

14. Kiefhaber E., Thiem D. Institut für Neutronenphysik und Reaktortecnik. Technical Note. Karlsruhe, 1976.
15. Kiefhaber E. KFK-1572. Karlsruhe, 1972.
16. Küsters H. KFK-1632. Karlsruhe, 1973.
17. Oesterkamp W. «Trans. Amer. Nucl. Soc.», 1973, v. 16, p. 261.
18. Bucher R. e.a. Calculation of the Breeding Properties of a Standard Fast Reactor Technical Note. ANL, 1975.
19. McKnight R. «Nucl. Sci. and Engng», 1977, v. 62, N 2, p. 309.
20. Hammer P., Plum F. Physics Investigations of Sodium Cooled Fast Reactors Core Z1 Masurca in SNEAK Assembly, 6D CEA-N-1561, KFK-1581, 1972.
21. Collins P., Lineberry M. «Trans. Amer. Nucl. Soc.», 1976, v. 24, p. 48<sup>4</sup>.
22. Chaudat J., Courchinoux J., Barre J. Caracteristiques d'un Reacteur Rapide «ETALON» Calcule avec le Formulaire CARNAVAL-III. Note Technique. Cadarache, 1975.

УДК 621.039.54:621.311.2:621.039

## Проблемы создания топлива для энергетических ядерных реакторов

РЕШЕТНИКОВ Ф. Г., БИБИЛАШВИЛИ Ю. К., КУШАКОВСКИЙ В. И.

Качество сердечников твэлов в значительной степени определяет работоспособность и надежность любой ядерно-энергетической установки. Отсюда понятно то внимание, которое уделяется отработке технологии, обеспечивающей высокую и стабильное качество получаемых сердечников. И хотя требования, предъявляемые, в частности, к сердечникам из  $UO_2$ , отработаны достаточно хорошо, что обеспечивает высокую работоспособность твэлов, дальнейшее уточнение и обоснование этих требований не только позволит повысить надежность твэлов, но и даст возможность пересмотреть необоснованно завышенные требования к отдельным параметрам и таким образом упростить и удешевить технологический процесс.

### Фтор и влага

Ранее уже отмечалось [1], что одно из важнейших требований, предъявляемых к окисному урановому топливу, а именно допустимое содержание фтора, формулируется без должной взаимосвязи с содержанием влаги в сердечнике. В настоящее время допустимое содержание фтора в сердечнике не превышает 0,006%. Сухой фтор в таком количестве не может оказать губительного коррозионного воздействия на оболочку твэла. Наличие же в сердечнике влаги, выделяющейся при нагревании, превращает фтор в сильный коррозионный агент. Следовательно, в первую очередь необходимо стремиться к

уменьшению содержания влаги в сердечнике, тем более что она сама по себе является основным источником водорода. Технологический процесс получения таблеток из  $UO_2$  достиг такого совершенства, что содержание влаги в спеченных таблетках не превышает, как правило, 0,0003—0,0005%. Вместе с тем предъявляются повышенные требования и к содержанию фтора, причем создается впечатление, что эти требования экспериментально не обоснованы, а возникли на основании общих соображений. Обоснование взаимозависимых нормативов на допустимое содержание фтора и влаги в сердечниках твэлов представляет, безусловно, практический интерес.

### Требования к механическим свойствам

К таблеткам  $UO_2$  предъявляются определенные требования в отношении их механических свойств. Разрушающее усилие недостаточно характеризует качество таблеток. Необходим дополнительный критерий для оценки стойкости таблеток к сколам во время различных технологических операций и транспортировки. Может оказаться целесообразной разбраковка таблеток на вибростенде по соответствующему режиму. Хотя при этом некоторое, относительно небольшое, число таблеток, имеющих скрытые дефекты в виде микротрещин, будет отбраковываться, одновременно уменьшится и брак более дорогостоящих собранных твэлов. Сколы таблеток особенно опасны в собранных твэлах, поскольку они могут приводить к заклиниванию сердечников при работе в реакторе, к уве-

Журнальный вариант доклада на конференции по реакторному материаловедению (Алушта, 1978 г.).

личению механического воздействия на оболочку и в конечном итоге к преждевременному разрушению твэлов. Таким образом, предварительная жесткая отбраковка спеченных таблеток должна быть экономически оправдана.

### О пластичности топливных сердечников

Отсутствие сколов таблеток не исключает, однако, воздействия сердечника на оболочку, например в результате термического расширения и распухания топлива. И хотя это воздействие имеет совсем иной характер, нагрузки на оболочку могут оказаться весьма значительными. Эти нагрузки в известной степени можно регулировать изменением плотности таблеток, объема торцовых лунок и диаметра отверстия. На характер взаимодействия сердечника с оболочкой может влиять и отношение высоты к диаметру таблетки, которое желательно иметь в пределах 1,1 — 1,2.

Но изменение указанных выше параметров ограничивается требованием обеспечить определенную и достаточно высокую среднюю (эффективную) плотность топлива в твэлах. В связи с этим кажется заманчивой идея создания такого топлива, которое при температуре облучения будет достаточно пластичным, чтобы исключить значительное механическое воздействие на оболочку.

Пластичность спеченной  $UO_2$  может быть повышена как применением особых технологических приемов, так и введением различных добавок, например других окислов, образующих легкоплавкие эвтектики. Выбор таких добавок — задача не простая, поскольку вводимое количество их должно быть невелико; кроме того, они должны образовывать с  $UO_2$  не твердые растворы, а низкотемпературные эвтектики, располагающиеся по границам зерен; наконец, вводимые добавки не должны существенно влиять на физические характеристики реактора и т. д. Тем не менее задача сама по себе может оказаться достаточно заманчивой, чтобы уделить ей должное внимание.

Вопрос получения сердечников твэлов с повышенной пластичностью особенно актуален для твэлов энергетических реакторов, работающих в режиме переменных или пиковых режимах.

### Проблемы создания твэлов для АЭС, работающих в режимах с маневрированием мощностью

С увеличением мощности АЭС очень остро встает проблема регулирования мощности в соот-

ветствии с диспетчерским графиком нагрузок. В настоящее время требования к маневренным характеристикам блоков АЭС формулируются в основном с учетом нужд потребителей. Требуемые режимы регулирования АЭС должны обеспечить уменьшение и увеличение мощности блоков со скоростью до 4—6%/мин. При этом для режимов эксплуатации с переменными нагрузками рассматриваются АЭС с тепловыми реакторами, поскольку при работе быстрого энергетического реактора в пиковых или полупиковых режимах ухудшаются экономические показатели всего топливного цикла в результате прямого снижения темпа накопления плутония.

В планах развития ядерной энергетики в СССР и других странах предусмотрено преимущественно строительство реакторов, в которых используются стержневые твэлы с сердечником в виде компактной  $UO_2$  в оболочке из циркониевого сплава. Нагрузки, действующие на оболочку таких твэлов в стационарных режимах, хорошо известны. Это — внешнее давление теплоносителя, внутреннее давление газообразных продуктов деления и заполняющих газов, механическое воздействие распухающего топливного сердечника и термические напряжения. При этом эксплуатация твэлов сопровождается изменением ряда физико-механических характеристик материалов под влиянием радиационного повреждения, механической усталости, взаимодействия с теплоносителем и продуктами деления и др.

Все эти факторы существенно снижают эксплуатационную надежность твэлов. Добавление к этим длительным процессам новых эффектов, связанных с резким изменением температуры и тепловыделения, естественно, приведет к дополнительному снижению работоспособности твэлов.

В настоящее время считается установленным, что основным механизмом, ответственным за разрушение твэлов при изменении мощности, является механическое воздействие на оболочку термически расширяющегося топлива. Такое воздействие возникает из-за неодинаковой температуры сердечника и оболочки и значительно меньшего (в 1,5-2 раза) коэффициента термического расширения циркониевых сплавов по сравнению с  $UO_2$ . Опасность разрушения оболочек твэлов в условиях термических циклов усугубляется еще и склонностью циркониевых оболочек к коррозионному растрескиванию под напряжением в присутствии агрессивных продуктов деления, в частности иода.

Для обеспечения надежной работы твэлов в переходных режимах намечены следующие исследования.

1. Определение предельно допустимых тепловых нагрузок на твэлы при скорости повышения мощности реактора до 4—6%/мин. Предварительные оценки показали, что линейные тепловые нагрузки в этом случае не должны превышать 400 Вт/см.

2. Определение оптимальных скоростей подъема мощности АЭС с твэлами, эксплуатируемыми при нагрузках 550—600 Вт/см. Для этой цели рассматривается возможность повышения пороговой мощности разрушения при ступенчатом выводе реактора на номинальную мощность. Эта идея предполагает выдерживание твэлов при двух-трех промежуточных уровнях мощности в течение времени, достаточного для релаксации напряжений в оболочке на 40—60% первоначальных значений в результате ползучести топлива.

3. Разработка топливного сердечника, отличающегося высокой скоростью ползучести или пониженной температурой хрупко-пластического перехода, что позволило бы уменьшить время релаксации и уровень напряжения в оболочке. Этот путь, как уже отмечалось выше, связан с введением в  $UO_2$  небольших добавок, которые почти не снижают температуру плавления, но увеличивают скорость ползучести  $UO_2$  в диапазоне температуры 700—1000°C. Изучаются и другие возможности повышения пластичности топливного сердечника.

4. Детальное изучение коррозионного растрескивания циркониевых оболочек. В частности, необходимо установить основной фактор, определяющий процесс коррозионного растрескивания оболочек: предельный уровень растягивающих напряжений или пороговая скорость пластического деформирования. В первом случае для оболочек твэлов желательнее применять сплавы с невысоким пределом текучести, а во втором — более прочные сплавы. Однако надо иметь в виду, что этот критерий не является единственным. На склонность сплавов к коррозионному растрескиванию влияют и другие факторы: химический состав и структурное состояние сплавов, рабочая температура, качество оболочек твэлов и др.

### Смешанное окисное топливо

Рассмотренные вопросы в равной мере относятся и к смешанному уран-плутониевому окисному топливу. Однако к нему предъявляется

еще одно очень важное требование — равномерное распределение урана и плутония. Разработаны два принципиально различных метода получения смешанного окисного топлива — соосаждение и механическое смешение. Первый способ в сочетании с высокотемпературным спеканием таблеток позволяет получить идеально смешанный твердый раствор окислов урана и плутония.

При втором способе достигаемая равномерность распределения урана и плутония менее совершенна и зависит от крупности исходных порошков, тщательности смешения и в меньшей степени от режима спекания таблеток, поскольку для гомогенизации механически смешанных окислов требуется высокая температура и довольно длительная выдержка.

Но преимущества метода соосаждения дорого обходятся, поскольку усложняется и удорожается технологический процесс переработки больших количеств топлива, содержащего плутоний. Кроме того, соосажденные окислы нельзя хранить длительное время. Их необходимо сразу использовать для изготовления сердечников, так как происходящее накопление  $^{241}Am$  затрудняет дальнейшее обращение с готовым продуктом и может потребовать проведения новой очистки.

Но на практике бывает трудно так организовать производственный цикл, чтобы получаемое топливо можно было использовать для изготовления сердечников, особенно если в этом цикле участвует завод, занимающийся регенерацией уран-плутониевого топлива из отработавших твэлов, т. е. плутоний, возможно, придется повторно очищать от  $^{241}Am$ . В этом случае стоимость повторной очистки топлива будет значительно ниже, если  $PuO_2$  не смешана с  $UO_2$ .

Все эти трудности в значительной степени уменьшаются при использовании механического смешения  $UO_2$  и  $PuO_2$  непосредственно перед изготовлением сердечников. Кроме того, как показали отечественные и зарубежные исследования, ранее предъявлявшиеся требования к гомогенности смешанного топлива оказались избыточными. Сравнительные испытания подтвердили одинаковую работоспособность сердечников, полученных из соосажденного и механически смешанного топлива [2, 3]. Некоторое перераспределение плутония, не оказывающее заметного влияния на физику реактора, имеет место в процессе облучения во всех сердечниках, независимо от технологии их получения. Вследствие этого механическое смешивание следует

рассматривать как один из приемлемых методов изготовления уран-плутониевого топлива.

### Применение гранулированного топлива

До сих пор рассматривались твэлы, сердечники которых представляют собой набор таблеток, имеющих среднюю плотность 10,5—10,6 г/см<sup>3</sup>, т. е. ~ 96% теоретической. При этом эффективная плотность топлива в твэлах для тепловых реакторов с учетом всех допустимых зазоров составляет ~ 9,55 г/см<sup>3</sup>, или 87% теоретической, для реакторов ВВЭР-1000 и 10 г/см<sup>3</sup>, или 91% теоретической, для реакторов РБМК.

В твэлах для быстрых реакторов эффективная плотность топлива несколько ниже и составляет 8,8 г/см<sup>3</sup>, или ~ 80% теоретической. Эти значеня плотности легко достигаются при обычной загрузке таблеток с центральным отверстием или с лунками в оболочку твэлов. Между тем известен и другой способ снаряжения твэла, основанный на виброуплотнении гранулированного топлива, причем уже накоплен некоторый опыт изготовления таких твэлов.

Гранулированное топливо по некоторым показателям имеет преимущество перед таблеточным. При получении гранулированного топлива методом золь-гель исключаются пылящие операции порошковой технологии и операция шлифования таблеток; уменьшается механическое взаимодействие топлива с оболочкой; улучшается теплопроводность между топливом и оболочкой.

Но, судя по опубликованным сведениям, виброуплотненные твэлы с гранулированным топливом пока не получили широкого применения, хотя эта технология в ряде случаев кажется привлекательной. Одна из причин заключается, по-видимому, в том, что во всех странах, занимающихся производством твэлов для ядерной энергетики, достигнуты большие успехи в изготовлении сердечников в виде набора спеченных таблеток. Кроме того, для всесторонней оценки целесообразности перехода к виброуплотненным твэлам с гранулированным топливом необходимо предварительно изучить и решить ряд серьезных проблем.

1. Разработка эффективной и экономичной технологии получения гранулированного топ-

лива — крупки плотностью, близкой к теоретической. Эта технология должна обеспечить получение гранул строго заданного и постоянного размера, причем необходим набор нескольких фракций, в том числе мелкой фракции с размером крупки 20 мкм. Без выполнения этих условий невозможно достигнуть необходимой эффективной плотности топлива, особенно в твэлах тепловых реакторов. Но даже и в случае оптимальных характеристик гранулированного топлива получение его плотности в твэлах на уровне 90% теоретической представляется трудной задачей.

2. Отработка такого режима виброуплотнения, который обеспечил бы достаточно равномерное распределение топлива по всей высоте твэлов. Высота активной зоны твэла для реактора БН-350 составляет ~ 1100 мм, а для тепловых реакторов (РБМК и ВВЭР-1000) ~ 3500 мм. Отклонение от заданной плотности, по-видимому, не должно превышать 3—5%. Достичь этого на столь большой длине твэла не так легко.

3. Изучение поведения оболочек, особенно циркониевых, во время виброуплотнения таких длинных твэлов, поскольку плотная спеченная  $UO_2$  является хорошим абразивным материалом. Некоторые исследователи считают, что большинство из этих вопросов может быть решено относительно легко. Это позволяет, по их мнению, предположить, что твэлы с виброуплотненным топливом, и в первую очередь со смешанным уран-плутониевым, могут заменить твэлы с таблеточным сердечником [4]. Однако убедительная сравнительная оценка различных способов снаряжения твэлов возможна лишь после дальнейших серьезных исследований.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Решетников Ф. Г. и др. «Атомная энергия», 1977, т. 43, вып. 5, с. 408.
2. Karsten G. «Trans. Amer. Nucl. Soc.», 1974, v. 19, N 1, p. 19.
3. Hilbertetol R. Ibid., p. 135.
4. Helfrid W. «Lahr. Nucl. Techn.», 1976, v. 31, N 2, p. 183.