

5. M. Miner. J. Appl. Mech., 12, No. 3, A-159; Trans. ASME, 67, 159 (1945).
6. С. В. Серенсен и др. «Заводская лаборатория», № 3, 337 (1953); № 11, (1958); «Вестник машиностроения», № 1, 11 (1962).
7. С. Н. Журков и др. ЖТФ, 23, № 10, 1677 (1953); Докл. АН СССР, 101, № 2, 237 (1955); «Вестник АН СССР» № 11, 78 (1957); ЖТФ 28; № 8 (1958).
8. Ю. Н. Работнов. Ползучесть элементов конструкций. М., «Наука», 1966.
9. Ю. И. Лихачев. В сб. «Прочность при малом числе циклов нагружения», М., «Наука», 1969, стр. 205.
10. В. И. Субботин и др. «Атомная энергия», 9, 461 (1960).
11. П. А. Ушаков. «Атомная энергия», 13, 162 (1962).
12. Сборник «Жидкие металлы». М., Атомиздат, 1967.
13. И. А. Биргер. «Изв. АН СССР. Механика», № 2, 113 (1965).
14. И. А. Биргер, И. В. Демьянушко. «Механика твердого тела», № 6, 70 (1968).
15. T. Claudson and al. Nucl. Appl. and Technol., 9, 10 (1970).
16. W. Sheely. Nucl. Sci. and Engineering, 29, 165 (1967).
17. И. А. Биргер. Круглые пластинки и оболочки вращения. М., Оборонгиз, 1961.
18. Н. Н. Аристархов и др. Экспериментальные исследования методов обнаружения пакетов с негерметичными твэлами на реакторе БР-5. Доклад научно-технической конференции стран — членов СЭВ (г. Ульяновск, 1970).

Исследование перспективных топливных композиций на основе карбида урана и плутония для быстрых реакторов

И. С. ГОЛОВНИН, Т. С. МЕНЬШИКОВА, Ф. Г. РЕШЕТНИКОВ, И. Г. ЛЕБЕДЕВ, В. И. КУЗЬМИН, Б. Д. РОГОЗКИН, В. В. АРТАМОНОВ, Р. Б. КОТЕЛЬНИКОВ, В. С. БЕЛЕВАНЦЕВ, С. Н. БАШЛЫКОВ, Ю. К. БИБИЛАШВИЛИ, В. С. МУХИН, Г. В. КАЛАШНИК, А. С. ПИСКУН, Л. К. ДРУЖИНИН, Г. В. ТИТОВ (СССР)

УДК 621.039.542.344

В первых промышленных аппаратах на быстрых нейтронах используется в качестве горючего двуокись урана, а также смесь двуокиси урана и двуокиси плутония, которые обеспечивают надежность работы твэлов в весьма напряженных условиях (высокая плотность энерговыделения, довольно высокие температуры и высокие выгорания).

Однако по ядернофизическим характеристикам окисное горючее не является наилучшим.

Расчетами было показано, что использование карбидного горючего может снизить время удвоения примерно в полтора раза. Поэтому в последнее время проводятся серьезные исследования карбидного горючего как в Советском Союзе, так и за рубежом.

В ряде стран (Франция, Англия, ФРГ, США и др.) осуществляются широкие программы исследования карбидного горючего, а также разработаны проекты реакторов с карбидным горючим (MFR, KNK).

Опыт эксплуатации карбидной зоны реактора БР-5 в нашей стране показал реальную возможность использования карбидного горючего в быстрых реакторах. Вместе с тем стала очевидной необходимость совершенствования методов получения монокарбидов составов, близких к стехиометрическому, исследования возможности подавления вредного влияния угле-

рода легированием или нанесением защитных покрытий, изучения зависимости процессов газовыделения и распухания от температуры и выгорания.

Преимущества карбидного горючего по сравнению с окисным заключаются в более высокой теплопроводности и повышенном содержании делящегося изотопа. Недостатком является более сильное по сравнению с окисным распухание под облучением при температурах выше 1500° С. Поэтому реализовать преимущества карбидного горючего можно только при соответствующей конструкции твэла. Целесообразно для уменьшения распухания применять подслои с хорошей теплопроводностью (например, натрий) между сердечником и оболочкой, который существенно снижает перепад температур и соответственно температуру в центре сердечника. Но применение натрия связано с новой проблемой — переносом избыточного углерода на оболочку и карбидизацией последней.

Однако есть возможность избавиться от отрицательного влияния углерода, отработав технологию получения карбида стехиометрического состава, легируя карбид элементами, связывающими свободный углерод, или вводя защитные покрытия. Какой из этих путей более действенный — необходимо проверить в условиях облучения.

Получение монокарбидов урана, плутония и их смесей

Образцы для дореакторных и реакторных испытаний готовили известными методами порошковой металлургии [1,2] — прессованием и спеканием, а также горячим прессованием. Эти методы позволили получить сердечники с плотностью 12,7—13,0 г/см³ с заданными размерами.

Порошки соединений получали двумя методами: карбидизацией окислов твердым углеродом и газовой карбидизацией металлов.

Составы карбидов, полученных различными методами, представлены в табл. 1. На рис. 1 приведены типичные микроструктуры образцов из монокарбидов урана и смеси UC+PuC. Как видно из этих данных, использование указанных методов дает возможность приблизить содержание углерода к стехиометрическому,

а содержание кислорода — поддерживать в пределах 0,01—0,1 вес.%. Эти показатели качества получаемых материалов не являются предельными и при дальнейшем усовершенствовании технологии могут быть улучшены.

Нанесение защитных покрытий на сердечники производили методом электроннолучевого напыления в вакууме, что позволяло получать равномерные покрытия (толщиной 25—35 мк), хорошо сцепленные с подложкой [3].

Один из основных вопросов возможного применения карбидов в промышленных реакторах, где температуры и выгорания значительно выше, чем в БР-5, — вопрос совместимости горючего с оболочкой, его набухание и газовыделение. Совместимость изучалась в дореакторных и реакторных условиях.

Изучения совместимости карбидов с материалами оболочки (сталь ОХ16Н15МЗБ)

Исследование до облучения в реакторе. Совместимость изучали на специальных образцах-имитаторах, твэла (рис. 2). При исследовании совместимости были применены микроструктурный, рентгеноструктурный и химический анализы, а также определены механические свойства оболочки. Результаты испытаний при 800°С продолжительностью до 5000 ч сведены в табл. 2. Из таблицы видно, что при зазоре, заполненном гелием, карбид стехиометрического и застехиометрического составов не взаимодействует со сталью ОХ16Н15МЗБ. При зазоре, заполненном натрием, карбид стехиометрического состава не взаимодействует с оболочкой,

Состав карбидов, полученных разными методами

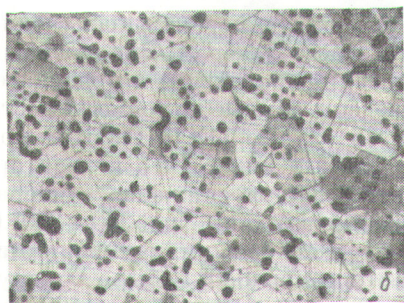
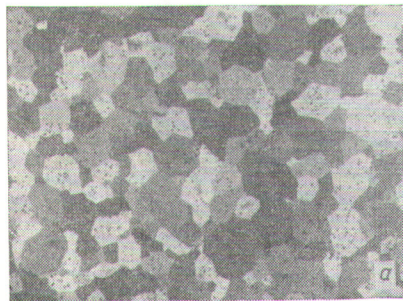
Таблица 1

Способ получения карбидов	Химический состав, вес.%		
	углерод	кислород	азот
Газовая карбидизация урана	4,80—4,85	0,01—0,05	0,02
Карбидизация окислов урана	4,80—4,90	0,01—0,1	0,05
Карбидизация плутония твердым углеродом	4,2—4,6	0,01—0,04	0,04

Результаты испытаний на совместимость карбидных композиций со сталью ОХ16Н15МЗБ (до облучения)

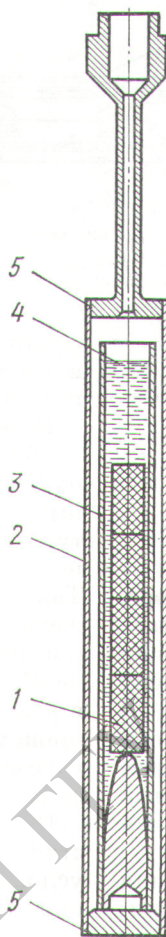
Таблица 2

Горючее	Среда	Температура, °С	Продолжительность испытаний, ч	Глубина взаимодействия, мм	Содержание углерода в стали, вес.%		Предел прочности, кгс/мм ²		Удлинение, %		Микротвердость, кгс/мм ²	
					исходное	после испытания	исходный	после испытаний	исходное	после испытаний	исходная	после испытаний
UC (5,1 вес.%)	Натрий	800	4500	100	0,08	0,77	65	66	45	10	210	260
UC (4,8 вес.%)	»	800	2500	—	0,06	0,06	65	57	45	43	220	220
UC (5,1 вес.%)	Гелий	800	4000	—	0,06	0,06	65	64	45	48	210	200
UC (4,8 вес.%)	»	800	2000	—	0,06	0,06	65	58	45	49	200	190
UC _{0,8} Pu _{0,2} C + (5 об. % М ₂ C ₃)	Натрий	800	2500	10	0,07	0,14	60	60	45	35	210	230
UC (5,1 вес. % C) + 5 вес. % Cr	»	800	2500	—	0,07	0,10	65	67	45	36	210	220
UC (5,1 вес. % C) + 9 вес. % Cr	»	800	4000	—	0,07	0,08	65	65	45	45	200	200
UC (5,1 вес. % C) — покрыт хромом	»	800	4000	—	0,07	0,12	65	66	45	42	200	210



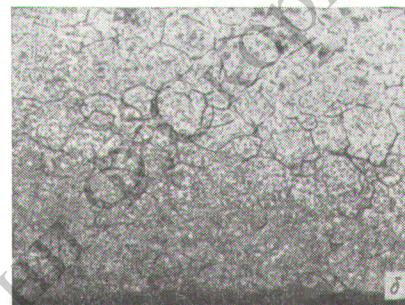
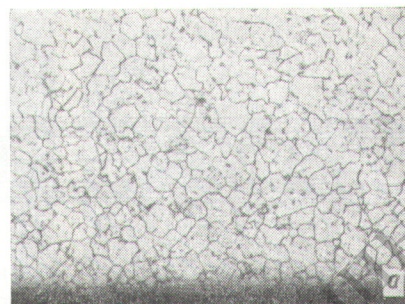
Р и с. 1. Микроструктуры монокарбидов урана и плутония ($\times 200$):

а — монокарбид урана, полученный газовой карбидизацией урана пропаном (стехиометрический); б — монокарбид урана, полученный карбидизацией двуокиси урана углеродом (застехиометрический); в — смесь монокарбидов урана и плутония, полученная карбидизацией окислов.



Р и с. 2. Образец для изучения совместимости:

1 — брикеты карбида; 2 — наружный контейнер из стали ОХ18Н10Т; 3 — оболочка из стали ОХ16Н15МЗБ; 4 — уровень натрия; 5 — сварка.



Р и с. 3. Микроструктура оболочки твэла (сталь 0X16H15M3B) после испытания (сердечник из монокарида урана, 5,0—5,1 вес. % углерода, $\times 200$).

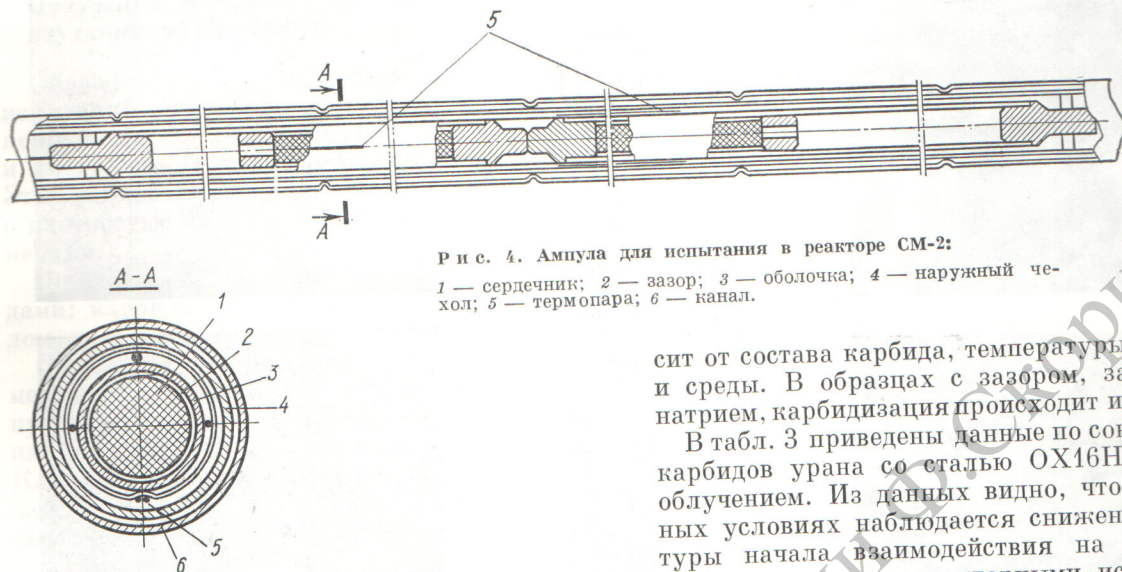
До облучения: а — выдержка при 800°C в течение 4000 ч, в азоте гелий, взаимодействие отсутствует; б — выдержка при 800°C в течение 4500 ч, в азоте натрий, зона взаимодействия 100 мк. После облучения (в): выдержка при 640°C , выгорание — 6,3 ат. %.

а карбид застехиометрического состава взаимодействует с образованием слоя ~ 100 мк; содержание углерода в стали повышается до 0,77 вес. %. Это сопровождается повышением микротвердости с 210 до 260 кгс/мм^2 и падением удлинения с 45 до 10%. Структуру взаимодействия см. на рис. 3.

Легирование застехиометрического карбида хромом привело к улучшению совместимости через натрий, причем увеличение содержания

хрома с 5 до 9 вес. % благоприятно отразилось на совместимости.

Хромовое покрытие на брикетах застехиометрического карбида предотвратило перенос углерода через натрий на оболочку. Механические свойства остались на уровне исходных. Карбид $(\text{UPu})\text{C} + 5 \text{ об. \% } \text{M}_2\text{C}_3$ показал лучшую совместимость, чем $\text{UC} + \text{UC}_2$. По-видимому, полутвердая фаза менее склонна отдавать углерод, чем фаза дикарида.



Р и с. 4. Ампула для испытания в реакторе СМ-2:

1 — сердечник; 2 — зазор; 3 — оболочка; 4 — наружный чехол; 5 — термопара; 6 — канал.

Исследование после облучения в реакторе.
Для изучения поведения карбидного горючего под облучением была разработана специальная ампула, позволяющая измерять температуру оболочки в процессе облучения (рис. 4). В твэле предусмотрена пористость $\sim 20\%$, она складывается из объема зазора оболочки — горючее и из объема пор в таблетках. Диаметральный зазор составлял 0,18—0,4 мм, а эффективная плотность была равна 10,92 г/см³.

После облучения наблюдается карбидизация оболочки, причем глубина взаимодействия зави-

сит от состава карбида, температуры облучения и среды. В образцах с зазором, заполненным натрием, карбидизация происходит интенсивнее.

В табл. 3 приведены данные по совместимости карбидов урана со сталью ОХ16Н15МЗБ под облучением. Из данных видно, что в реакторных условиях наблюдается снижение температуры начала взаимодействия на 200—250° С по сравнению с дореакторными испытаниями. Так, если в реакторе при 640° С было обнаружено науглероживание оболочки на 100 мк (см. рис. 3, в), то без облучения взаимодействия не обнаружено до 800° С. Следует отметить, что в реакторных условиях карбидизация оболочки происходит также и через гелий, вероятно, вследствие переноса углерода через газовую фазу (СО).

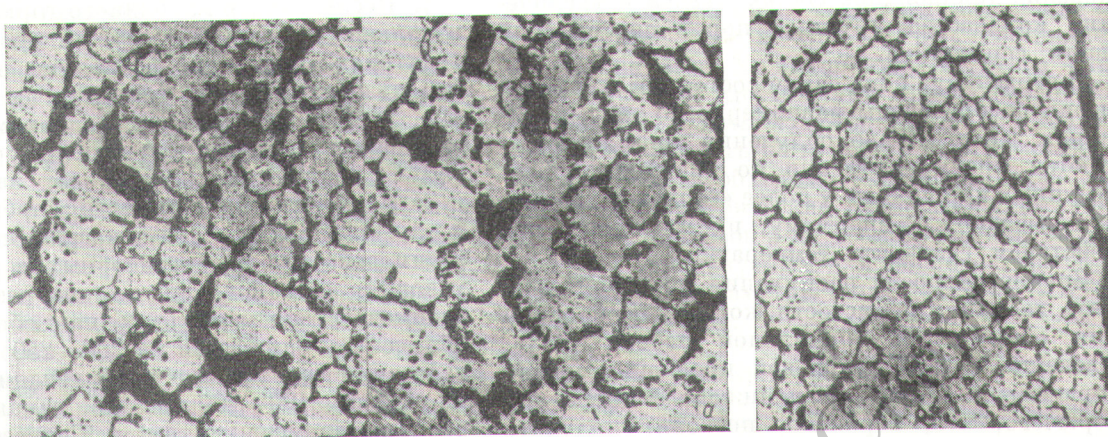
Покрытие хромом предотвращает взаимодействие как в дореакторных, так и в реакторных условиях. Защитный слой хрома после облучения хорошо сохранился. Кроме совместимости

Результаты внутриканальных испытаний на совместимость карбидов урана со сталью ОХ16Н15МЗБ (после облучения)

Таблица 3

Горючее	Среда	Температура, °С	Продолжительность испытаний, ч	Глубина взаимодействия, мк	Предел прочности, кгс/мм ²		Удлинение, %		Микротвердость, кгс/мм ²		Примечание
					исходный	после испытания	исходное	после испытания	исходная	после испытания	
UC (5,1 вес.% углерода)	Натрий	500	6500	400	—	—	—	—	210	210	В реакторе СМ-2
UC (5,1 вес.% углерода)	Гелий	500	6500	100	—	—	—	—	220	290	То же
UC (5,4 вес.% углерода)	»	570	7300—29300	10—30	73,5 *	85,0	47,0	1,3	240	400	В реакторе БР-5
UC (5,0 вес.% углерода)	»	640	6500	100	—	—	—	—	220	400	В реакторе СМ-2
UC (5,1 вес.% углерода) — покрыт хромом	Натрий	460	6500	нет	—	—	—	—	220	290	То же

* Испытания проведены на кольцевых образцах [4].



Р и с. 5. Микроструктура монокарбида урана после облучения (выгорание 6,3 ат.%, $\times 200$):
а — центр; б — периферия.

после облучения определялись распухание образцов, плотность и объем выделившихся газов. Условия облучения и основные результаты представлены в табл. 4. Для сопоставления приведены отдельные данные по облучению карбидов урана в реакторе БР-5 [4].

Образцы облучались при линейной мощности 300—600 *вт/см* до выгорания 0,8—6,3 ат.%. Максимальное газовыделение составило $\sim 20\%$.

Все твэлы после облучения при указанных условиях сохранили герметичность. Наибольшее увеличение диаметра оболочки в твэлах с максимальным выгоранием составило около 1%. Средняя скорость распухания карбидного горючего сильно зависит от его температуры и при 1400—1500° С составляет 3—4% на 1 ат.% выгорания, причем образуются крупные газовые пузыри и полости (рис. 5). Замечено исчез-

Условия и результаты облучения в реакторах СМ-2 и БР-5

Таблица 4

Характеристика образцов				Среда в зазоре	Условия испытания					Результаты испытаний				
номер пакета или твэла	содержание угля, вес. %	плотность горючего, г/см ³	материал оболочки		реактор	максимальная линейная мощность, <i>вт/см</i>	время работы, месяцы	температура в центре горючего (начальная), °С	температура оболочки (расчетная), °С	максимальное выгорание, % тяж. ат.	распухание на 1% выгорания	газовыделение	увеличение диаметра оболочки	глубина зон взаимовлияния, мм
П-7	5,3—5,4	12,25—12,45	Сталь ОХ18Н9Т	Гелий	БР-5	426	12	1030	570	0,8	1,2	2	0 *	10
П-13	5,3—5,4	12,25—12,45	То же	»	БР-5	426	32	1030	570	2,1	1,2	2	0—0,5 **	10
П-12	5,3—5,4	12,25—12,45	» »	»	БР-5	426	47	1030	570	3,0	1,2	2	0	10
Т-1	5,15	12,6	Сталь ОХ16Н15МЗБ	»	СМ-2	360	9	980	500	3,5	1,2	—	0	10
Т-2	4,8—5,2	12,5	То же	»	БР-5	300	—	1250	530	4,2	2,5	7	0—0,7 ***	30
Т-3	4,95	12,6	» »	»	СМ-2	605	9	1650	640	6,3	3,5	20	1,3	100
Т-4	5,1	12,5	» »	Натрий	»	360	9	1000	500	3,5	1,2	2	—	400
Т-5	5,1 хромовое покрытие	12,6	» »	»	СМ-2	254	9	880	460	3,5	—	0	—	—

* У всех элементов пакетов П-7, П-13, П-12 наблюдались стрелы прогиба от 2 до 4 мм на длине 500 мм, по-видимому, вследствие окружной неравномерности температурного поля пристеночных твэлов.

** Деформация оболочек в твэле, где зазор между горючим и оболочкой близок к нулю, равна 0,5%.

*** Деформация оболочек в отдельных участках твэла достигает 0,7%.

новение дикарбидной составляющей и увеличение количества крупных пор в центральной части сердечника.

В сердечнике в исходном состоянии пор мало, и они распределены равномерно по телу и границам зерен. После облучения поры располагаются преимущественно по границам зерен. Крупных пор больше у более «горячих» границ, что вызвано, по-видимому, их миграцией под действием градиента температур.

Знание скорости распухания позволяет оценить величину пористости, которая необходима для обеспечения нормальной работы твэла. Введение в твэл натрия снижает температуру горючего, что, вероятно, позволит получить выгорание ~10 ат.% при высоких тепловых нагрузках. Более трудной задачей является достижение такого выгорания в твэлах с газовой прослойкой между горючим и оболочкой. По данным экспериментов эти твэлы работоспособны до выгорания ~6 ат.%, однако оболочка имеет деформацию, близкую к критической. Достижение более высокого выгорания возможно в результате уменьшения эффективной плотности горючего, а также варьирования распределения исходной пористости.

Эти и другие вопросы, от решения которых зависит использование перспективных видов высокотемпературного уран-плутониевого горючего, включены в программу дальнейшего исследования на реакторе BOR-60.

Из изложенного можно сделать выводы:

1. Исследование карбидного горючего применительно к режимам работы промышленных реакторов показало реальную возможность использования такого горючего на более высокие, чем в реакторе БР-5, параметры. При выгорании до 6,3 ат.% и температуре оболочки 640°С разрушения твэлов не наблюдалось.

2. Изучение совместимости карбидов урана и плутония с оболочкой показало, что характер взаимодействия в дореакторных и реакторных условиях одинаков. Однако температура начала взаимодействия карбида урана с оболочкой под облучением снижается на 200—250°С. Взаимодействие выражается в карбидизации оболочки на глубину 100—400 мк, что, однако, не приводит к разрушению твэлов. Совместимость может быть улучшена нанесением на сердечник защитных покрытий.

3. Максимальная скорость распухания при температуре в центре сердечника выше 1500°С составляет 3,5% на 1 ат.% выгорания, газовое деление при выгорании 6,3 ат.% составляет 20%.

ЛИТЕРАТУРА

1. C. Mcmurry. German Bull., 44, No. 8, 612 (1965).
2. E. Petkus et al. Chem. Engng. Progr. Sympos., 63, No. 80, 111 (1967).
3. И. С. Головин и др. Доклад, представленный СССР на Международную конференцию по облучению в быстрых реакторах (Англия, Терсо, апрель 1969 г.).
4. Ш. Ш. Ибрагимов, Т. С. Меньшикова, А. Я. Ладыгин. «Атомная энергия», 30,3 (1971).

Некоторые вопросы разработки твэлов для быстрых реакторов

И. С. ГОЛОВНИН, Ю. К. БИБЛАШВИЛИ, Т. С. МЕНЬШИКОВА,
А. В. МЕДВЕДЕВ, Г. В. КАЛАШНИК (СССР)

УДК 621.039.54

Достижение экономичности быстрых реакторов связано в большой степени с проблемой создания высоконапряженных твэлов, допускающих глубокое выгорание горючего. Сложность проблемы заключается в необходимости сочетать высокую энерговыработку (до 100 000 Мвт·сутки/т) со значительным накоплением вторичного ядерного горючего. В конструкциях твэлов нужно использовать материалы, обладающие, с одной стороны, хорошей коррозионной стойкостью и высокими механическими характеристиками, а с другой — приемлемыми ядерными свойствами.

Для первых советских быстрых реакторов выбрано окисное горючее (UO_2 , $UO_2 - PuO_2$) в оболочке из нержавеющей стали. Такой выбор

объясняется хорошими эксплуатационными характеристиками окисного горючего, его совместимостью с нержавеющей сталью и натрием, сравнительно простой технологией изготовления сердечников, что позволяет создать надежные и недорогие конструкции твэлов.

В Советском Союзе созданы конструкции твэлов с окисным сердечником для реакторов BOR-60, БН-350, заканчивается разработка твэлов для реактора БН-600. Этому предшествовали серьезные исследования, позволившие найти решения, оптимальные при существующем уровне знаний. В данном сообщении на примере реакторов BOR-60 и БН-350 показан подход к разработке твэлов для быстрых реакторов. Подробно рассмотрены вопросы