

P14-2003-245

А. Хофман, А. Ю. Дидык, Т. Коханьски, В. К. Семина

**РАДИАЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ В ОБОЛОЧКАХ  
ОТРАБОТАННЫХ ТЕПЛОВЫДЕЛЯЮЩИХ  
ЭЛЕМЕНТОВ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИХ РЕАКТОРОВ**



## 1. Введение

Отработанные тепловыделяющие элементы (ТВЭЛы) из многочисленных исследовательских реакторов в настоящее время не перерабатываются и, как правило, хранятся в воде, во временных «мокрых» реакторных хранилищах, многие из которых не рассчитаны на долгое хранение. В ряде стран это – главным образом ТВЭЛы ВВР-СМ, ВВР-М2, МР-6. Их оболочка сделана из алюминия, а топливо представляет собой дисперсные частицы  $UAl_x$  или  $UO_2$  в Al–матрице.

Хранение в «мокрых» хранилищах затянулось сверх запланированного периода. Существует общее мнение, что увеличение сроков хранения отработанных ТВЭЛов в воде более 50 лет может быть опасно с точки зрения обеспечения безопасности хранения [1]. Один из возможных вариантов дальнейшего хранения, альтернативный переработке, – размещение топлива в специальных, так называемых «сухих» хранилищах, отвечающих современным требованиям и обеспечивающих безопасность хранения в течение минимум 50 лет. Но для безопасной транспортировки ТВЭЛов из «мокрых» хранилищ в сухие нужна подробная информация о состоянии отработавших ТВЭЛов после работы в реакторе и длительного хранения в «мокрых» хранилищах. Информация должна включать в себя не только данные о коррозии алюминиевой оболочки ТВЭЛА и влиянии осколков деления на изменение механических и коррозионных свойств [2], но и характеристики пластической деформации ТВЭЛов, ползучести и хрупкости оболочки [3].

Принципиальные изменения свойств материалов активной зоны реактора связаны с облучением быстрыми нейтронами ( $E_n > 0,1$  МэВ). Облучение большими потоками  $\gamma$ -излучения, которое может вызывать значительную деградацию свойств органических материалов, на металлы преимущественно через реакции ( $\gamma, n$ ) влияет слабо из-за малого сечения реакции. При оценке состояния хранящихся ТВЭЛов необходимо также

учитывать остаточную радиацию из-за радиационных (радиоактивных) превращений продуктов деления топлива. Большинство таких продуктов деления ядер урана – это короткоживущие изотопы, которые распадаются до уровня, не дающего цепочки распада, за несколько дней или недель. Радиоизотопы с большим периодом полураспада (например,  $I^{127}$  с периодом полураспада 107 лет) имеют низкую активность. Поэтому основные источники  $\gamma$ -излучения в «мокрых» хранилищах – изотопы с периодом полураспада в несколько лет:  $Cs^{134}$  – 2,1 года,  $Cs^{137}$  – 30 лет,  $Co^{60}$  – 5,6 года. Другие изотопы, такие как тритий с периодом полураспада 12,3 года, эмитируют  $\beta$ -частицы малых энергий, которые не влияют на свойства материалов в «мокрых» хранилищах. Газообразный продукт деления,  $Kr^{85}$ , имеет период полураспада 10,76 года. Во время работы реактора каждое деление ядер урана дает два осколка деления с массами 140 и 95 а.е.м. и энергией 70 и 98 МэВ соответственно. Их пробег в алюминии составляет соответственно 12,3 и 15,9 мкм [4].

В работах [4, 5] мы исследовали влияние энергетических осколков деления на структуру поверхности алюминия, используя для имитации таких эффектов тяжелые ионы ксенона. Было показано, что при отжиге при температурах выше 250°C на поверхности, имплантированной ионами ксенона, происходит образование пузырьков и губчатой структуры, а при температуре отжига 480°C – даже микротрещин.

Изменяя структуру поверхности, осколки деления ядер урана влияют также на хрупкость оболочки, в которой образуются слой с радиоактивными повреждениями, вызванными упругими столкновениями осколков деления с атомами алюминия, и слой ионной имплантации.

Облучение быстрыми нейтронами ( $E_n > 0,1$  МэВ) с параметрами (флюенс, температура), характерными для работы исследовательских реакторов, главным образом влияет на механические свойства материалов, повышая их прочностные свойства и снижая пластические. Снижение пластичности не оказывает вредного влияния при хранении твэлов, особенно после

относительно небольшого времени их работы в реакторе, т. к. они находятся в статическом состоянии и динамические воздействия, вызывающие образование трещин в оболочке, отсутствуют. Однако динамические воздействия появляются при манипулировании твэлами и при их перегрузке. При длительном времени работы твэлов в реакторе консеквенции могут быть значительными. В работе [2] приведен случай повреждения твэлов при перегрузке топлива в реакторе EWA (Польша). Для определения механических свойств оболочки твэлов после их работы в реакторе необходимо удалить из оболочки топливо. Для случая механической и химической реакции топлива с оболочкой это – непростая задача (для этого следует выполнить химическое растворение или механическое удаление топлива из оболочки), для чего требуются «горячие» камеры для работы с топливом. При отсутствии таких возможностей приходится исследовать образцы-свидетели из материала оболочки, облученные в исследовательских реакторах.

Значительный интерес представляют имитационные исследования с использованием тяжелых ионов. Так, в нашей работе по исследованию аустенитной стали [6] была установлена корреляция между изменением механических свойств после облучения нейтронами и тяжелыми ионами. Поэтому стало возможным проведение имитационных экспериментов по изучению влияния нейтронного облучения с применением тяжелых ионов высоких энергий. При этом скорости набора одинаковой дозы повреждений в исследовательском реакторе MARIA и на ионах неона с энергией 11,5 МэВ/нуклон соотносятся как 1:50000 [7].

В данной работе представлены результаты исследования механических свойств Al (образцов-свидетелей), облученных быстрыми нейтронами ( $E_n > 0,1$  МэВ) в исследовательском реакторе EWA, а также радиационного упрочнения после облучения тяжелыми ионами для имитации воздействия энергетических осколков деления на материал оболочки твэла.

## 2. Методика эксперимента

Миниатюрные образцы для испытаний на растяжение были сделаны из алюминиевой фольги толщиной 46 и 86 мкм и имели размер рабочей части 15×3 мм. Для определения корреляции между свойствами миниатюрных и стандартных образцов исследовали также образцы толщиной 1 мм. Все образцы были отожжены в вакууме  $1,33 \cdot 10^{-3}$  Па при температуре 400°C в течение 8 ч.

Облучение нейтронами ( $E_n > 0,1$  МэВ) проводилось на реакторе EWA (Сверк, Польша), где поток быстрых нейтронов ( $E_n > 0,1$  МэВ) составлял  $1,38 \cdot 10^{17}$  нейтрон/м<sup>2</sup>с. Температура образцов во время облучения не превышала 353 К.

Образцы для измерения микротвердости облучались тяжелыми ионами Хе<sup>129</sup> с энергией 124 МэВ при температурах, близких к комнатной. Плотность потока ионов составляла  $2,5 \cdot 10^{11}$  ион/см<sup>2</sup>с, максимальная доза –  $10^{15}$  ион/см<sup>2</sup> [8].

Микротвердость была измерена на микроскопе Neophot-2. Нагрузка подбиралась так, чтобы глубина внедрения индентора была в несколько раз меньше длины пробега ионов. Поэтому можно считать, что измеренное значение микротвердости характеризует свойства слоя, упрочненного облучением.

Облучение образцов в виде сборки из 22 штук толщиной 46 мкм для испытаний на растяжение тяжелыми ионами Аг<sup>40</sup> с энергией 40 МэВ/нуклон осуществлялось на ускорителе У-400М. Одновременное облучение сборки образцов позволяло плавно изменять дозу повреждения в соответствии с ходом кривой сечения дефектообразования по пробегу ионов аргона (рис.1). Проективный пробег таких ионов в Аl достигает  $\approx 1$  мм. Испытания на растяжение проводились при комнатной температуре на машине TIRA-TEST при скорости деформации  $0,55 \cdot 10^{-4}$  с<sup>-1</sup>.

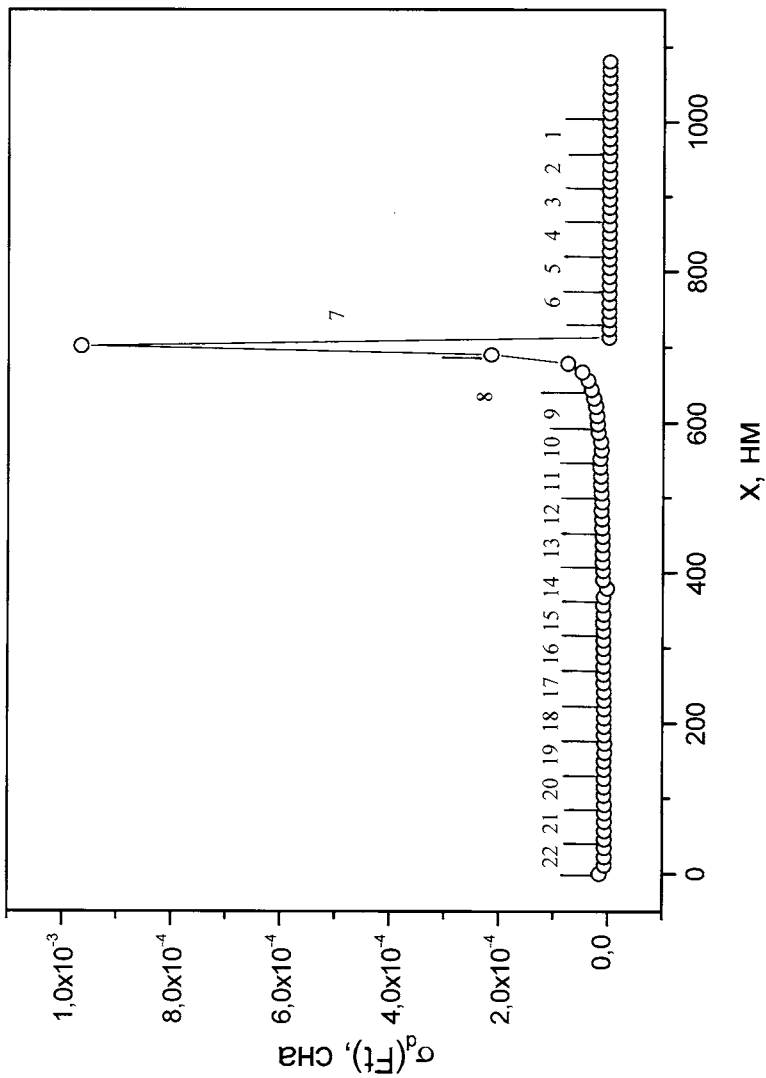


Рис.1. Зависимость дозы повреждения алюминия ионами аргона с энергией 40 МэВ/нуклон. Цифрами 1–22 обозначены номера тонких образцов в сборке, свойства которых представлены в табл.3. Расчеты выполнены по программе TRIM

### 3. Результаты исследований и обсуждение

#### 3.1. Радиационное упрочнение оболочек из алюминия после облучения быстрыми нейтронами ( $E_n > 0,1$ МэВ)

Как сказано в введении, для определения механических свойств оболочки отработанных твэлов нужны «горячие» камеры для работы с топливом (защита минимум 1000 Ки). Другой путь – определение этих свойств (с определенной точностью) на образцах-свидетелях, облученных в исследовательских реакторах EWA и MARIA. Результаты испытаний на растяжение образцов алюминия после облучения нейтронами в реакторе EWA представлены в табл.1 и на рис.2.

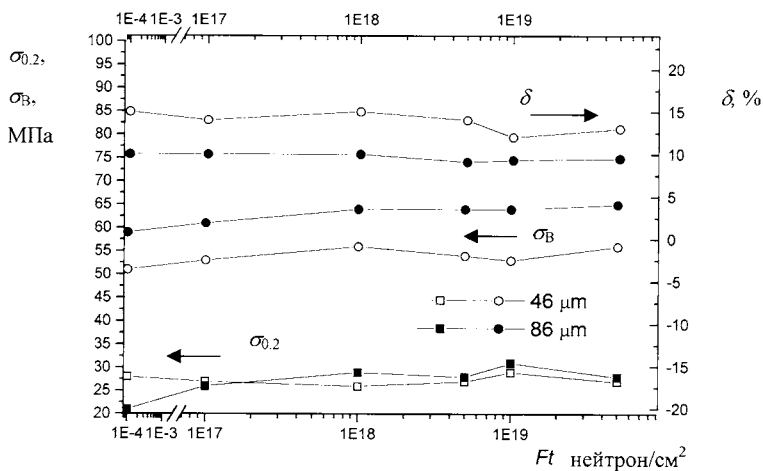


Рис.2. Изменение механических свойств Al (предела текучести  $\sigma_{0,2}$ , предела прочности  $\sigma_B$  и относительного удлинения  $\delta$ ) в зависимости от флюенса нейтронов ( $E_n > 0,1$  МэВ) (миниатюрные образцы толщиной 46 и 86 мкм; отжиг 480°C, 8 ч)



Таблица 1. Механические свойства Al после облучения быстрыми нейтронами ( $E_n > 0,1$  МэВ)

Состояние материала	Флюенс, нейтрон/см <sup>2</sup>	Доза, сна	Толщина образца	Предел текучести $\sigma_{0,2}$ , МПа	Предел прочности $\sigma_B$ , МПа	Относительное удлинение $\delta$ , %
Исходное	0	0	46	105	112	1,2
Исходное	0	0	86	147	148	3,8
Отожженное	0	0	46	28	51	10
Отожженное	0	0	86	21	59	13
Отожженное	$1 \times 10^{17}$	$3,1 \times 10^{-5}$	46	27	53	10
Отожженное	$1 \times 10^{17}$	$3,1 \times 10^{-5}$	86	26	61	14
Отожженное	$1 \times 10^{18}$	$3,1 \times 10^{-4}$	46	26	56	10
Отожженное	$1 \times 10^{18}$	$3,1 \times 10^{-4}$	86	29	64	15
Отожженное	$5 \times 10^{18}$	$1,55 \times 10^{-3}$	46	27	54	9,1
Отожженное	$5 \times 10^{18}$	$1,55 \times 10^{-3}$	86	28	64	14
Исходное	$1 \times 10^{19}$	$3,1 \times 10^{-3}$	46	114	119	1,3
Исходное	$1 \times 10^{19}$	$3,1 \times 10^{-3}$	86	165	172	2,4
Отожженное	$1 \times 10^{19}$	$3,1 \times 10^{-3}$	46	29	53	9,3
Отожженное	$1 \times 10^{19}$	$3,1 \times 10^{-3}$	86	31	64	12
Отожженное	$1 \times 10^{19}$	$1,55 \times 10^{-2}$	46	27	56	9,5
Отожженное	$1 \times 10^{19}$	$1,55 \times 10^{-2}$	86	28	65	13

Как видно из рис.2, облучение образцов-свидетелей из Al-фольги быстрыми нейтронами ( $E_n > 0,1$  МэВ) до флюенса  $5 \times 10^{19}$  нейтрон/см<sup>2</sup> не изменило их механических свойств (не вызвало повышения пределов текучести и прочности, понижения относительного удлинения). Однако надо заметить, что оболочки твэлов во время работы в реакторе (до выгорания) получают значительно большую дозу порядка  $2,5 \cdot 10^{21}$  нейтрон/см<sup>2</sup> (образцы-свидетели до такого же флюенса облучаются в реакторе MARIA (Сверк) в настоящее время; экспозиция заканчивается в 2004 г.) и их механические свойства изменяются. Так, для конструкционных элементов (сепаратор) реактора EWA из сплава САВ-1 (Al-Mg-Si) при дозе  $2,1 \times 10^{21}$  нейтрон/см<sup>2</sup> прирост предела текучести составил ~52%, а уменьшение относительного удлинения достигло ~9,4% [9].

### **3.2. Влияние облучения тяжелыми ионами на упрочнение алюминиевой оболочки**

Как известно, осколки деления ядер урана влияют на упрочнение внутренней поверхности оболочки. Используя имитацию этого процесса с применением облучения тяжелыми ионами ксенона ( $E=124$  МэВ), определили радиационное упрочнение оболочки Al. Результаты измерения микротвердости образцов алюминия, облученных ионами ксенона, показаны на рис.3.

Пороговая доза, т.е. доза, начиная с которой наблюдается значительное изменение микротвердости, составляет  $\sim 2,5 \cdot 10^{-4}$  сна ( $\sim 9 \cdot 10^{13}$  ион/см<sup>2</sup>). Если поток высокоэнергетических осколков деления принять равным  $5 \cdot 10^9$  ион/см<sup>2</sup>·с [4], то после 100 часов доза составит  $2,3 \cdot 10^{-1}$  сна ( $1,8 \cdot 10^{15}$  ион/см<sup>2</sup>) и прирост микротвердости  $\Delta \sim 30$   $\mu$ HV. Но надо учитывать, что дозовая зависимость радиационного упрочнения для ряда чистых металлов (V, Ni, Cr) имеет тенденцию к насыщению в интервале доз повреждений  $10^{-4}$ – $10^{-2}$  сна; для алюминия насыщение будет при большей

дозе повреждению,  $>2 \times 10^{-1}$  сна (рис.2, [8]). Наши исследования показали, что в результате воздействия тяжелых ионов, имитирующих воздействие энергетических осколков деления, внутренняя часть алюминиевой оболочки твэлов исследовательских реакторов толщиной 12–19 мкм испытывает радиационное упрочнение; при этом прирост ее микротвердости составляет  $\sim 30$   $\mu\text{HV}$ .

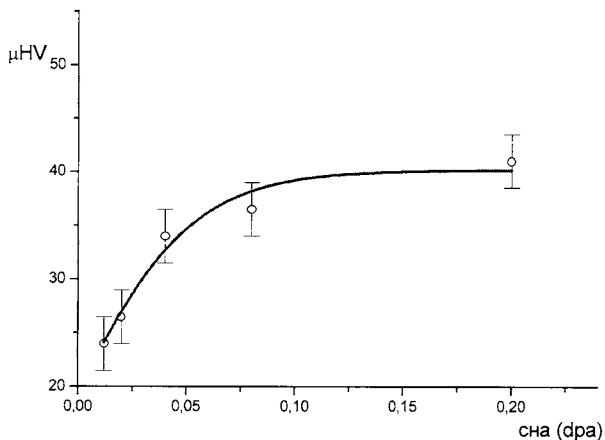


Рис.3. Зависимость прироста микротвердости алюминия, облученного ионами ксенона с энергией 124 МэВ, от флюенса

Пороговая величина предела текучести, определенная на образцах Al толщиной 46 мкм, собранных в пакет из 22 образцов, облученных ионами  $\text{Ar}^{40}$  энергией 40 МэВ/а.е.м на ускорителе У-400М, составляет  $\sim 3 \cdot 10^{-4}$  сна (рис.1, табл.2). Ускоритель У-400М расширяет возможности для исследования механических свойств металлов, поскольку пробег ионов в Al составляет  $\sim 1$  мм, что позволяет одновременно облучать более 20 миниатюрных образцов толщиной 46 мкм или стандартные образцы толщиной 1 мм.

Таблица 2. Механические свойства Al после облучения ионами  $Ag^{40}$  энергией 40 МэВ/а.е.м. флюенсом  $1,3 \cdot 10^{13}$  ион/см<sup>2</sup> на ускорителе У-400М (пакет из 22 образцов толщиной 46 мкм)

№ образца (рис.1)	Предел текучести $\sigma_{0,2}$ , МПа	Предел прочности, $\sigma_B$ , МПа	Относительное удлинение $\delta$ , %
4	29,1	56,7	10,4
5	28,2	57,9	11,2
6	25,9	57,7	11,6
7	26,0	58,9	10,1
8	24,7	55,1	9,4
9	28,8	54,6	9,5
10	26,0	55,3	9,6
11	25,0	57,3	11,6
12	26,7	56,5	13,2
13	26,3	54,9	10,3
14	25,5	57,5	11,5
15	28,8	56,7	10,7
16	36,5	56,8	10,4
17	28,7	56,0	9,4
18	30,8	54,9	7,6
19	29,9	55,9	10,0
20	26,4	56,9	12,4
21	26,2	57,6	11,5
22	27,9	54,9	11,0

В исходном состоянии среднее значение  $\sigma_{0,2}=27,8$  МПа,  $\delta=10,0\%$ ; в облученном состоянии среднее значение для 19 образцов (№№4–22)  $\sigma_{0,2}=27,7$  МПа,  $\delta=10,5\%$

#### 4. Выводы

1. В результате воздействия тяжелых ионов, имитирующих воздействие энергетических осколков деления, внутренняя часть алюминиевой оболочки твэлов исследовательских реакторов толщиной 12–19 мкм испытывает радиационное упрочнение: прирост микротвердости составляет ~30  $\mu\text{HV}$ .
2. Облучение нейтронами ( $E_n > 0,1$  МэВ) образцов-свидетелей до флюенса  $5 \cdot 10^{19}$  нейтрон/см<sup>2</sup> не изменило их механических свойств, но при максимальном выгорании флюенс нейтронов ( $E_n > 0,1$  МэВ) на оболочке твэлов составляет  $2,5 \cdot 10^{21}$  нейтрон/см<sup>2</sup>. Механические свойства образцов-свидетелей, облученных до этого флюенса, будут определены после окончания облучения в 2004 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Иванов С.Н., Конобеев Ю.В., Старков О.В., Поролло С.И., Дворяшин А.М., Шелупин С.В. Материаловедческие исследования твэлов, облученных в реакторе Обнинской АЭС, после 38-летней выдержки в хранилище // *Атомная энергия*, 2000, т.88, №3, с.183–188.
2. Kozieł J., Hofman A. Przegląd i analiza doswiadczeń swiatowych w zakresie zachowania się paliwa reaktorów badawczych podczas eksploatacji i składowania w srodowisku wodnym. *Raport IAE-84A*. Otwock-Świerk, 2002.
3. Sindelar R.L., Peacock H.B., Jr, Lam P.S., Iyer N.C., Louthan M.R., Jr. Acceptance criteria for interim dry storage of aluminium-alloy clad spent nuclear fuels (U). // Savannah River Technology Center. Applied Science and Engineering Technology Department. Materials Technology Section. *Preprint WSRC-TR-95-0347*, 1996, 35 pp.
4. Хофман А., Дидык А.Ю., Семина В.К. Изменение структуры поверхности при десорбции имплантированного ксенона, криптона и других газов // *Физика и химия обработки материалов*, 2003, №2, с.24–30.

5. Хофман А., Дидык А.Ю. Эволюция структурных дефектов в алюминии, облученном ионами ксенона // *Физика и химия обработки материалов*, 2002, №4, с.5–8.
6. Бондаренко Г.Г., Дидык А.Ю., Хофман А., Коханьски Т., Щеголев В.А. Радиационное упрочнение и эволюция микроструктуры аустенитной хромоникелевой стали под действием различных видов излучений // *Известия РАН. Металлы*, 1997, №3, с.83–88.
7. Szpunar E., Hofman A. Symulacja uszkodzeń radiacyjnych // *Przegląd Mechniczny* (Warsaw), 1989, №9, p.28–39.
8. Дидык А.Ю., Регель В.Р., Скуратов В.А., Михайлова Н.Ю. Радиационное упрочнение металлов, облученных тяжелыми ионами // *Журнал технической физики*, 1989, т.59, с.65.
9. Hajewska E. Investigation of the properties of aluminium alloys used in the construction of nuclear research reactors // *Raport IAE-2155/VI*, Otwock-Świerk, 1993.

Получено 28 декабря 2003 г.

Хофман А. и др.

P14-2003-245

Радиационные эффекты в оболочках отработанных тепловыделяющих элементов исследовательских реакторов

Представлены результаты исследования механических свойств Al-образцов-свидетелей, облученных быстрыми нейтронами ( $E_n > 0,1$  МэВ) до флюенса  $5 \cdot 10^{19}$  нейтрон/см<sup>2</sup> в исследовательском реакторе EWA, Сверк, Польша. Для моделирования повреждений, созданных осколками деления на внутренней поверхности оболочки твэлов, образцы алюминия были облучены тяжелыми ионами Xe<sup>129</sup> с энергией 124 МэВ. Изучено влияние радиационных повреждений на радиационное упрочнение алюминиевых образцов.

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

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2003

#### Перевод авторов

Hofman A. et al.

P14-2003-245

Radiation Effects in Fuel Cladding of Research Reactors

The results of the study on mechanical properties of Al samples irradiated with fast neutrons ( $E_n > 0.1$  MeV) up to fluence  $5 \cdot 10^{19}$  neutron/cm<sup>2</sup> in the WWR-M type research reactor EWA, Swierk, Poland, are presented. In order to simulate the damage induced by fission recoils in the inner surface of EWA reactor fuel cladding, Al samples were irradiated with heavy 124 MeV Xe<sup>129</sup> ions. The effect of radiation damage on the radiation hardening for Al samples has been determined.

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

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2003

Редактор *М. И. Зарубина*  
Макет *Н. А. Киселевой*

Подписано в печать 17.02.2004.  
Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.  
Усл. печ. л. 0,75. Уч.-изд. л. 0,83. Тираж 280 экз. Заказ № 54307.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований  
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.  
E-mail: [publish@pds.jinr.ru](mailto:publish@pds.jinr.ru)  
[www.jinr.ru/publish/](http://www.jinr.ru/publish/)