$N_{Al}(t_{\text{раб}}) = N_0^{Al} \cdot e^{-\overline{\sigma_{cd}^{Al}} \cdot \Phi_{cd} \cdot t_{\text{раб}}}$$

$$N_{Al}(t_{\text{раб}}) = N_0^{Al} \cdot e^{-\overline{\sigma_{>14MэВ}^{Al}} \cdot \Phi_{>14MэВ} \cdot t_{\text{раб}}}$$

Число же выгоревших материнских ядер будет равно числу образовавшихся ядер протия, а число ядер водорода будет равно:

$$N_{1H}^{cd} = N_0^{Al} \cdot (1 - e^{-\overline{\sigma_{cd}^{Al}} \cdot \Phi_{cd} \cdot t_{\text{раб}}}), \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3}$$

$$N_{1H}^{>14MэВ} = N_0^{Al} \cdot (1 - e^{-\overline{\sigma_{>14MэВ}^{Al}} \cdot \Phi_{>14MэВ} \cdot t_{\text{раб}}}), \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3}$$

Подставив числовые значения величин, ранее уже встречавшиеся в тексте, и справочных величин [2], получим концентрацию ядер протия в 1 см<sup>3</sup> сплава АД-1 после выработки 2 · 10<sup>6</sup> кВтчасов:

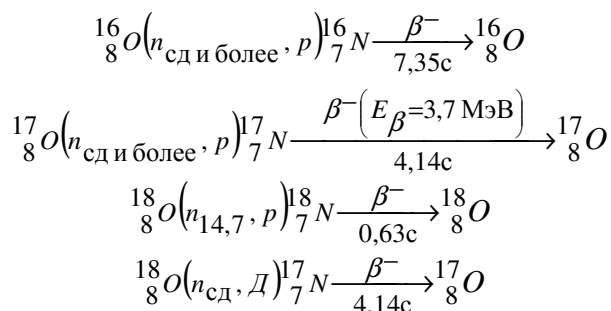
$$N_{1H}^{c\partial} = 2,91 \cdot 10^{16} \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3}$$

$$N_{1H}^{14\text{МэВ}} = 2,5 \cdot 10^{13} \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3}$$

В связи с тем, что плотность потока нейтронов с энергией более 14 МэВ является частью плотности потока нейтронов спектра деления, общая степень ядерного гидрирования (наводороживания) оболочек ТВЭЛ из сплава АД-1 реактора ИР-100 за время его работы составит 2,91 · 10<sup>16</sup> ядер/см<sup>3</sup>.

Рассмотренный способ является внутренним гидрированием оболочек алюминия.

Качественно можно оценить гидрирование алюминия со стороны топлива. Топливная композиция состоит из оксида урана. А природный кислород состоит из трех изотопов (<sup>16</sup>O – 99,76%; <sup>17</sup>O – 0,037%; <sup>18</sup>O – 0,204%) при взаимодействии ядер кислорода с нейтронами спектра деления (E<sub>0n</sub> = 0,1 ÷ 18 МэВ) в результате ядерных реакций образуются протоны [2, 6]:



Если образованные протоны возникают на границе топливо-оболочка и попадают в оболочку, они имеют проникающую способность от нескольких микрон до десятков микрон. В результате потери энергии в кристаллической решетке алюминия или в защитной окисной пленке останавливаются и, присоединяя к себе по одному из свободных электронов, превращаются в атомы водорода.

Аналогичные реакции ядер изотопов кислорода наблюдаются и в воде, поэтому локальное гидрирование оболочек идет не только со стороны топлива, но и со стороны теплоносителя.

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, значение энергии которых описывается формулой:

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

где E<sub>0n</sub> – начальная энергия нейтрона до столкновения (для нейтронов спектра деления E<sub>0n</sub> = 0,1 ÷ 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 ( $\xi = 0,948$ ) [2] и с рассеянием нейтронов при этих столкновениях ( $\overline{\cos\varphi} = 0,324$ ) [2] энергия генерируемых протонов отдачи составит от 11 до 0,06 МэВ.

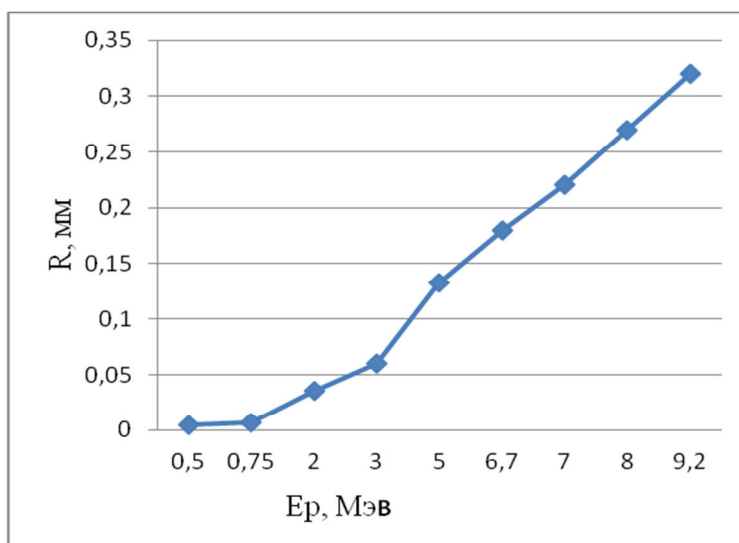
Если это произошло на границе вода-алюминий, часть протонов с такой энергией не только за счет термодиффузии, но и за счет высокой их проникающей способности, связанной с высокой кинетической энергией, проникают с границы вода-оболочка внутрь окисной пленки и, даже, в оболочку. Здесь, теряя энергию путем взаимодействия с ядрами металла оболочки, протоны останавливаются и, присоединяя один из множества свободных электронов металла, превращаются в атомы водорода внутри кристаллической решетки металла оболочки [7].

Величину линейного пробега в веществе протона с энергией  $E_p$  можно определить из условия равенства массовых пробегов частиц с одинаковым зарядом и с разной удельной плотностью среды [11]. Зависимости пробега протона в воздухе и алюминии от энергии представлены в таблице 1.

**Таблица 1.** – Пробег протонов в воздухе и алюминии

Энергия протона, МэВ	Пробег протона в воздухе, см	Пробег протона в алюминии, см
9,2	69,48	0,032
8	56,31	0,027
7	46,05	0,0221
6,7	38,07	0,018
5	27,72	0,0133
3	12,78	0,006
2	7,21	0,0035
0,75	1,48	0,0007
0,5	0,82	0,0004

Наглядно, зависимость пробега протона в алюминии согласно энергетическому спектру представлена на рисунке 2.



**Рис. 2.** – Пробег протонов отдачи в алюминии

Таким образом, максимальная длина проникновения протона, образовавшегося на границе вода-металл, при столкновении молекулы воды с нейтроном, обладающим энергией в 9,2 МэВ, составляет для алюминия 320 микрон. При этом, сравнив количество ядер кислорода – источника протонов отдачи, со стороны ядерного топлива и со стороны замедлителя, получим рисунок, качественно описывающий указанный процесс ядерного гидрирования оболочки из алюминия со стороны топлива и замедлителя (рисунок 3).

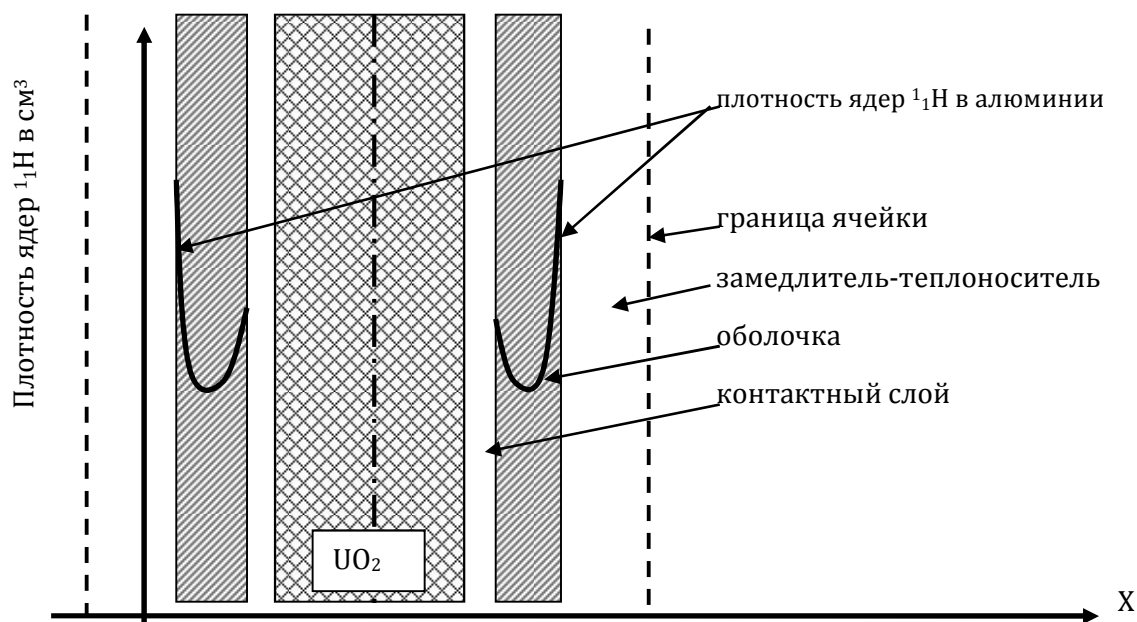


Рис. 3. – Распределение протонов отдачи в оболочке из алюминия со стороны ядерного топлива и со стороны замедлителя

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

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Определение нейтронно-физических характеристик активной зоны реактора ИР-100 : Отчет о научно-исследовательской работе [Текст] / СНУЯЭиП. — Севастополь, 2003. – 50 с.
2. Гордеев, И.В. и др. Ядерно физические константы. Справочник [Текст] / И.В. Гордеев, Д.А. Кардашев, А.В. Малышев. – М.: Госатомиздат, 1963. – 507 с.
3. Кипин, Дж.Р. Физические основы кинетики ядерных реакторов [Текст] / Дж.Р. Кипин – М.: Атомиздат, 1967.
4. Саркисов, А.А. и др. Физические основы эксплуатации ядерных паропроизводящих установок [Текст] / А.А.Саркисов, В.Н. Пучков. – М. : ЭАИ, 1989. – 504 с.
5. Климентов, В.Б. и др. Активационные измерения потоков и спектров нейтронов в ядерных реакторах [Текст] / В.Б. Климентов, Г.А. Копчинский, В.В. Фрунзе. – М.: Издательство стандартов, 1974. – 207 с.
6. Меднис, И.В. Справочные таблицы для нейтронно-активационного анализа [Текст] / И.В. Меднис – Рига: Издательство «Зинатне», 1974. – 410 с.
7. Бродер, Д.Л. и др. Биологическая защита транспортных реакторных установок [Текст] / Д.Л. Бродер, С.А. Козловский, В.С. Кызыуров, К.К. Попков – М.: Атомиздат, 1969.
8. Чиркин, В.С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники. Справочник [Текст] / В.С. Чиркин. – М.: Атомиздат, 1968. – 484 с.

9. Влияние облучения на материалы и элементы электронных схем. Перевод с английского [Текст] / Под ред. В.Н. Быкова и С.П. Соловьева. – М.: Атомиздат, 1967. – 427 с.
10. Бартоломей, Г.Г. и др. Основы теории и методы расчета ядерных энергетических реакторов [Текст] / Г.Г. Бартоломей, Г.А. Бать, В.Д. Байбаков, М.С. Алхутов. – М.: Энергоатомиздат, 1989. – 512 с.
11. Левин В.И. и др. Измерение ядерных излучений [Текст] / В.И. Левин, Л.П. Хамьянов. – М.: Атомиздат, 1969.

## REFERENCES

- [1] Opredelenie nejtronno-fizicheskikh harakteristik aktivnoj zony reaktora IR-100 [Definition of neutron-physical characteristics of the reactor core RR-100] : Otchet o nauchno-issledovatel'skoj rabote [Report on research work] / SNUJAJeIP, Sevastopol, 2003, 50p. (in Russian)
- [2] Gordeev I.V., Kardashev D.A., Malyshev A.V. Jaderno fizicheskie konstanty. Spravochnik [Nuclear physical constants. Directory]. M. Pub.: Gosatomizdat, 1963, 507 p. (in Russian)
- [3] Kipin Dzh.R. Fizicheskie osnovy kinetiki jadernyh reaktorov [Physical basis of the kinetics of nuclear reactors]. M. Pub: Atomizdat, 1967 (in Russian)
- [4] Sarkisov A.A., Puchkov V.N. Fizicheskie osnovy jekspluatacii jadernyh paroproizvodjashhijh ustanovok [Physical basis of the operation of nuclear steam generating plants]. M. Pub. JeAI, 1989, ISBN 5-283-03764-9, 504 p. (in Russian)
- [5] Klimentov V.B., Kopchinskij G.A., Frunze V.V. Aktivacionnye izmerenija potokov i spektrov nejtronov v jadernyh reaktorah [Activation flow measurement and spectra of neutrons in nuclear reactors]. M. Pub. Izdatel'stvo standartov [Publishing standards], 1974, 207 p. (in Russian)
- [6] Mednis I.V. Spravochnye tablicy dlja nejtronno-aktivacionnogo analiza [Reference tables for neutron activation analysis]. Riga: Izdatel'stvo «Zinatne» [The publishing house "Zinatne"], 1974, 410 p. (in Russian)
- [7] Broder D.L. Kozlovskij S.A., Kyzjurov V.S., Popkov K.K. Biologicheskaja zashhita transportnyh reaktornyh ustanovok [Biological protection of the transport reactor plants]. M. Pub. Atomizdat, 1969. (in Russian)
- [8] Chirkin V.S. Teplofizicheskie svojstva materialov jadernoj tehniki. Spravochnik [Thermal properties of materials for nuclear technology. Directory]. M. Pub. Atomizdat, 1968, 484 p. (in Russian)
- [9] Vlijanie obluchenija na materialy i jelementy jelektronnyh shem. Perevod s anglijskogo. [The effect of irradiation on the materials and the elements of electronic circuits. Translated by English]. Pod red. V.N. Bykova i S.P. Solovjeva. M. Pub. Atomizdat, 1967, 427 p. (in Russian)
- [10] Bartolomej G.G., Bat G.A., Bajbakov V.D., Alhutov M.S. Osnovy teorii i metody rascheta jadernyh jenergeticheskikh reaktorov [Basic theory and methods for calculation of nuclear power reactors]. M. Pub : Jenergoatomizdat, 1989, 512 p. (in Russian)
- [11] Levin V.I. Hamjanov L.P. Izmerenie jadernyh izluchenij [Measurement of nuclear radiation]. M. Pub. Atomizdat, 1969. (in Russian)

## About Cover Nuclear Hydrogenation of Aluminum Heat Allocating Elements of Research Reactor RR-100

**P.A. Ponomarenko, M.A. Frolova**

*Sevastopol State University  
1 Kurchatov St., Sevastopol, Crimea, Russia 299016  
e-mail: frolova-85@mail.ru*

**Abstract** – It is known that strength and fluidity increase under the influence of neutron radiation in aluminum and in its alloys, but the plasticity limit decreases that, owing to swelling of fuel composition, leads to cracking of aluminum heat allocating covers. The conducted researches showed that the reason of cracking of aluminum covers of reactors on thermal neutrons, is the slowed-down nuclear hydrogenation of aluminum in neutron fields, and the cracking of covers connected with plasticity loss, depending on the content of hydrogen in a crystal lattice of metal of covers. So, the protons which resulted from nuclear interaction of neutrons and kernels of metal, in connection with their low penetration, remain in a cover and form in it atoms of hydrogen that reduces work durability of aluminum heat allocating covers on their basic purpose.

*Keywords:* hydrogenation, neutron, aluminum, cover of the heat allocating element, nuclear fuel.