

РАЗРАБОТКА ПЭЛОВ ДИСПЕРСИОННОГО ТИПА С ВЫГОРАЮЩИМ ПОГЛОТИТЕЛЕМ



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

*Институт физики твердого тела, материаловедения и технологий
Национального научного центра «Харьковский физико-технический
институт»;
г. Харьков, Украина*

Поглотители дисперсионного типа обладают повышенными технико-экономическими показателями по сравнению с применяемыми в данное время в реакторах ВВЭР. В данной работе рассмотрена технология производства ПЭЛов дисперсионного типа на основе Gd_2O_3 методами порошковой металлургии.

ВВЕДЕНИЕ

Повышение технико-экономических показателей АЭС связано с увеличением выгорания ядерного топлива. Увеличение компаниии 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 нейтронов. Данный поглотитель нейтронов должен обладать высоким сечением захвата нейтронов и не образовывать нежелательных дочерних продуктов деления [1].

Поглощающий элемент (ПЭЛ) дисперсионного типа представляет собой заключенный в оболочку сердечник, в котором частицы выгорающего поглотителя равномерно распределены в непрерывной матрице. Основным преимуществом ПЭЛов дисперсионного типа является повышенная коррозионная стойкость при длительной эксплуатации в реакторе, так как частицы поглотителя (окислы РЗМ) дополнительно защищены от гидратации коррозионно-стойкой матрицей [2].

Особенно перспективно применение ПЭЛов дисперсионного типа в исследовательских, транспортных и других специальных типах ядерных реакторов.

Преимуществами ПЭЛов дисперсионного типа являются более широкие технологические возможности, позволяющие изготавливать ПЭЛы самой разнообразной конфигурации: в виде изделий из лент и пластин сложной конфигурации, цилиндрических и крестообразных стержней, колец и т.д. [3].

В настоящее время большинство работ по изучению редких земель в целях их применения в ПЭЛлах для регулирования реактора направлено на использование дисперсий редких земель в металлической матрице. При этом главное внимание сосредоточено на использовании редких земель в виде окислов, а не в виде металла, поскольку стоимость получения металла относительно высокая [4].

Особый интерес представляет Gd_2O_3 , поскольку Gd имеет уникальные свойства, связанные с высоким сечением поглощения нейтронов и скоростью выгорания, близкой (при оптимальном составе) к скорости выгорания ^{235}U . Эти свойства в сочетании с тем, что при его облучении не возникают дочерние продукты с высоким сечением захвата тепловых нейтронов, делают Gd идеальным выгорающим поглотителем [5].

В технологии дисперсионных элементов широкое распространение получили методы порошковой металлургии. Их отличают простота, дешевизна и универсальность, возможность изготовления ПЭЛов самой разнообразной конфигурации. Чаще всего они применяются в сочетании с рядом других методов (электродуговое распыление, золь-гель, химическая диссоциация и др.) [6].

В данной работе описан метод изготовления ПЭЛов дисперсионного типа основаны на методах порошковой металлургии.

ПРОИЗВОДСТВО МИКРОСФЕР

Исследования по отработке операций и режимов изготовления ПЭЛов дисперсионного типа проводили с использованием порошка оксида гадолиния и порошка молибдена.

Для получения равномерной по составу смеси, которая бы не расслаивалась и не рассыпалась при дальнейших операциях, широко используют различные связующие вещества, добавляемые в шихту. Эффективным связующим веществом для порошка Gd_2O_3 является оригинальное разработанное полимерное связующее, состоящее из смеси парафина и петролатума в пропорции 2:1, растворенных в бензине. Исходный порошок Gd_2O_3 перемешивают со связующим, сушат, после чего проводятся операции уśredнения и измельчения полученной массы.

Порошок Gd_2O_3 пропускают через экструдер, получая таким образом цилиндрические гранулы необходимых размеров.

Разработанный процесс формирования микросфер включает операцию обработки исходных гранул из Gd_2O_3 со связующим во вращающихся чашах сфероидизатора (модернизированной планетарной мельницы). Сфероидизатор состоит из стальной станины, на которой установлена плита с размещенными на ней четырьмя металлическими чашами. На верхней крышке сфероидизатора установлены датчики (тахометры) скорости вращения плиты и чаш. В результате происходит накатка гранул в сферические микросферы и их уплотнение. Сферическую форму гранулам придают в сфероидизаторе в течение 1,5 ч. Затем сферические «сырые» микросферы Gd_2O_3 поступают на операции отгонки связующего и спекания.

Процесс спекания проводили в вакууме 10^{-3} мм рт. ст. при температуре $1600^\circ C$ в течение 2 ч.

Плотность спеченных микросфер из Gd_2O_3 составляла $7,44 \text{ г/см}^3$ (97,4 % ТП).

НАНЕСЕНИЕ ПОКРЫТИЙ

Исходный порошок молибдена смешивался с разработанным полимерным связующим в универсальном лопастном смесителе в течение 1 ч затем сушился.

Для нанесения металлического покрытия из порошка Мо на сферические гранулы из Gd_2O_3 разработан метод механического нанесения (накатывания) покрытия в сфероидизаторе. Данный метод прост, надежен и технологичен.

Покрытия на сферических частицах ПЭЛов улучшают их свойства, предохраняют от взаимодействия с теплоносителем первого контура реактора при гипотетическом появлении во время работы сквозных дефектов в оболочке. Таким образом, создается реальная возможность повышения живучести ПЭЛов дисперсионного типа.

Полученные микросферы на основе Gd_2O_3 (~ 50 мас.%) помещают в чашу сфероидизатора и туда же засыпают порошок из молибдена (~ 50 мас.%) со связующим для нанесения покрытия на микросферы. Скорость вращения плиты составляет 75 об/мин, а скорость вращения чаши – 25 об/мин. Время обработки операции по нанесению покрытия при данных условиях работы сфероидизатора составляет 1,5 ч. Толщина «сырого» покрытия Мо на микросферах на основе Gd_2O_3 составляет ~ 40 мкм.

ПРОИЗВОДСТВО ДИСПЕРСИОННЫХ КОМПОЗИЦИЙ

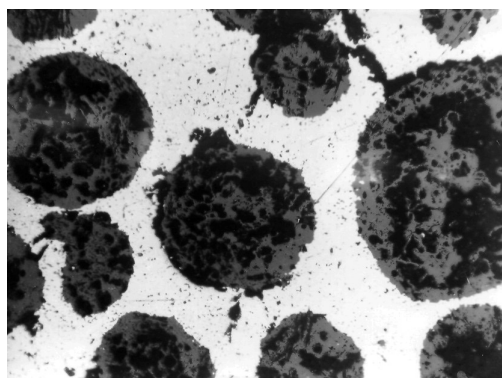
Прессование микросфер с нанесенным «сырым» покрытием из Мо в готовые изделия производили двухсторонним прессованием в стальных прессформах на гидравлическом прессе П 6320 при удельном давлении 130 МПа. Затем спрессованные изделия проходили контроль качества (на наличие сколов и трещин) и передавались на операции отгонки связующего и спекания.

Процесс спекания представляет собой основной этап в консолидации частиц порошкообразного ма-

териала в твердом состоянии и упрочнении заготовки.

Полученные после прессования изделия помещали в графитовые тигли, футерованные молибденовым прокатом. Процесс отгонки связующего проводили в вакууме при медленном подъеме температуры. Атмосфера термообработки на стадии отгонки связующего выбиралась таким образом, чтобы исключить появления окислов на поверхности изделий. Тигель со спрессованными изделиями после извлечения из печи отгонки связующего помещали в высокотемпературную печь с графитовым нагревателем, изготовленную на базе вакуумной установки ВУМ-10. Процесс спекания проводили в вакууме 10^{-3} мм рт. ст. при температуре $1750^\circ C$ в течение 2 ч.

Плотность спеченных изделий составляла $9,5 \text{ г/см}^3$ (93 % ТП).



|-----|
500 мкм

Рис.1. Структура готового (спеченного) изделия

Спрессованные и спеченные готовые изделия имели ровную, гладкую без сколов и трещин поверхность. Металлографический анализ (рис.1) показал, что микросферы из Gd_2O_3 имеют правильную округлую форму и равномерно распределены в металлической матрице. На спеченной молибденовой матрице не наблюдается следов потемнения (окисления), на шлифе виден характерный металлический блеск. В самой металлической матрице не наблюдаются раковины и дополнительные включения.

Определяющим фактором для плотности сформованных изделий является давление прессования. Зависимость плотности готовых изделий от давления прессования показана на рис.2.

ВЫВОДЫ

1. При массовом производстве заготовок ПЭЛов прессованием в пресс-формах весьма важно получать хорошую воспроизводимость плотности от изделия к изделию, изготовленных при одинаковом давлении прессования. Практически эта величина укладывается в пределе $\pm 0,5\%$ среднего значения плотности, что отвечает установленным требованиям по регламенту изготовления.

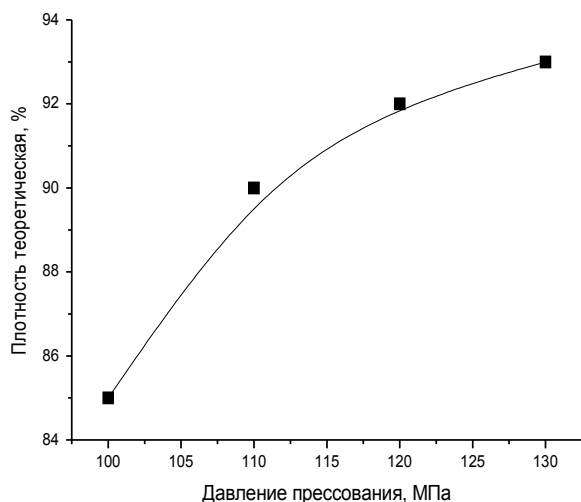


Рис.2. Зависимость плотности готовых изделий от давления прессования

2. Исследованный метод изготовления изделий поглотителя дисперсионного типа характеризуется хорошей воспроизводимостью и экономичностью.

3. Получаемые изделия отличаются высоким качеством (в готовых изделиях не выявлены следы дефектов и трещин).

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. И.Д. Родомысельский. *Порошковая металлургия*, 1966, № 4, с.45.
3. *Reactor Mater*, 1962, №2, p.11.
4. M.K. Meyer, T.C. Wiencek, S.L. Hayes, G.L. Hoffman // *J. Nucl. Mater.* 2000, v. 278, p. 358.
5. В.В. Горский. Применение гадолиния в легководных реакторах // *Атомная техника за рубежом*. 1987, № 3, с. 3-11.
6. K. Bhanumurty, R.V. Patil, D. Strivatsava, P.S. Gawde, G.B. Kale // *J. Nucl. Mater.* 2000, v. 297, p.220.

РОЗРОБКА ПЕЛІВ ДИСПЕРСІЙНОГО ТИПУ З ВИГОРАЮЧИМ ПОГЛИНАЧЕМ

М.П. Одейчук, С.А. Сіренко, О.І. Большак, О.О. Слабоспицька

Поглиначі дисперсійного типу володіють підвищеними техніко-економічними показниками у порівнянні з вживаними зараз в реакторах ВВЕР. У даній роботі досліджено процес виготовлення ПЕЛІВ дисперсійного типу на основі Gd_2O_3 методами порошкової металургії.

DEVELOPMENT OF DISPERSION TYPE ABSORBERS WITH BURNABLE ABSORBER

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

The dispersion type absorbers have increased technical and economic parameters in comparison with used in the given time in WWER type reactors. Dispersion type absorber elements manufacturing technology on Gd_2O_3 base by methods of powder metallurgy in the given article is considered.