

УДК 621.039.542.33:342

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА УРАН-ГАДОЛИНИЕВЫХ ТОПЛИВНЫХ ТАБЛЕТОК ВВЭР С 3,35, 5 и 8% ПО МАССЕ ОКСИДА ГАДОЛИНИЯ

Федотов А.В., Михеев Е.Н., Лутков М.А. (АО «ВНИИНМ», г. Москва)

e-mail: anvfedotov@bochvar.ru

На АЭС с ВВЭР используется уран-гадолиниевое оксидное топливо с содержанием оксида гадолия 3,35, 5 и 8% по массе, теплофизические свойства которого необходимо уточнить для актуализации банка данных кодов Старт-4А и Рапта-5.2 при проектном обосновании работоспособности и безопасности твэлов тепловых реакторов, что требуется при лицензировании топлива в надзорных органах. Поэтому целью работы было определение термического расширения, удельной теплоемкости при постоянном давлении, температуро- и теплопроводности такого топлива.

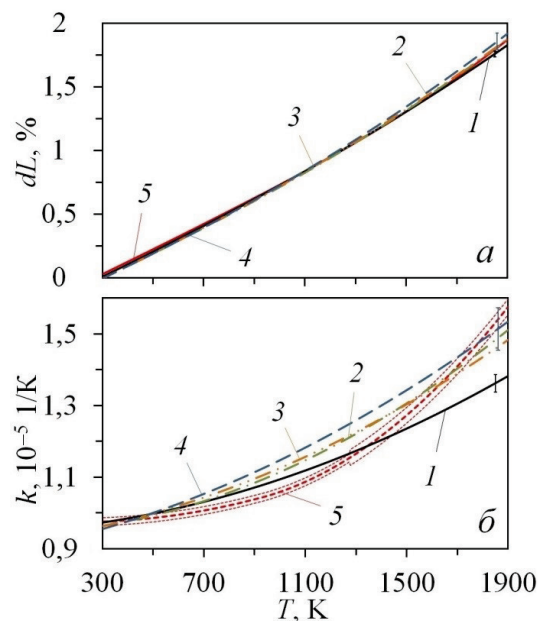
Образцы для испытаний. Для определения теплофизических свойств были взяты партии таблеток, изготовленных АО «МСЗ». Плотность таблеток, определенная гидростатическим методом, составляла 97—97,9% теоретической и рассчитывалась с учетом нестехиометрии образцов [1—3]. Твердый раствор типа $(U_{1-y}, Gd_y)O_{2-x}$, определенный методом рентгенофазового анализа, составлял не менее 95%. Отношение кислород—металл (О:М), полученное методом полярографии, было в пределах 1,992—2,000 [4]. В качестве реперной (без гадолия) была принята штатная партия таблеток диоксида урана [5]. Основные свойства топливных таблеток приведены в табл. 1.

Термическое расширение исследовали на 10 таблетках каждой партии высотой 10,3—11 мм. Удельную теплоемкость и температуропроводность определяли на изготовленных из соответствующих партий таблеток дисках высотой 0,9—1,4 мм, диаметром 5,5—6 мм. Для всех образцов отклонение от плоскопараллельности торцевых поверхностей не превышало 20 мкм.

Число образцов составляло не менее шести для каждой партии.

Исследовательское оборудование, калибровка приборов, режимы испытаний, за исключением температурного интервала 313—1484 К для удельной теплоемкости, и приборные погрешности соответствовали [5].

Анализ результатов. Измеренное усредненное термическое расширение и расчетный коэффициент k показывают отсутствие окисления образцов при нагреве в атмосфере гелия, поскольку привес их массы после испытаний не превысил 0,2 мг (рис. 1). Неизменность в пределах погрешности определения средней плотно-



Р и с. 1. Термическое расширение (а) и коэффициент термического расширения (б) диоксида урана (1), уран-гадолиниевое топливо с содержанием оксида гадолия, % по массе: 3,35 (2), 5 (3), 8 (4) в сравнении с диоксидом урана [6] (5)

Т а б л и ц а 1. Основные усредненные характеристики испытанных образцов уран-гадолиниевое топлива

Характеристика	Содержание Gd_2O_3 , % по массе			
	0	3,35	5	8
ρ , г/см ³	$10,59 \pm 0,03$	$10,54 \pm 0,03$	$10,52 \pm 0,03$	$10,41 \pm 0,03$
$\rho_{тп}$, %	$96,7 \pm 0,3$	$97,3 \pm 0,3$	$97,6 \pm 0,3$	$97,5 \pm 0,3$
Открытые поры, об. доля, %	$0,23 \pm 0,07$	$0,06 \pm 0,01$	$0,01 \pm 0,02$	$0,04 \pm 0,02$
О:М	$2,002 \pm 0,001$	$1,996 \pm 0,003$	$1,995 \pm 0,003$	$1,997 \pm 0,003$

сти по партиям таблеток после высокотемпературного нагрева свидетельствует также об отсутствии их дроспеваемости, что важно при анализе термического расширения при высокой температуре.

Температурная зависимость относительного термического расширения описывалась полиномом третьей степени

$$dL(T)/L_0 = a + bT + cT^2 + dT^3, \quad (1)$$

где L_0 — длина образца при 293 К, коэффициенты a, b, c, d полинома выражения (1) приведены в табл. 2.

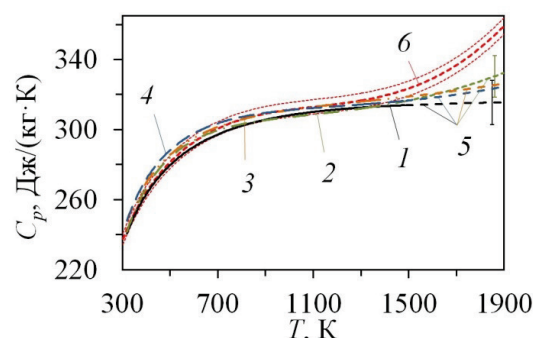
Т а б л и ц а 2. Аппроксимация по соотношению (1) измеренного термического расширения уран-гадолиниевое топлива с разным содержанием Gd_2O_3

$C, \% \text{ по массе}$	$a, 10^{-3}$	$b, 10^{-6} \text{ 1/К}$	$c, 10^{-9} \text{ 1/К}^2$	$d, 10^{-13} \text{ 1/К}^3$
0	–2,8092	9,4920	0,2613	3,0865
3,35	–2,9291	9,4264	0,1482	4,7326
5	–2,8997	9,2442	0,4861	3,4581
8	–2,8478	9,0207	0,739	3,251

Коэффициент термического расширения при постоянном давлении определяли как частную производную термического расширения по температуре

$$k = \frac{1}{L_0} \left\{ \frac{\partial [dL(T)]}{\partial T} \right\}_p.$$

Анализ экспериментальных и расчетных данных показывает отсутствие в пределах погрешности и разброса экспериментальных данных зависимости термического расширения и коэффициента термического расширения от содержания оксида гадолиния с ростом температуры в рассмотренном температурном интервале. Наблюдается незначительная тенденция роста коэффициента термического расширения уран-гадолиниевое топлива в сравнении с ди-



Р и с. 2. Удельная теплоемкость при постоянном давлении диоксида урана (1), уран-гадолиниевое топлива с содержанием оксида гадолиния, % по массе: 3,35 (2), 5 (3), 8 (4), аппроксимация до 1900 К (5) по уравнению (3) в сравнении с диоксидом урана [8] (6)

оксидом урана при температуре выше 1500 К с учетом экспериментальной погрешности. Отличие характера зависимости для диоксида урана, полученной в настоящей работе и [6], может быть обусловлено учетом экспериментальных данных для образцов разного изготовления и отношения О:М [7].

Плотность образцов при нагреве с учетом изотропности оксидов урана определяли из относительного термического расширения по выражению

$$\rho(T) = \frac{\rho(T_0)}{(1 + \Delta L(T)/L_0)^3}, \quad (2)$$

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

При определении теплоемкости привес массы образцов не превысил 0,2 мг, что также указывает на отсутствие их окисления при нагреве в атмосфере аргона. На рис. 2 показана измеренная усредненная удельная теплоемкость уран-гадолиниевое топлива с разным содержанием оксида гадолиния, аппроксимированная по соотношению

$$C_p(T) = a + bT + cT^2 + d/T, \quad (3)$$

коэффициенты a, b, c, d приведены в табл. 3.

Т а б л и ц а 3. Аппроксимация по соотношению (3) измеренной удельной теплоемкости уран-гадолиниевое топлива с разным содержанием Gd_2O_3

$C, \% \text{ по массе}$	$a, 10^2 \text{ Дж/(кг·К)}$	$b, 10^{-2} \text{ Дж/(кг·К}^2\text{)}$	$c, 10^{-5} \text{ Дж/(кг·К}^3\text{)}$	$d, 10^4 \text{ Дж/кг}$
0	3,6671	–2,5648	0,4850	–3,7686
3,35	4,3344	–11,6215	4,0583	–5,0669
5	3,8698	–5,3647	1,7178	–3,94
8	4,1412	–8,3339	2,568	–4,5322

Анализ показывает, что до температуры 1484 К удельная теплоемкость уран-гадолиниевое топлива почти совпадает в пределах экспериментальной погрешности с диоксидом урана и не зависит от концентрации оксида гадолиния. Предложенная температурная зависимость удельной теплоемкости диоксида урана [8] не подтверждается в экспериментальных работах как для UO_{2+x} , так и для уран-гадолиниевое топлива с разным содержанием оксида гадолиния [9]. Поэтому для последующего вычисления теплопроводности аппроксимация экспериментальных результатов была продлена до 1900 К по соотношению (3), что в целом согласуется с выводами.

Привес массы образцов при определении температуропроводности не превысил 0,4 мг, что указывает на их незначительное окисление при нагреве в атмосфере аргона. На рис. 3 показана экспериментальная усредненная температуропроводность уран-гадолиниевое топлива с разным содержанием оксида гадолиния с приведением к 95%-ной теоретической плотности в соответствии с [11] по соотношению

$$\alpha_{95}(T) = \alpha_{\text{эсп}}(T) \frac{1 - 0,05\gamma}{1 - 0,05} \frac{1 - P}{1 - \gamma P}$$

с последующей аппроксимацией данных согласно выражению

$$\alpha_{95}(T) = \frac{1}{a + bT}, \quad (4)$$

где a , b — коэффициенты, приведенные в табл. 4; P — относительная пористость; параметр $\gamma = 2,6 - 5 \cdot 10^{-4} (T - 273,15)$ [12].

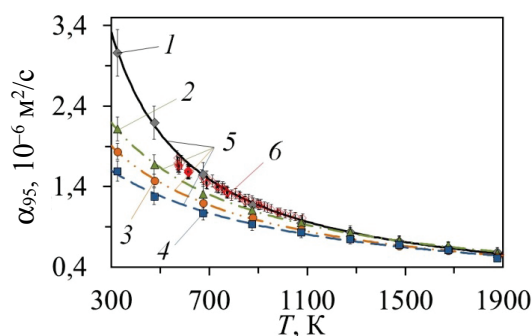


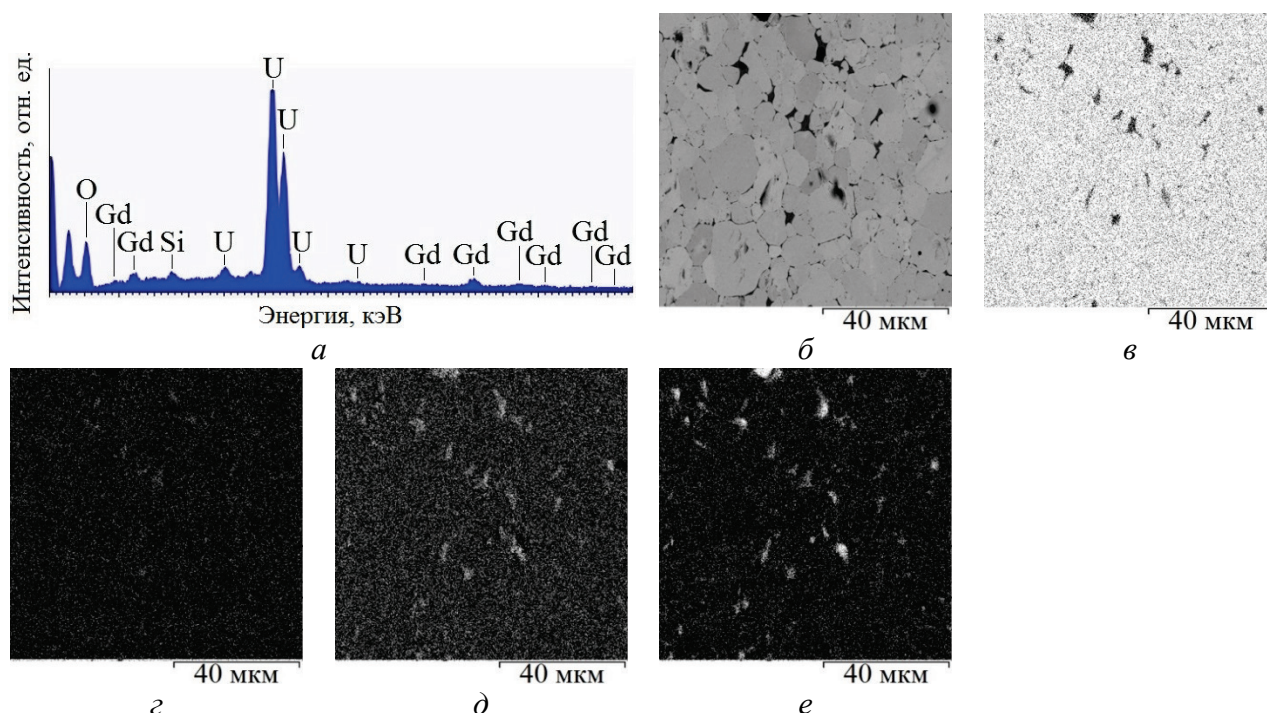
Рис. 3. Температуропроводность диоксида урана (1), уран-гадолиниевое топлива с содержанием оксида гадолиния, % по массе: 3,35 (2), 5 (3), 8 (4), аппроксимация (5) по уравнению (4) в сравнении с диоксидом урана [10] (6)

Таблица 4. Аппроксимация по соотношению (4) измеренной температуропроводности уран-гадолиниевое топлива с разным содержанием Gd_2O_3

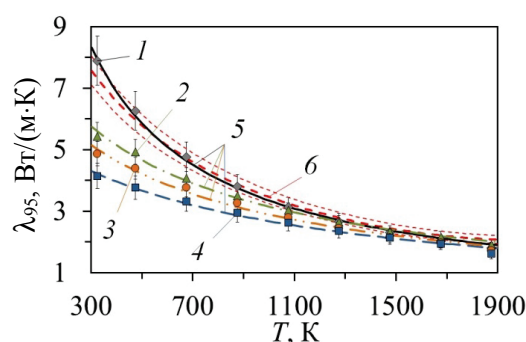
C, % по массе	a , 10^5 с/м ²	b , 10^2 с/(К·м ²)
0	0,2509	9,2199
3,35	2,2076	7,8255
5	2,7778	8,2477
8	3,9493	7,7017

Анализ показывает, что в температурном интервале 300—1100 К наблюдается снижение температуропроводности уран-гадолиниевое топлива с увеличением содержания оксида гадолиния. С ростом температуры различие температуропроводности снижается. В сравнении с диоксидом урана наблюдается существенное снижение температуропроводности в интервале 300—800 К: до 31, 40 и 48% при содержании оксида гадолиния 3,35, 5 и 8% по массе соответственно. При более 1100 К температуропроводность не зависит от содержания оксида гадолиния и совпадает в пределах экспериментальной погрешности. Достоверность результатов подтверждается корреляцией температуропроводности диоксида урана с результатами [10] в температурном интервале 550—1100 К.

Для проверки распределения гадолиния на поверхности уран-гадолиниевое топлива до и после высокотемпературного нагрева с воздействием лазерного излучения со стороны нижней поверхности дисков при определении температуропроводности проведен элементный анализ обеих торцевых поверхностей методом энергодисперсионной спектроскопии на сканирующем электронном микроскопе Hitachi TM 3000 (Япония). Условия съемки были следующие: сторона квадратного изображения 92,4 мкм, разрешение 512×512 пикселей, ускоряющее напряжение 15 кВ, время съемки 10,1 с, время картирования 5 мин. На рис. 4 показан пример картирования элементов для периферийного участка нижней части диска уран-гадолиниевое топлива с содержанием оксида гадолиния 8% по массе. Наличие кремния в виде SiO_2 обусловлено использованием абразивных материалов в процессе изготовления шлифов. В табл. 5 видна тенденция перераспределения гадолиния на верхней поверхности образца от центра к периферии, на нижней поверхности — от периферии к центру в результате высокотемпературного нагрева.



Р и с. 4. Содержание элементов (а) и сканирующая электронная микроскопия (б) периферийного участка нижней части диска уран-гадолиниевого топлива с содержанием Gd_2O_3 8% по массе в характеристическом рентгеновском излучении $Ma1$ U (в), $La1$ Gd (г), $Ka1$ O (д), $Ka1$ Si (е) с концентрацией 77,7, 6,7, 15, 0,6 % по массе соответственно



Р и с. 5. Теплопроводность диоксида урана (1), уран-гадолиниевого топлива с содержанием оксида гадолиния, % по массе: 3,35 (2), 5 (3), 8 (4), аппроксимация (5) по уравнению (4) в сравнении с диоксидом урана [8] (6)

На рис. 5 показана теплопроводность уран-гадолиниевого топлива с разным содержанием оксида гадолиния, приведенная к 95%-ной теоретической плотности, рассчитанная с учетом зависимостей (2), (3), (4) по соотношению

$$\lambda_{95}(T) = \alpha_{95}(T)\rho(T)C_p(T).$$

Аппроксимация расчетных данных проводилась по соотношению (4), коэффициенты которого приведены в табл. 6.

Т а б л и ц а 6. Аппроксимация по соотношению (4) расчетной теплопроводности, приведенной к 95%-ной теоретической плотности, уран-гадолиниевого топлива с разным содержанием Gd_2O_3

C , % по массе	a , 10^{-1} (м·К)/Вт	b , 10^{-4} м/Вт
0	0,4294	2,5545
3,35	1,1214	2,0504
5	1,2911	2,1652
8	1,7119	2,0227

Погрешность определения теплопроводности уран-гадолиниевых таблеток с учетом при-

Т а б л и ц а 5. Содержание гадолиния в исходных таблетках и на поверхности дисков после определения температуропроводности, % по массе

Содержание Gd_2O_3 , % по массе	C , % по массе				
	Исходные таблетки	Верхняя поверхность		Нижняя поверхность	
		периферия	центр	периферия	центр
3,35	2,91	$2,8 \pm 0,7$	$2,1 \pm 0,7$	$1,4 \pm 0,8$	$2,3 \pm 0,7$
5	4,34	$3,6 \pm 0,5$	$3,6 \pm 0,5$	$3,0 \pm 0,5$	$3,9 \pm 0,5$
8	6,95	$6,0 \pm 0,5$	$4,9 \pm 0,6$	$6,1 \pm 0,6$	$6,7 \pm 0,5$

борной ошибки и статистического разброса экспериментальных данных составила 8—10%. Удовлетворительная корреляция наблюдается с аналитической зависимостью [8] для диоксида урана. Характер рассчитанной зависимости теплопроводности почти полностью коррелирует с соответствующей зависимостью температуропроводности. Максимальное снижение теплопроводности в сравнении с диоксидом урана наблюдается при минимальной температуре и достигает 47% для уран-гадолиниевого топлива с содержанием оксида гадолиния 8% по массе.

Авторы выражают благодарность Н.М. Рысеву, Н.А. Дегтяреву и В.Е. Рукосуеву за подготовку образцов, Д.С. Миссорину, И.С. Еремину за помощь в проведении экспериментов.

Работа выполнена по заказу АО «ТВЭЛ».

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Топливные таблетки.** Методика измерений плотности и пористости с использованием гидростатического взвешивания. СТК-66—2017. М., АО «ТВЭЛ», 2017. 25 с.
2. **Ohmichi T., Fukushima S., Maeda A., Watanabe H.** On the relation between lattice parameter and O/M ratio for uranium dioxide — trivalent rare earth oxide solid solution. — J. Nucl. Mater., 1981, v. 102, p. 40—46.
3. **Федотов А.В., Михеев Е.Н., Лысиков А.В., Новиков В.В.** Теоретическая и экспериментальная плотность соединений (U, Gd)O₂ и (U, Er)O₂. — Атомная энергия, 2012, т. 113, вып. 6, с. 344—347. // **Fedotov A.V., Mikhchev E.N., Lysikov A.V., Novikov V.V.** Theoretical and Experimental Density of (U, Gd)O₂ and (U, Er)O₂. — Atomic Energy, 2013, v. 113, № 6, p. 429—434.
4. **Оксиды урана.** Методика полярографического измерения кислородного коэффициента. СТК-85—2018. М., АО «ТВЭЛ», 2018. 28 с.
5. **Федотов А.В., Лысиков А.В., Лутков М.А.** Теплофизические свойства уран-гадолиниевых топливных таблеток ВВЭР с 6—10% по массе оксида гадолиния. — Атомная энергия, 2023, т. 135, вып. 3—4, с. 120—126. // **Fedotov A.V., Lysikov A.V., Lutkov M.A.** Thermophysical properties of VVER uranium-gadolinium fuel pellets with 6—10wt% of gadolinium oxide // Springer Link, Published online 17.06.2024, <https://doi.org/10.1007/s10512-024-01096-6>.
6. **Martin D.** The thermal expansion of solid UO₂ and (U, Pu)O₂ mixed oxide — a review and recommendations. — J. Nucl. Mater., 1988, v. 152, p. 94—101.
7. **Федотов А.В., Миссорин Д.С., Михеев Е.Н.** Обзор термического расширения топливных таблеток UO_{2+x} и (U, Gd)O_{2+x}. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы, 2020, т. 103, вып. 2, с. 97—116.
8. **Fink J.** Thermophysical properties of uranium dioxide. — J. Nucl. Mater., 2000, v. 279, p. 1—8.
9. **Миссорин Д.С., Федотов А.В., Михеев Е.Н.** Обзор температурной зависимости теплоемкости топливных таблеток UO_{2+x} и (U, Gd)O_{2+x}. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Материаловедение и новые материалы, 2023, т. 119, вып. 3, с. 95—113.
10. **Ronchi C., Sheindlin M., Musella M., Hyland G.** Thermal conductivity of uranium dioxide up to 2900 K from simultaneous measurement of the heat capacity and thermal diffusivity. — J. Appl. Phys., 1999, v. 85, p. 776—789.
11. **Hirai M., Ishimoto S.** Thermal diffusivity and thermal conductivity of UO₂—Gd₂O₃. — J. Nucl. Sci. Techn., 1991, v. 28, p. 995—1000.
12. **Brandt R., Neuer G.** Thermal conductivity and thermal radiation properties of UO₂. — J. Non-Equilib. Thermodyn., 1976, v. 1, p. 3—23.

Поступила в Редакцию 02.10.24

УДК 621.039.531

ОСОБЕННОСТИ ФОРМОИЗМЕНЕНИЯ ТВЭЛОВ СО СМЕШАНЫМ НИТРИДНЫМ УРАН-ПЛУТОНИЕВЫМ ТОПЛИВОМ

Забудько Л.М., Грачев А.Ф. (АО «Прорыв», г. Москва), Поролло С.И., Мариненко Е.Е. (АО «ГНЦ РФ — ФЭИ», г. Обнинск), Звир Е.А., Беляева А.В., Крюков Ф.Н. (АО «ГНЦ НИИАР», г. Димитровград), Скупов М.В. (АО «ВНИИНМ», г. Москва)
e-mail: zlm@pnporyv.ru

Для обоснования работоспособности твэлов БРЕСТ-ОД-300 и БН-1200М в БОР-60 и БН-600 облучают экспериментальные ТВС со смешанным нитридным уран-плутониевым топливом. Проведенные в АО «ГНЦ НИИАР» послереакторные исследования показали, что характер их формоизменения отличается от формоизмене-

ния твэлов с оксидным топливом. Ранее [1] было показано, что нитридные твэлы имеют большее удлинение и овализацию оболочки, чем облученные в тех же условиях в составе одной сборки оксидные (рис. 1). Причиной такого различия является более сильное механическое воздействие нитридного топлива на оболочку.