

УДК 621.039.543.46

**ИССЛЕДОВАНИЕ СВОЙСТВ ТАБЛЕТОЧНОГО УРАН-МОЛИБДЕНОВОГО ТОПЛИВА ДЛЯ ВВЭР**

*Картюк Л.А., Новиков В.В., Михеев Е.Н., Лысыков А.В., Сивов Р.Б., Федотов А.В., Дегтярев Н.А., Миссорин Д.С., Бахтеев О.А. (АО «ВНИИНМ», г. Москва)*  
e-mail: avlysikov@bochvar.ru

Авария на АЭС «Фукусима» (Япония) показала особую опасность пароциркониевой реакции, возникающей при повышении температуры оболочек твэлов после потери теплоносителя и всплеске реактивности. Основной разрушающий твэлы фактор связан с пароциркониевой реакцией при температуре выше 1473 К. Одним из методов ее предотвращения является использование ураноемкого топлива для уменьшения запасенной теплоты почти в 3—4 раза по сравнению с традиционным урановым топливом. В результате температура оболочки твэла снижается на 400—500 К.

Одним из типов такого топлива является металлическое на основе уран-молибденового сплава. Топливо на основе уран-молибденового сплава, помимо высокой теплопроводности, имеет на 60% большую ураноемкость, что позволяет снизить обогащение топлива и значительно уменьшить себестоимость топливного цикла, в частности, увеличить время между перегрузками и КИУМ.

Ранее уран-молибденовое топливо в реакторах типа ВВЭР применялось только в виде распределенного в матрице из магния на Билибинской АЭС и в испарительных каналах Белоярской АЭС. В настоящее время с матрицей из алюминия оно используется в твэлах исследовательских реакторов, но в них рабочая температура не превышает 473 К. В виде таблеток, а это конструктивная особенность твэлов ВВЭР, оно не использовалось. Поэтому настоящая работа представляет практический интерес.

Внимание к топливу на основе уран-молибденового сплава также повысилось после реакторных испытаний опытной партии укороченных твэлов для плавучих энергоблоков в реакторе МИР с топливной композицией в виде гранул ОМ-9, размещенных в пористой циркониевой матрице (20% пор). Размеры и материал оболочки твэла соответствовали используемым в активной зоне плавучей атомной теплоэлектростанции малой мощности «Академик Ломоносов». Несмотря на высокую линейную мощ-

ность до 450 Вт/см, твэлы достигли максимального выгорания 60 МВт-сут/кг без распухания и формоизменения, что позволяет предполагать перспективность использования сплава в ВВЭР.

Ранее таблетки из уран-молибденового сплава изготавливались методом литья с последующей механической обработкой, что является недостаточно технологичным и малопродуктивным методом. В настоящей работе рассмотрено и опробовано изготовление уран-молибденовых топливных таблеток методами порошковой металлургии, дающими возможность с минимальными изменениями использовать оборудование, которое применяется для изготовления топливных урановых оксидных таблеток, с минимальными изменениями [1].

Целью настоящей работы являлось комплексное исследование свойств таблеточного уран-молибденового топлива, изготовленного методами порошковой металлургии. Экспериментальные данные послужат обоснованием технического проекта на твэлы и в дальнейшем для верификации и лицензирования данного типа топлива.

Исследуемые образцы уран-молибденовых таблеток изготовлены по технологии, которая принята при производстве керамического ядерного топлива из диоксида урана, обогащенного  $^{235}\text{U}$  до 5% (рис. 1). Технология включает получение и подготовку шихты диоксида урана в смеси со связующим, прессование таблеток в матрице и спекание в газообразной среде. В данном случае в качестве исходного сырья использован уран-молибденовый порошок с содержанием молибдена 9,5% по массе, получен-



Р и с. 1. Внешний вид исследованных уран-молибденовых таблеток

ный методом термоцентрибежного распыления расплава из слитков [2].

**Исследование свойств.** Исследование плотности уран-молибденовых таблеток проведено гидростатическим методом. Полученные значения сравнивали с теоретической плотностью. Теоретическая плотность, рассчитанная на основе данных [3, 4] для уран-молибденового сплава с содержанием молибдена 9,5% по массе, составила 17,39 г/см<sup>3</sup>. Исследования показали, что уран-молибденовые таблетки, полученные методами порошковой металлургии, имеют плотность в диапазоне 86—91% теоретической.

Радиационное уплотнение и набухание топливных таблеток при эксплуатации определяются их микроструктурой [5]. Поэтому в работе было проведено сравнение параметров микроструктуры уран-молибденовых таблеток, полученных методами порошковой металлургии, с микроструктурой урановых оксидных таблеток. Исследования, которые проведены с помощью стандартной методики контроля, основанной на комбинировании электронной и оптической микроскопии и последующей обработки микроструктуры, показали ее стабильность по сечению и высоте таблетки [1, 6]. На рис. 2 видно, что границы гранул зачастую сходятся под углом 120°, сечения зерен образуют шестиугольники, что свидетельствует о высокой степени упорядоченности зерен и замедлении их скорости роста. Форма межзеренных пор и их расположение свидетельствуют о полном разрыве связанной пористости и завершении второй стадии спекания. По состоянию зеренной структуры можно сделать вывод о правильно подобранных режимах спекания. Исследование показало, что конечный размер зерна уран-молибденовых таблеток определяется размером

частиц исходного порошка. За время спекания размер зерен увеличивается на 2—5 мкм по сравнению с первоначальным размером частиц порошка, изменяя форму от сечений, близких к кругу, к сечениям, близким к шестиугольнику.

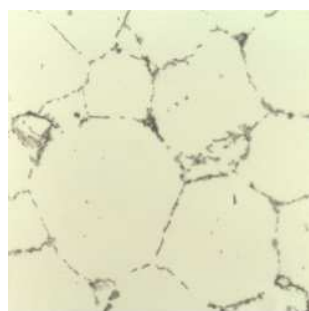
В таблице и на рис. 3 видно, что концентрация пор уран-молибденовых таблеток, особенно в области субмикронных пор, ниже до 5 раз по сравнению с таблетками оксидного уранового топлива и выше, чем уран-гадолиниевое топливо. При этом характер распределения пор по размеру такой же, как у оксидного уранового топлива. Из анализа микроструктуры уран-молибденовых таблеток следует, что поры расположены, главным образом, по границам зерен (см. рис. 2). Внутриверенная пористость незначительна и определяется технологическим режимом изготовления исходного уран-молибденового порошка. Существенные отличия от штатного оксидного уранового и уран-гадолиниевое топлива приходятся на область 2—40 мкм, что обусловлено большим количеством межзеренных пор в уран-молибденовом образце.

Параметры пористости уран-молибденовых таблеток

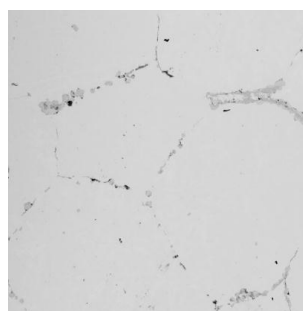
| Тип пор                             | U—Mo   | UO <sub>2</sub> | (U, Gd)O <sub>2</sub> |
|-------------------------------------|--------|-----------------|-----------------------|
| Концентрация пор, 1/мм <sup>2</sup> |        |                 |                       |
| Субмикронные 0,1—1 мкм              | 13 713 | 67 340          | 6547                  |
| Малые 1—10 мкм                      | 2339   | 3046            | 2329                  |
| Средние 10—100 мкм                  | 104    | 73              | 51                    |
| Все 0,1—100 мкм                     | 16 206 | 70 459          | 8927                  |
| Количественная доля пор, %          |        |                 |                       |
| Субмикронные 0,1—1 мкм              | 85     | 96,6            | 73,3                  |
| Малые 1—10 мкм                      | 14,4   | 4,3             | 26,1                  |
| Средние 10—100 мкм                  | 0,6    | 0,1             | 0,6                   |
| Все 0,1—100 мкм                     | 100    | 100             | 100                   |



а



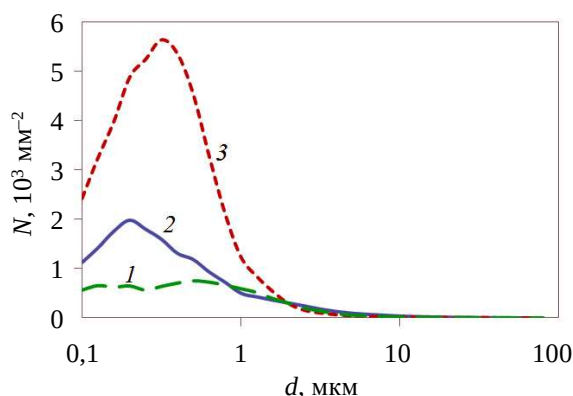
б



в

Р и с. 2. Микроструктура, полученная на оптическом (а, б) и электронном микроскопе (в)

Термическое расширение определяли на dilatометре в динамической атмосфере гелия в интервале 313—1273 К. Dilатометр калибровали методом схлопывания на стандартных веществах In, Zn, Al, Au и эвтектике Ni—С. Коэффициент термического расширения при постоянном



Р и с. 3. Зависимость концентрации пор  $N$  уран-гадолиниевых таблеток с содержанием оксида гадолиния 8% по массе (1), уран-молибденовых таблеток (2) и таблеток из диоксида урана (3) от размера пор  $d$

давлении определяли как частную производную по температуре

$$k = \frac{1}{L_0} \left\{ \frac{\partial[\Delta L(T)]}{\partial T} \right\}_p,$$

где  $L_0$  — длина образца при 293 К.

Поскольку уран-молибденовые таблетки изготавливались по порошковой технологии, то их свойства можно считать изотропными. Поэтому плотность образцов при нагреве определяли из относительного термического расширения в соответствии с выражением

$$\rho(T) = \frac{\rho(T_0)}{(1 + \Delta L(T)/L_0)^3},$$

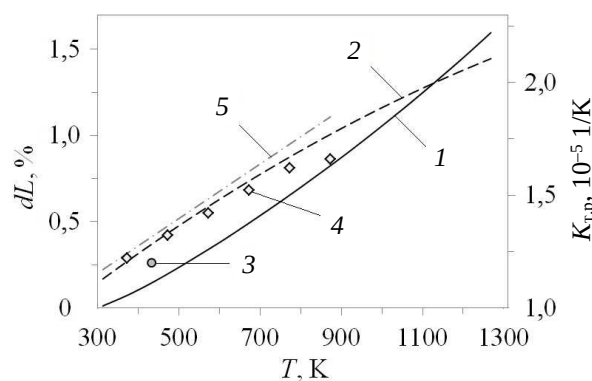
где  $\rho(T_0)$  — плотность образца при 293 К.

Удельную теплоемкость определяли на синхронном термоанализаторе в интервале 314—1264 К. Калибровку по температуре и чувствительности проводили на стандартных веществах In, Sn, Bi, Zn, Al и Au. Коэффициент температуропроводности находили методом лазерной вспышки. Теплопроводность рассчитывали по соотношению

$$\lambda(T) = \rho(T)C_p(T)\alpha(T), \quad (1)$$

где  $C_p$  — удельная теплоемкость;  $\alpha$  — коэффициент температуропроводности.

Температуру плавления исследовали с помощью dilatометра в динамической атмосфере гелия методом схлопывания прокладочных дисков [7]. Dilатометр с графитовой оснасткой калибровался так же, как при исследовании термического расширения.



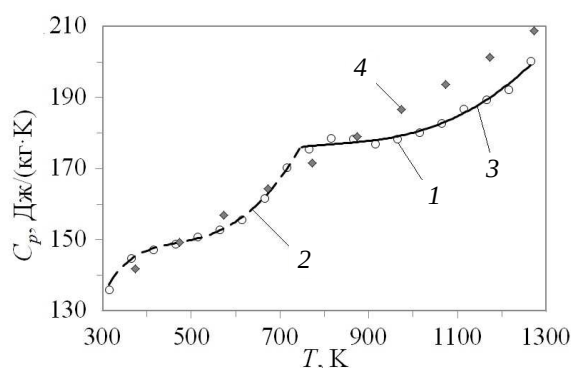
Р и с. 4. Термическое расширение  $dL$  (1) и коэффициент термического расширения  $K_{T,p}$  (2) исследованных уран-молибденовых образцов в сравнении с [8] (3), [9] (4), [10] (5)

На рис. 4 показаны усредненные термическое расширение и коэффициент термического расширения исследованных образцов с учетом неопределенностей, обусловленных приборной погрешностью и экспериментальным разбросом, в сравнении с экспериментальными [8, 9] и аппроксимированными данными [10] для уран-молибденовых сплавов с содержанием молибдена 9—10% по массе.

Разброс термического расширения и коэффициента термического расширения с учетом погрешности измерений не превысил 1,5 и 2% при среднем отклонении 1,1% при нагреве и охлаждении. Полученные значения такого разброса приняты за границы неопределенности экспериментальных результатов. Анализ рис. 4 показывает, что в пределах разброса экспериментальных данных усредненная зависимость коэффициента термического расширения исследованных образцов почти соответствует ранее полученным результатам [8—10].

Изменение удельной теплоемкости при нагреве, показанное на рис. 5, носит нелинейный характер. По этой причине для аппроксимации экспериментальных данных были выделены два диапазона: 314—744 и 749—1264 К. Измеренная удельная теплоемкость образцов для указанных диапазонов была аппроксимирована полиномиальными функциями

$$\begin{aligned} C_p &= 592,4017 - 0,9489T + 0,6945 \cdot 10^{-3}T^2 + \\ &\quad + 70,7914 \cdot 10^3/T; \\ C_p &= 689,4441 - 0,6258T + 0,2585 \cdot 10^{-3}T^2 - \\ &\quad - 142,0477 \cdot 10^3/T. \end{aligned} \quad (2)$$



Р и с. 5. Экспериментальная (1) и аппроксимированные (2, 3) температурные зависимости удельной теплоемкости  $C_p$  уран-молибденовых образцов в сравнении с [9] (4)

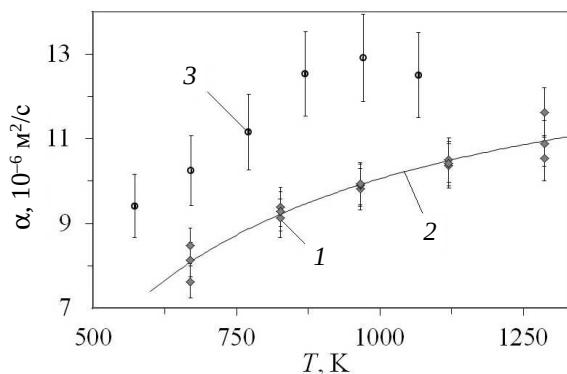
Максимальное отклонение экспериментальных данных от аппроксимированных функциями (2) не превысило 3,3% для всего рассмотренного температурного интервала. Анализ рис. 5 показывает, что удельная теплоемкость удовлетворительно согласуется в пределах неопределенностей, обусловленных приборной погрешностью и отклонением от аппроксимаций, с данными [9].

Температуропроводность уран-молибденового сплава с содержанием молибдена 10% по массе показана на рис. 6 в сравнении с данными [11]. Аппроксимация экспериментальных данных проводилась по выражению

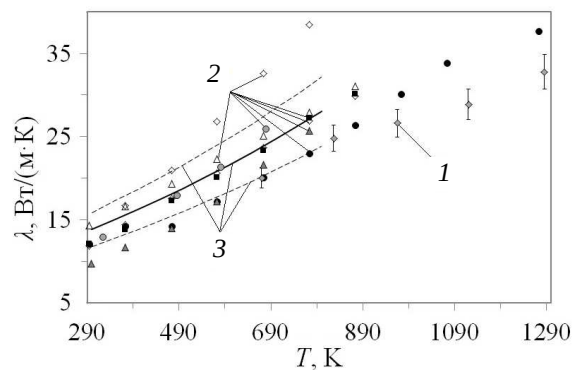
$$\alpha(T) = a + b/T,$$

где  $a = 1,40597 \cdot 10^{-5} \text{ м}^2/\text{с}$ ;  $b = -4,00118 \cdot 10^{-3} \text{ м}^2 \cdot \text{К}/\text{с}$  — коэффициенты аппроксимации.

Анализ рис. 6 показывает, что в интервале 650—1100 К температуропроводность уран-молибденового сплава с содержанием молибдена



Р и с. 6. Экспериментальная (1) и аппроксимированная зависимость (2) температуропроводности  $\alpha$  образца уран-молибденовой таблетки от температуры в сравнении с [11] (3)



Р и с. 7. Зависимость теплопроводности  $\lambda$  уран-молибденовых таблеток (1) от температуры в сравнении с [8—11] (2) и их аппроксимацией [10] (3)

9,5% по массе, изготовленного методом порошковой металлургии, уменьшается не более чем на 25% по сравнению с уран-молибденовым сплавом с содержанием молибдена 10% по массе, изготовленным методом литья.

На рис. 7 показана измеренная теплопроводность рассматриваемого в настоящей работе сплава, определенная по соотношению (1) с учетом погрешности 6,3%, в сравнении с уран-молибденовыми сплавами с содержанием молибдена 9—10,7% по массе [9, 10]. Анализ показывает совпадение экспериментальных и аппроксимированных данных до 900 К с учетом погрешности и неопределенности. При более высокой температуре теплопроводность таблеток, изготовленных по порошковой технологии, меньше примерно на 10% нижней границы модельной корреляции теплопроводности [10], которая рассчитана для изготовленных методом экструзии таблеток плотностью 98—99% теоретической. При этом следует отметить, что, несмотря на снижение теплопроводности, ее уровень остается достаточно высоким, что позволяет сохранить низкую температуру топлива в твэле на начальной стадии аварии с потерей теплоносителя и избежать пароциркониевой реакции.

Средняя температура пластичности и плавления по трем уран-молибденовым образцам составила 1360 и 1438 К соответственно, максимальное отклонение 15 и 2 К соответственно. Полученные результаты коррелируют с данными [12] для уран-молибденового сплава с содержанием молибдена 9% по массе (температура полного плавления составила 1433 К).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Лысиков А.В., Михеев Е.Н., Карпюк Л.А. и др. Оценка возможности изготовления уран-молибденового топлива для ВВЭР методами порошковой металлургии. — Атомная энергия, 2019, т. 127, вып. 5, с. 293—295.
2. Добрикова И.В., Ватулин А.В., Коновалов Ю.В. и др. Разработка уран-молибденового низкообогащенного высокоплотного топлива для российских исследовательских реакторов. — Вопросы атомной науки и техники. Материаловедение и новые материалы, 2012, вып. 2 (73), с. 20—29.
3. Dwight A. The uranium-molybdenum equilibrium diagram below 900 °C. — J. Nucl. Mater., 1960, v. 2, № 1, p. 81—87.
4. Material Properties of Unirradiated Uranium-Molybdenum (U—Mo) Fuel for Research Reactors. IAEA-TECDOC-1923. Vienna: IAEA, 2020.
5. Девятко Ю.Н., Новиков В.В., Кузнецов В.И., Хомяков О.В. Модель радиационного уплотнения оксидного ядерного топлива. — Ядерная физика и инжиниринг, 2015, т. 6, № 3—4, с. 139—153.
6. Бахтеев О.А., Лысиков А.В., Дегтярев Н.А. и др. Влияние параметров пористости топливных таблеток на их дроспекаемость. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы, 2018, № 4(95), с. 109—115.
7. Henderson J., Emmerich W., Wassmer E. A method for the temperature calibration of pushrod dilatometer. — J. Thermal Anal., 1987, v. 32, p. 1905—1913.
8. Konobeevsky S.T. Some physical properties of uranium, plutonium, and their alloys. — In: Proc. of the Second UN Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 1958, Paper P/2230.
9. Farkas M. Mechanical and Physical Properties of Fuels and Cladding Materials with Potential for Use in Brookhaven's Pulsed Fast Reactor. Rep. BMI-X-455, 1967.
10. U—Mo Fuel Handbook, Version 1.0. ANL-09/31, 2006.
11. Burkes D., Papesh C., Maddison A. e.a. Thermo-physical properties of DU—10 wt.% Mo alloys. — J. Nucl. Mater., 2010, v. 403, p. 160—166.
12. Hofman G. A Short Note on High Density Dispersion Fuels. Rep. ANL, 1996.

Поступила в Редакцию 13.12.21

УДК 621.039.54

**РАСПУХАНИЕ ДИСПЕРСИОННОЙ ТОПЛИВНОЙ КОМПОЗИЦИИ  
ИНТЕРМЕТАЛЛИД УРАНА—СИЛУМИН В ОПЫТНЫХ ТВЭЛАХ РЕАКТОРА СМ**

*Гильмутдинов И.Ф., Шишин В.Ю., Крюков Ф.Н., Никитин О.Н., Пименов В.В., Ефимов Е.И.*  
(АО «ГНЦ НИИАР», г. Димитровград)  
e-mail: gilif@yandex.ru

Основной тенденцией в концепции модернизации активной зоны реактора СМ является использование твэла со слабопоглощающим нейтроны матричным материалом для снижения потребления высокообогащенного урана и повышения плотности потока нейтронов. Для радиационных исследований изготовлены опытные дисперсионные твэлы разной конструкции. Варианты твэлов различались исполнением сердечников (монолитный или с вытеснителем), материалом топливных частиц (диоксид или интерметаллид урана). В качестве материала матрицы использовался силумин [1, 2].

Ранее послереакторными материаловедческими исследованиями было показано, что из двух вариантов опытных твэлов с топливными частицами диоксида урана удовлетворительной работоспособностью в условиях модернизированной активной зоны СМ обладает вариант с вытеснителем в сердечнике. В то же время определенные эксплуатационные перспективы имеет и твэл третьего варианта исполнения: с топливом  $U(Al, Si)_3$ —силумин и сплошным сер-

дечником с учетом освоенной технологии изготовления, разработанной во ВНИИНМ.

В настоящей статье приведены материаловедческие исследования твэлов третьего варианта исполнения после реакторных испытаний. Проанализировано распухание топливной композиции как одного из главных процессов при облучении, влияющего на работоспособность твэла.

**Характеристики твэлов и условия испытаний.** Опытные твэлы третьего варианта исполнения по геометрическим характеристикам и технологии изготовления (пропитка «под давлением в вакуум» засыпанной в оболочку и виброуплотненной топливной крупки расплавленным матричным материалом) аналогичны двум предыдущим, имеют крестообразную оболочку толщиной 0,2 мм из коррозионно-стойкой стали X16N15M3B (ЭИ-847) с закруткой по длине для самодистанционирования (рис. 1). Дисперсионная топливная композиция состоит из частиц интерметаллида урана  $U(Al, Si)_3$  и алюминий-циркониевого сплава  $Al_3Zr$  в матрице из