

## НЕКОТОРЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДВУХСЛОЙНЫХ УРАН-ГАДОЛИНИЕВЫХ ТАБЛЕТОК

*Н.П. Одейчук, С.А. Сиренко, А.И. Большак, Е.А. Слабоспицкая, Н.М. Роечко*

*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,  
г. Харьков, Украина*

На современном этапе развития атомной энергетики большое внимание уделяется разработке твэлов на большие выгорания. В связи с этим первостепенное значение имеет повышение эксплуатационных характеристик таблеточного топлива, в том числе  $UO_2-Gd_2O_3$ .

### ВВЕДЕНИЕ

Повышение технико-экономических показателей АЭС связано с увеличением выгорания ядерного топлива. Увеличение кампании эксплуатации топливной загрузки ядерного реактора от 12 до 18 месяцев (и даже до 24) требует использования топлива с обогащением не менее 4,5 %. Для подавления высокой начальной реактивности в активную зону водородных реакторов предлагается вводить выгорающий поглотитель (ВП) нейтронов. Такой поглотитель нейтронов должен обладать высоким сечением захвата нейтронов и не образовывать нежелательных дочерних продуктов деления [1].

К настоящему времени разработаны несколько типов выгорающих поглотителей для использования в топливных таблетках. В частности, выгорающий поглотитель в виде тонкого слоя диборида циркония, нанесенного на топливные таблетки, разработан фирмой «Вестингауз» для реактора PWR. Интегрированный выгорающий поглотитель из диборида циркония ограничивает остаточную реактивность и обеспечивает более эффективное и полное выгорание топлива. Выделение энергии на концах твэла осуществляется в меньшей степени, поэтому покрытие из диборида циркония наносится только на те топливные таблетки, которые находятся в центральной части [2]. Поскольку интегрированные выгорающие поглотители используют нейтроны более эффективно, чем дискретные, требования к обогащению топлива снижаются. В результате стоимость топливного цикла уменьшается на ~ 3 % [3].

Среди известных поглотителей нейтронов В заметно уступает Gd. Работы по использованию Gd как поглотителя нейтронов завершились созданием конструкции твэлов, в которых Gd вводится в виде порошка  $Gd_2O_3$  непосредственно в порошок  $UO_2$  перед изготовлением топливных таблеток [4].

В настоящее время проводятся интенсивные работы по модернизации топливных циклов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000. Работы направлены на обеспечение более экономичного использования ядерного топлива при безусловном обеспечении безопасной и надежной работы энергоблоков. Одно из направлений модернизации - использование интегрированного в топливо выгорающего поглотителя - гадолия, размещаемого в части твэлов. Такой способ имеет ряд преимуществ перед применением ВП как самостоя-

тельного конструкционного элемента. Введение ВП в виде окиси гадолия ( $Gd_2O_3$ ) непосредственно в топливные таблетки избавляет от ограничений, связанных с размещением органов регулирования, не уменьшает количество твэлов в активной зоне, следовательно, не увеличивает линейное энерговыделение твэлов и тем самым экономится полезное место в тепловыделяющих стержнях (ТВС), уменьшается паразитное поглощение нейтронов, отпадает необходимость в транспортировке и хранении облученных ВП. Гадолий имеет высокое поперечное сечение захвата нейтронов и не вызывает образования нежелательных дочерних продуктов, обладает хорошей совместимостью с  $UO_2$  [5].

Добавка сильного ВП  $Gd_2O_3$  обеспечивает компенсацию начального избытка реактивности и позволяет осуществить прогнозируемое улучшение потенциальных характеристик энерговыделения в течение всей кампании. Широкие возможности в этом плане дает расчет наиболее выгодного с точки зрения полного выгорания топлива размещения  $Gd_2O_3$  по зоне реактора. В этой связи важно оптимальное распределение  $Gd_2O_3$  в самой топливной таблетке. Одним из способов выполнения этой задачи является развитие технологии двухслойных U-Gd-таблеток, в которых наружный (внешний) слой таблетки имеет повышенное содержание  $Gd_2O_3$ . [6].

Применение таких таблеток позволяет избежать вредного поглощения нейтронов на поздних стадиях кампании, когда исчезает начальный избыток реактивности. Кроме того, появляется возможность закладывать временные характеристики изменения реактивности, близкие к оптимальным. Основной проблемой в технологии двухслойных таблеток является получение прочной связи между слоями, обеспечивающей требуемые характеристики прочности и теплопроводности.

По мнению специалистов Научно-исследовательского электроэнергетического института США в ближайшее десятилетие следует ожидать существенного увеличения объемов использования интегрированного топлива  $UO_2+Gd_2O_3$ . В ННЦ ХФТИ проводятся работы по изучению влияния технологических параметров изготовления на характеристики (U,Gd) $O_2$ -таблеток.

В настоящей статье представлены результаты исследования некоторых характеристик экспериментального (U,Gd) $O_2$ -топлива.

## МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Таблица 1

Процентное соотношение между слоями  
 $Gd_2O_3$  к  $UO_2$

Слой	Соотношение $Gd_2O_3$ к $UO_2$ , %		
А	20	20	10
В	5	10	5

Исследование по отработке операций и режимов изготовления таблеточного оксидного топлива с добавками оксида гадолиния проводили с использованием порошка диоксида урана (ТУ 95.604-79) с размером частиц 10...15 мкм и оксида гадолиния (ГдО-5 ТУ 48-200-72) с размером частиц 5...8 мкм. Исходные порошки оксидов подвергались операции усреднения. Затем приготовленные смеси порошков загружали в резервуар планетарной центробежной мельницы и смешивали в течение 2 ч для усреднения концентрации  $Gd_2O_3$ .

Смешивание приготовленной порошкообразной шихты со связующим (на основе парафина растворенного в бензине) проводили в универсальном лопастном смесителе. В этом же смесителе, не извлекая материал, проводили его сушку в течение часа при постоянном перемешивании и нагреве.

Высушенная от бензина шихта проходила операцию уплотнения путем трехкратного прессования в брикеты и последующего их разрушения на сите с размером ячейки 630 мкм. Прессование таблеток из диоксида урана с выгорающим поглотителем на связующем производили двухсторонним прессованием в стальных пресс-формах на гидравлическом прессе П6320 при различных удельных давлениях. Процесс отгонки связующего проводили в вакууме в течение 4 ч. Тигель с таблетками после извлечения из печи отгонки помещали в высокотемпературную печь с графитовым нагревателем, изготовленную на базе вакуумной установки ВУМ-10. Процесс спекания проводили в вакууме при температуре 1800 °С.

Схема двухслойной таблетки показана на рис.1.

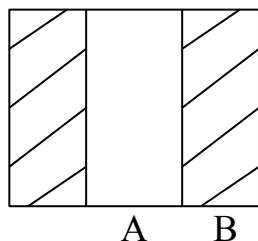


Рис.1. Схема двухслойной таблетки

В проведенных исследованиях использовался простой, надежный технологический метод формирования двухслойной структуры таблетки, основанный на одновременном прессовании сердечника правильной цилиндрической формы (слой В) с насыпной плотностью и засыпки между сердечником и стенками пресс-формы (слой А). Одновременное давление обеспечивает хорошую связь между слоями при сохранении четкой границы по концентрации  $Gd_2O_3$ . Было сформировано 3 вида структур. Процентное соотношение между слоями  $Gd_2O_3$  к  $UO_2$  показано в табл. 1.

Производился металлографический анализ структуры спеченных таблеток.

Исследование фазового состава и определение параметра решетки  $UO_2+Gd_2O_3$  производились на рентгеновской установке типа ДРОН в медном излучении с никелевым фильтром.

## РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Характерная структура спеченных  $(U,Gd)O_2$  таблеток приведена на рис.2. Наблюдается равномерная структура без видимых включений с некоторой долей пор и размером зерна 10...20 мкм. Граница раздела слоев размыта, что указывает на взаимную диффузию. В самой таблетке не наблюдаются раковины и дополнительные включения. Основные свойства спеченных  $(U,Gd)O_2$ -таблеток показаны в табл.2.

Рентгеноструктурный анализ показал, что оба слоя имеют одинаковую кристаллическую решетку -гранцентрированный куб. Дополнительных дифракционных линий на рентгенограммах образцов не обнаружено. Параметры кристаллической решетки обоих образцов определялись по дифракционной линии под большими углами отражения.

Параметры решетки:  $UO_2+10\%Gd_2O_3$  —  $a = (5,4458 \pm 0,0009) \text{ \AA}$ , что соответствует данным работ [6,7]. Металлографический анализ показал равномерное распределение пор и отсутствие непрореагированных частичек  $UO_2$  и  $Gd_2O_3$ . Таким образом, спеченные таблетки являются в действительности твердым раствором  $UO_2-Gd_2O_3$ . Это объясняет отсутствие линий  $Gd_2O_3$  на рентгенограммах образцов.



40 мкм

Рис. 2. Микроструктура спеченных таблеток

Поддержание отношения  $O/U=2$  является важнейшим требованием к таблеткам, так как при этом теплопроводность максимальна, а деформация, вызываемая ползучестью, минимальна, что обеспечивает размерную стабильность таблеток при облучении. Кроме того, выход газообразных продуктов деления минимален в  $(U,Gd)O_2$ -таблетках с отношением  $O/U$ , близким к 2,00.

Полученные в данной работе значения  $O/U$  в основном соответствуют требованиям ТУ 001346-92, так же как и плотность спеченных таблеток.

Основные свойства спеченных (U,Gd)O<sub>2</sub>-таблеток

Температура спекания, °С	Время спекания, ч	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +UO <sub>2</sub> , мас. %	ρ, г/см <sup>3</sup>	O/U
1700	2	5...10	10,24	2,02
		5...20	10,21	2,04
		10...20	10,19	2,08
1800	4	5...10	10,28	2,03
		5...20	10,32	2,06
		10...20	10,26	2,09
1800	6	5...10	10,30	2,04
		5...20	10,35	2,07
		10...20	10,28	2,11

### ВЫВОДЫ

Металлографический анализ выявил равномерное распределение пор и отсутствие непрореагированного Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Граница раздела слоев размыта, что указывает на взаимную диффузию. Рентгеноструктурный анализ определил, что спеченные таблетки являются в действительности твердым раствором UO<sub>2</sub>-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Получаемые таблетки отличаются высоким качеством (в готовых изделиях не выявлены следы дефектов и трещин). Значения плотности спеченных таблеток и кислородного коэффициента O/U в основном соответствуют установленным требованиям к (U,Gd)O<sub>2</sub>-топливу.

### ЛИТЕРАТУРА

1. R. Holzer et. al. Progress in the design of fuel assemblies for LWR // *Proc. of Symp. on Improvements in Water Reactor Fuel Technology and Utilization, Stockholm, 15-19 Sep. 1986*. Vienna: IAEA, 1987, p. 43-56.
2. D. Franklin et. al. Advances in light water reactor fuels // *Trans. ANS*. 1987, v. 55, p. 255-257.
3. В.В. Горский. Применение гадолиния в легководных реакторах // *Атомная техника за рубежом*. 1987, N 3, с.3-11.
4. A. Strasser // *J. Nucl. Mater.* 1982, v. 106, N 1-3, p.3-11.
5. M. Peehs et. al. // *J. Nucl. Mater.* 1982, v. 106, N 1-3, p. 221-230.
6. T. Wada, K. Noro, K. Tsukui. Behaviour of UO<sub>2</sub>-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fuel // *Proc. of Intern. Conf. on Nuclear Fuel Performance, 15-19 Oct., 1973*. London: BNES, 1973, p. 63.
7. S. Fukushima, T. Ohmichi, A. Maeda et. al. The effect of gadolinium content on the thermal conductivity of nearstoichiometric (U,Gd)O<sub>2</sub> solid solution // *J. Nucl. Mater.* 1982, v. 105, p. 201-210.

## ДЕЯКІ ХАРАКТЕРИСТИКИ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИХ ДВОШАРОВИХ УРАН-ГАДОЛІНІЄВИХ ТАБЛЕТОК

*М.П. Одейчук, С.А. Сиренко, О.І. Большак, О.О. Слабоспицкая, Н.М. Роечко*

На сучасному етапі розвитку атомної енергетики велику увагу приділяється розробці твєлів на великі вигорання. В зв'язку з цим першорядне значення має підвищення експлуатаційних характеристик таблеткового палива, в том числі UO<sub>2</sub>-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

## SOME DESCRIPTIONS OF EXPERIMENT TWO-LAYER URAN-GADOLINIUM PELLETS

*N.P. Odeychuk, S.A. Sirenko, A.I. Bolshak, E.A. Slabospitskaya, N.M. Roenko*

At the present stage of development of atomic engineering the large attention is given to engineering of fuel elements on large burn-outs. In this connection, the prime value has raise of operating performances of tablet fuel, including UO<sub>2</sub>-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.