

НИЗКООБОГАЩЕННОЕ ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО НА ОСНОВЕ УРАН-ЦИРКОНИЕВОГО КАРБОНИТРИДА: РЕАКТОРНЫЕ ИСПЫТАНИЯ И ПОДГОТОВКА К ИССЛЕДОВАНИЯМ НА КРИТИЧЕСКИХ СБОРКАХ

Сикорин С.Н., Кузьмин А.В., Мандик С.Г., Полозов С.А., Григорович Т.К.
(Научное учреждение «ОИЭЯИ–Сосны», Минск, Беларусь),
Тухватулин Ш.Т., Бахин А.Н.(АО «НИИ НПО «ЛУЧ», Подольск, Россия),
Ижutow А.Л. (АО «ГНЦ НИИАР», Димитровград, Россия)

Введение

В настоящее время в качестве возможных перспективных видов ядерного топлива рассматриваются карбид урана, нитрид урана, силицид урана и сульфиды урана. Однако основное внимание уделяется нитриду урана, который продемонстрировал теплофизические и прочностные свойства и рассматривается как перспективное керамическое урановое топливо, способное заменить диоксид урана. Нитридное топливо имеет теплопроводность в области рабочих температур в ~ 7 раз выше и плотность в 1,3 раза выше, чем у оксидного топлива; хорошую совместимость с оболочками ТВЭЛов из нержавеющей сталей. Наряду с несомненными преимуществами мононитридное топливо имеет существенный недостаток, оказывающий влияние на выбор температурного режима его эксплуатации в реакторах – низкую термохимическую стабильность. Дело в том, что при температуре выше 1950 К в вакууме или атмосфере, не содержащей азот, наблюдается диссоциация мононитрида, приводящая к быстрому смещению исходного состава за пределы области гомогенности, сопровождаемому появлением фазы металлического урана.

Коллективом сотрудников АО «НИИ НПО «ЛУЧ» разработано топливо на основе уран-циркониевого карбонитрида (UZrCN) с низким содержанием примеси кислорода (менее 0,1 масс.%), являющееся логической модификацией UN, сохраняющей все положительные качества мононитрида, и в то же время обладающей более высокотемпературной стабильностью. Необходимо отметить, что все без исключения свойства уран-циркониевого карбонитрида имеют вероятностный характер, большую дисперсию, а именно, конкретная технология изготовления топлива определяет стехиометрию, количество и состав загрязнений, структуру топлива. Поэтому особое внимание следует уделять технологии получения и примесей, а именно примеси кислорода, так как уровень примесей кислорода в топливной карбонитридной композиции является основным технологическим фактором, определяющим ее эксплуатационные качества, прежде всего распухание, газовыделение и, по-видимому, совместимость с оболочкой ТВЭЛА. Уран-циркониевое карбонитридное топливо со сниженным содержанием примеси кислорода обладает рядом преимуществ над конкурентами, а именно: по сравнению с диоксидом урана у него выше плотность делящегося элемента в 1,3 раза; выше теплопроводность в 10 раз; выше температура эксплуатации на 700 К, а в отличие от мононитрида урана у него повышенная термохимическая стабильность (более высокая температура эксплуатации на 1300 К) [1]. Сравнение ключевых характеристик топлив приведено в таблице 1.

Основная проблема, которая препятствует широкому использованию этого топлива – малоизученность его поведения при облучении, особенно при высоком выгорании. Для решения этой проблемы планируется реализовать эксперимент в реакторе СМ-3 АО «ГНЦ НИИАР» до достижения выгорания ≈ 40 % fima. Параметры реакторного эксперимента: температура в центре топливной таблетки – не более 1600 К, длительность реакторного эксперимента – 5 лет, энерговыделение – не более 550 Вт/см³.

Сравнение ключевых характеристик видов топлива [1,2]

Характеристика		UO ₂	UN	U-Zr-C-N
Плотность ядер U	теоретическая, г/см ³	10,97	13,63	13,35
Теплопроводность, Вт/м·К		3,0	26,0	32,0
Содержание примеси кислорода, масс. %		–	< 0,15	< 0,1

Для реализации программы дореакторных и реакторных экспериментов в 2017 г. была изготовлена и выпущена партия топливных таблеток в количестве 128 шт. Параметры изготовленных образцов топлива приведены на данном слайде. Из таблиц следует, что топливные таблетки высотой 5 мм и диаметром 8 мм имеют обогащение 19,75 % по изотопу U-235. Эквимоларность по C–N оптимальна для обеспечения наилучшего сочетания теплофизических, прочностных, реологических и других характеристик карбонитридной композиции.

1. Конструкция экспериментальной капсулы и облучательного устройства

Для проведения реакторных испытаний таблеток UZrCN при выгорании 5, 15 и 40 % была разработана экспериментальная капсула, устанавливаемая в облучательное устройство. Экспериментальная капсула, как показано на рис. 1, представляет собой герметичный цилиндрический молибденовый сосуд с толщиной стенок 4 мм, к верхнему и нижнему торцу которого приварены заглушки. Все таблетки устанавливаются по плотной посадке в негерметичную защитную вольфрамовую трехсекционную оболочку толщиной 2,0 мм. Снаружи вольфрамовой оболочки расположен герметичный молибденовый чехол. Между вольфрамовой трехсекционной оболочкой и стенкой капсулы обеспечен зазор 300 мкм, внутренний объем капсулы будет заполнен чистым гелием (под избыточным давлением ~0,01 МПа). В одной капсуле будут размещаться семнадцать таблеток. Облучательное устройство состоит из экспериментальной капсулы, расположенной внутри защитного корпуса из жаропрочной стали (ЭП 912-ВД или нержавеющая сталь). Во время облучения стальной корпус будет находиться в контакте с водой при температуре между 50 и 70 °С. В состав облучательного устройства также входит внешний экран из гафния, поглощающий нейтроны, задачей которого является выравнивание энерговыделения в ходе эксперимента по облучению. Испытания облучательных устройств планируется проводить в каналах 10 и 11 второй группы отражателей исследовательского реактора СМ-3 (рис. 2).

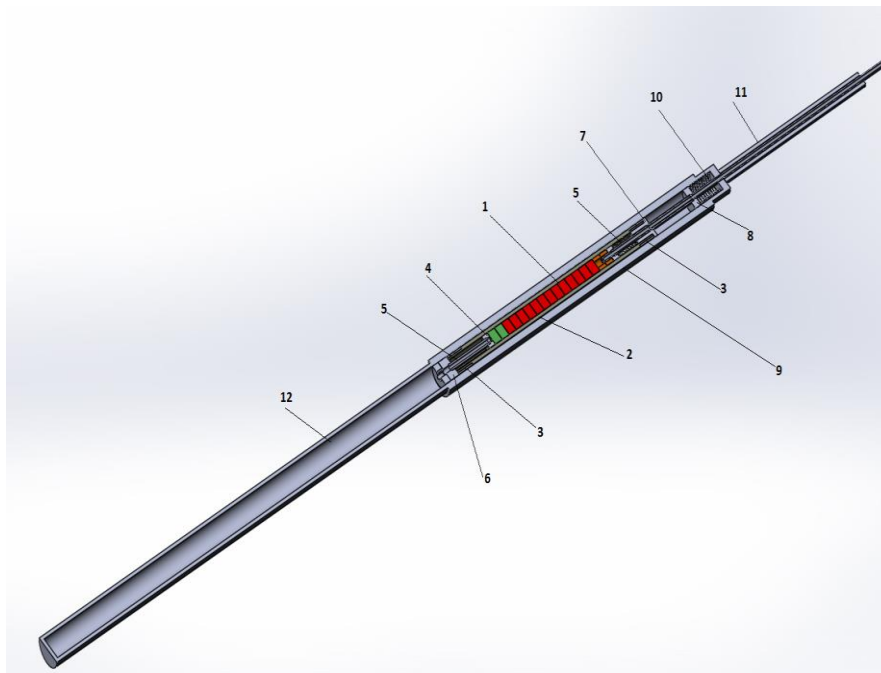


Рис. 1. Схематическое изображение экспериментальной капсулы:

- 1 – топливный столб; 2 – вольфрамовая оболочка; 3 – концевые пружины (4 шт.);
 4 – вольфрамовый столб; 5 – Мо трубка; 6 – нижний дистанционатор молибденовой трубки;
 7 – внутренний фиксатор ТЭП чехла (W); 8 – верхний дистанционатор молибденовой трубки;
 9 – герметичный молибденовый чехол; 10 – узел термокомпенсации;
 11 – Мо трубка для вывода ТЭП; 12 – объем для сбора ГПД

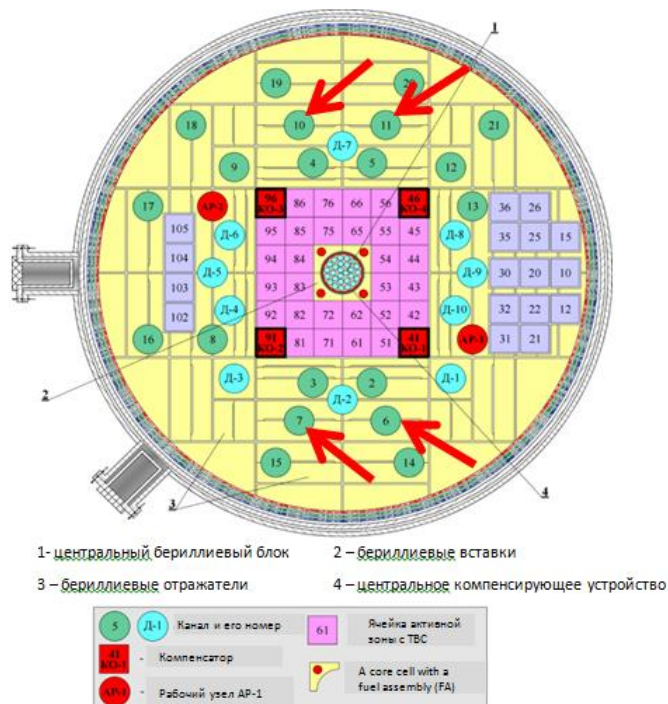


Рис. 2. На диаграмме показано поперечное сечение активной зоны исследовательского реактора СМ-3

2. Подтверждающие расчеты

Расчет нейтронно-физических параметров эксперимента проводился с помощью компьютерной программы MCU-RR [3], а использованные для проведения

эксперимента параметры перечислены в таблице. В компьютерной программе использован алгоритм решения уравнения нейтронного переноса методом Монте-Карло. Целью нейтронно-физических расчетов являлось определение геометрических характеристик поглощающего гафниевого экрана для обеспечения максимального энерговыделения в топливе UZrCN до 550 Вт/см^3 внутри облучательного устройства, размещенного в жаропрочной капсуле из нержавеющей стали. При расчетах брались условия в активной зоне, соответствующие средней и конечной точкам кампании. Результаты нейтронно-физических расчетов были использованы для определения внешнего диаметра гафниевого экрана, равного 59,5 мм, и толщины стенки, равной 2,5 мм. Размеры экрана были выбраны таким образом, чтобы обеспечить равномерность отвода водой тепла, выделяющегося в первичном контуре.

На основании расчетных значений плотности нейтронного потока внутри экспериментальных капсул для реактора СМ-3, работающего при мощности 90 МВт, была проведена оценка длительности проведения испытаний. Для достижения выгорания 40 % по U-235 требуется проведение примерно 25–26 кампаний (т.е. более 1200 суток). На основании расчетного значения энерговыделения для таблеток UZrCN , было показано, что целевое значение энерговыделения можно обеспечить путем незначительного увеличения толщины гафниевого экрана.

Теплофизические расчеты экспериментальной капсулы и облучательного устройства проводились с целью подбора величины зазора между ними, при котором температура молибденовой оболочки на протяжении всего периода испытаний не превышала 800 К, а температура в центре топливной таблетки была ниже 1600 К. При этом энерговыделение в топливных и конструкционных материалах задавалось по результатам нейтронно-физических расчетов.

Расчеты проведены с использованием программного комплекса конечно-элементного анализа ANSYS Mechanical [4] в осесимметричной постановке с учетом аксиальных потоков тепла и теплообмена излучением между элементами конструкции облучательного устройства. В качестве граничных условий на Мо оболочке задавалось условие конвективного теплообмена с теплоносителем, а на торцевых поверхностях расчетной области заданы адиабатные условия. В расчетах учитывалось температурное расширение материалов, излучение и контактное тепловое сопротивление. Энерговыделение в топливных таблетках учтено согласно табл. 2. Расчет проводился на упорядоченной сетке с общим количеством элементов около 35 000.

Таблица 2

Расчетное значение энерговыделений в материалах облучательного устройства

Объект	Расчетное энерговыделение, Вт/см^3
UZrCN	520,00
W	52,08
Mo	20,83
Сталь	17,71

Величины зазоров между элементами облучательного устройства варьировались и были приняты следующими:

- между топливным столбом и защитным вольфрамовым чехлом в расчетах закладывался зазор 10 мкм;
- между защитным вольфрамовым чехлом и молибденовой оболочкой – 300 мкм;
- между молибденовой оболочкой и стальной ампулой – 200 мкм.

Результаты расчетов температуры топлива и элементов конструкции облучательного устройства представлены на рис. 3.

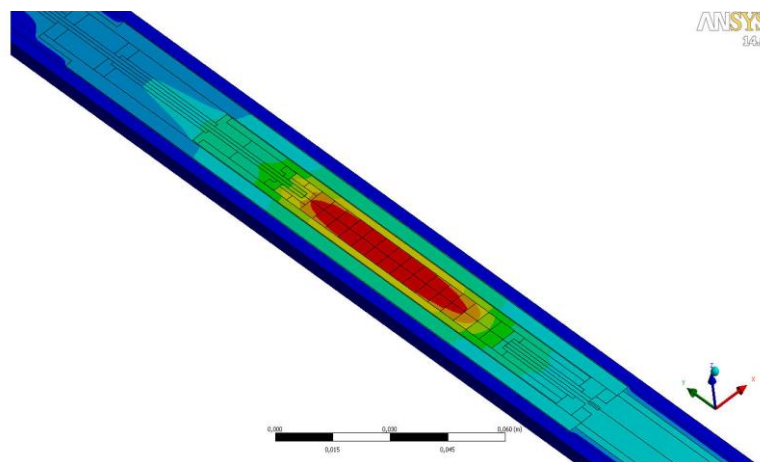


Рис. 3. Температурное поле в экспериментальной капсуле (с учетом контактов, излучения, теплового расширения)

Из расчетов следует, что при заданных параметрах реакторного эксперимента с учетом теплофизических свойств материалов экспериментальной капсулы и облучательного устройства, выполняется условие непревышения температуры топливных таблеток. Данный расчет выполнен при осесимметричной постановке задачи, т.е. с обеспечением идеальных условий сборки экспериментальной капсулы в реальных условиях возможно нарушение симметричности, поэтому были рассмотрены следующие схемы экспериментальной капсулы с касанием вольфрамового чехла молибденовой оболочки. При анализе эффекта эксцентриситета зазор между охранным чехлом из стали и стальным корпусом не учитывался. Результаты расчета несимметричной задачи приведены на рис. 4. На основании проведенных температурных расчетов можно сделать вывод о том, что смещение топливного столба снижает температуру топлива минимум на 90 К. Максимальный перегрев молибденовой оболочки не превысит 80 К.

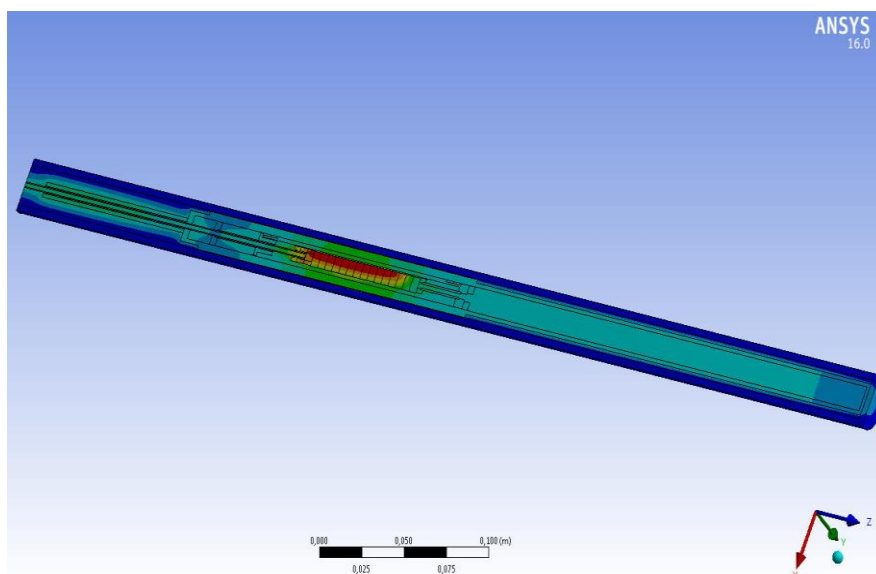


Рис. 4. Температурное поле экспериментальной капсулы при смещении топливного столба

3. Методический эксперимент

При подготовке к реакторным экспериментам до достижения глубоких выгораний и подтверждения расчетов был реализован реакторный методический

эксперимент. Методические реакторные испытания облучательного устройства с экспериментальной капсулой с уран-циркониевым карбонитридным топливом проводились в ячейке № 11 отражателя реактора СМ-3 с 01.06.2019 по 29.06.2019. Суммарное время облучения составило 23,28 эффективных суток.

Изменение температуры топлива, молибденовой оболочки экспериментальной капсулы и давления в полостях ампулы и подвески приведено на графике (рис. 5).

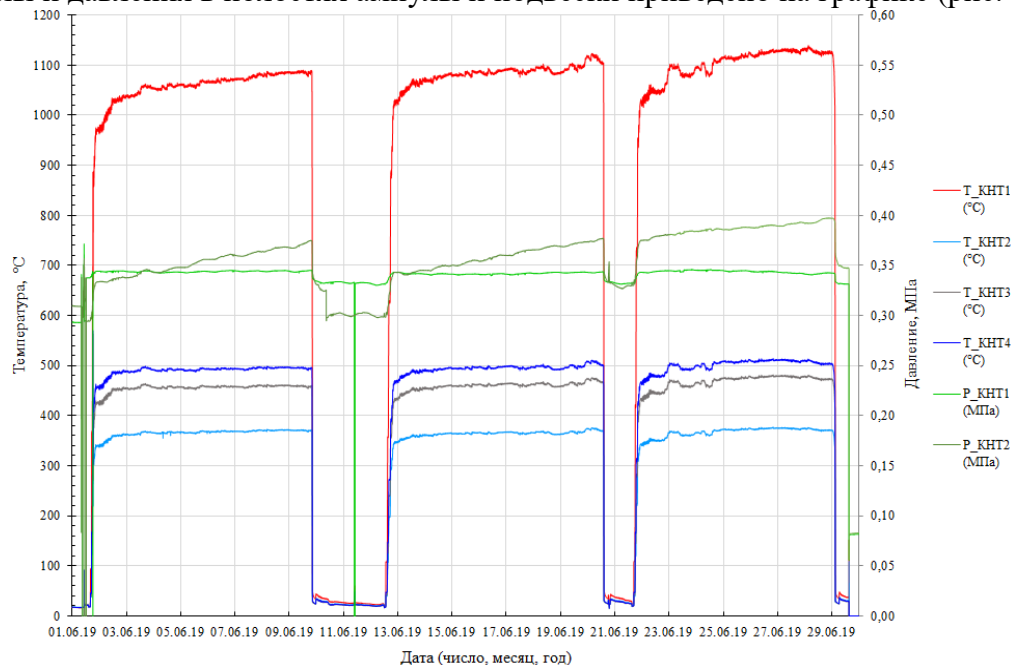


Рис. 5. Изменение температуры и давления в облучательном устройстве «ОУ КНТ»

Как видно из графика, приведенного на рис. 5, в процессе эксперимента происходило повышение температуры топлива. Рост температуры топливной таблетки обусловлен двумя факторами. В каждой кампании РУ СМ-3 при работе реактора на постоянном уровне мощности вследствие перемещения компенсирующих органов происходит постоянный рост энерговыделения и плотности нейтронного потока в каналах отражателя. Также рост температуры топливной таблетки обусловлен изменением теплопроводности газовой среды внутри экспериментальной капсулы из-за выхода из топлива газообразных продуктов деления и, возможно, выхода азота, имеющих теплопроводность в несколько раз меньшую, чем у гелия. Влияние теплопроводности хорошо прослеживается, так как уровень температуры топлива возрастал в каждой последующей кампании, в то время как температура молибденовой капсулы изменялась незначительно. Разность между температурой топлива и температурой молибденовой капсулы по ТЭП, размещенным на одной высоте, составила 686 °C в первую кампанию, 710 °C и 730 °C во вторую и третью кампании соответственно (приведены средние значения за кампанию). Кроме того, необходимо учитывать, что плотность потока нейтронов и энерговыделение зависят от распределения выгорания топлива в активной зоне реактора и от загрузки экспериментальных каналов, меняющихся каждую кампанию.

Среднее значение объемного энерговыделения в исследуемых таблетках за время методических реакторных испытаний составило 516 Вт/см³. Выгорание, достигнутое в исследуемых таблетках – 0,63 % 235-U.

4. Послереакторные исследования

После проведения методического реакторного эксперимента была реализована программа послереакторных исследований облученных образцов.

4.1 Результаты гамма-сканирования экспериментальной капсулы

На рисунке 6 представлены распределения скоростей счета для линий продуктов деления Zr-95, Cs-137 и Nb-95, полученные при гамма-сканировании экспериментальной капсулы. Начало координат на диаграмме соответствует нижнему краю капсулы.

По распределениям интенсивности нуклидов было определено расположение топливного столба и место локализации Cs-137 в экспериментальной капсуле. Как видно из рисунка, весь наработанный в процессе облучения Cs-137 полностью остался в топливе. Из рисунка 6 также видно, что на краях топливного столба основных таблеток имеются всплески интенсивности линий Zr-95 и Nb-95, которые, вероятнее всего, связаны с «эффектом поверхности»: выгорание топлива на торцевых поверхностях крайних таблеток в столбе несколько выше, чем в среднем по объему таблетки. Значительных спадов интенсивности для линий Zr-95, Nb-95 в районе расположения таблеток с обогащением 19,75 % не наблюдается, что свидетельствует об отсутствии разрывов в топливном столбе.

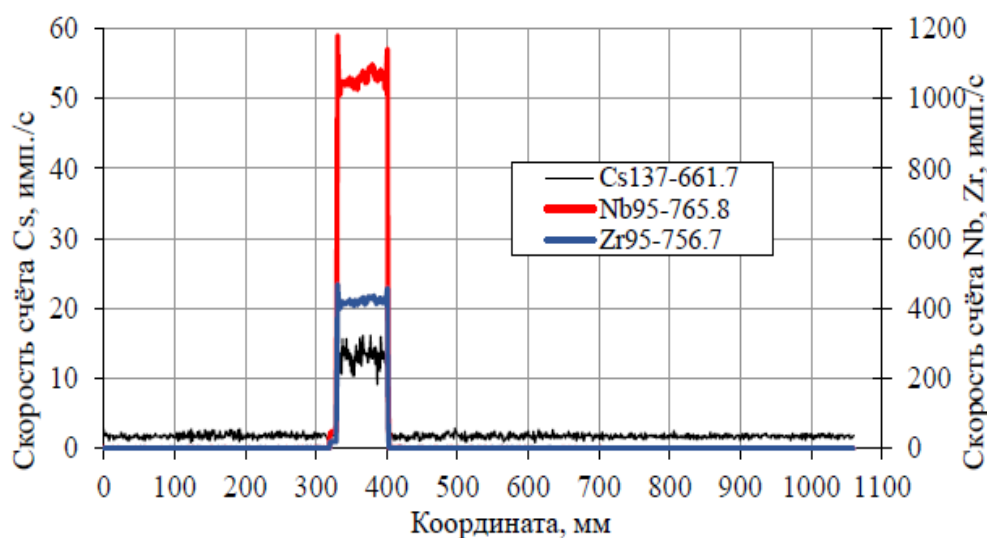


Рис. 6. Распределение интенсивности линий некоторых продуктов деления по длине экспериментальной капсулы

4.2 Результаты рентгеноструктурного анализа топливных таблеток

Рентгеноструктурный анализ топлива проводили на образцах из двух таблеток, расположенных сверху топливного столба (группа таблеток № 12–15, номера таблеток не идентифицированы). Рентгеноструктурные исследования одного из образцов выполняли без какой-либо специальной подготовки поверхности таблетки. Поверхность другой таблетки перед исследованием подвергали шлифовке и полировке. Рентгеноструктурные исследования таблетки с обработанной поверхностью выполняли в двух поперечных сечениях с расстоянием между ними ~ 1 мм (т.е. у поверхности и ближе к середине таблетки). Для этих целей после исследования структуры у поверхности таблетки образец вновь подвергался шлифовке на глубину около 1 мм и полировке.

Полученные в результате исследования рентгенограммы приведены на рис. 7. Рентгенограмма позволяет идентифицировать кубическую гранецентрированную решетку (пространственная группа Fm-3m). Максимумов, принадлежащих другим структурам, на рентгенограммах не обнаружено. Параметр кристаллической решетки (a) составляет $4,892 \pm 0,0005$ Å. Таким образом, согласно паспортным данным фазовый состав топлива под облучением не изменился.

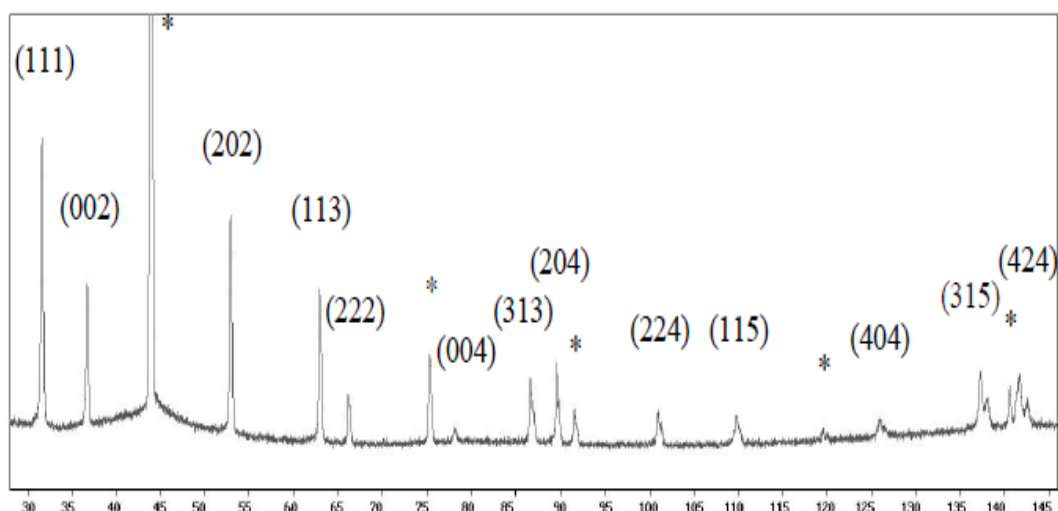


Рис. 7. Рентгенограмма образца с обработанной поверхностью ближе к центру таблетки.
Звездочками отмечены дифракционные максимумы алмаза

4.3 Результаты исследований структуры топливных таблеток после облучения

Металлографический анализ структуры топлива выполняли на таблетках, расположенных в центре топливного столба.

Металлографический анализ структуры топлива этого образца выполняли на двух уровнях по высоте таблетки: у поверхности и ближе к центру таблетки. Для этих целей после исследования структуры у поверхности таблетки образец вновь подвергался шлифовке на глубину около 1 мм, затем – полировке и химическому травлению.

Общий вид образца после первой шлифовки, которая проводилась для выравнивания поверхности таблетки, и полировки приведен на рис. 8. Трещин по телу таблетки нет, макроструктура топлива практически однородна по сечению таблетки и представлена на рис. 8, микроструктура приведена на рис. 9.

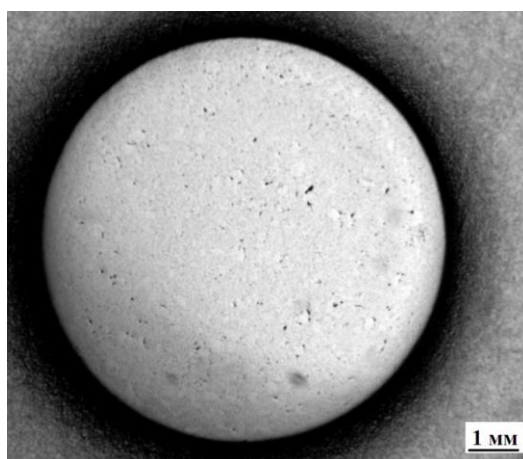


Рис. 8. Макроснимок таблетки после первой шлифовки и полировки

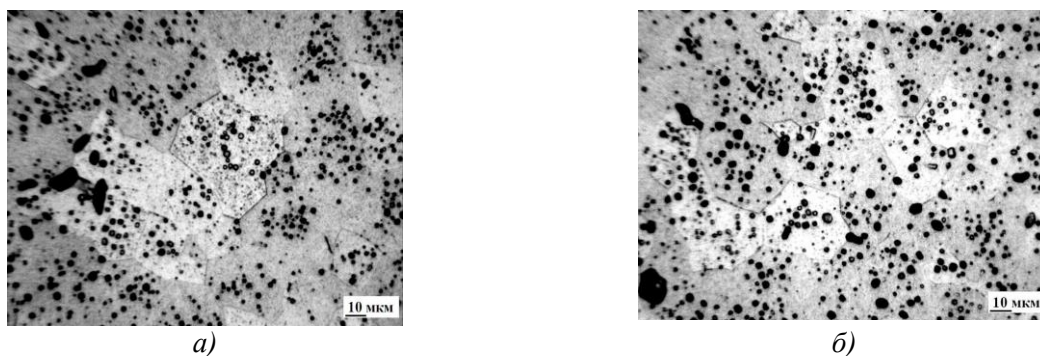


Рис. 9. Микроструктура топлива в центре (а), середине (б) таблетки после первой шлифовки и травления

5. Критические сборки на быстрых и промежуточных нейтронах с UZrCN топливом

На критических стендах «Гиацинт» и «Кристалл» [5–7] государственного научного учреждения «Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны» НАН Беларуси планируется исследовать критические сборки на быстрых и промежуточных нейтронах, моделирующих физические особенности активных зон перспективных ядерных реакторов, охлаждаемых газовыми теплоносителями.

В критических сборках будут использоваться топливные кассеты с твэлами типа 1 и типа 2. Твэл состоит из топливного сердечника, оболочки и концевых деталей (рис. 10). Топливный сердечник состоит из цилиндрических таблеток диаметром 10,75 мм из уранциркониевого карбонитрида $U_{0,9}Zr_{0,1}C_{0,5}N_{0,5}$. Общая длина топливного сердечника – 500 мм. Лигатурная масса топливного сердечника – 540 г, общая масса урана – 489 г, масса урана-235 – 96,7 г. Зазоры между таблетками топливного сердечника и оболочкой твэлов заполнены гелием при 0,11–0,12 МПа. Общая длина твэлов – 620 мм. Оболочка твэла изготовлена из трубы с наружным диаметром 12 мм и толщиной стенки 0,6 мм. Материал оболочки, нижней и верхней концевых деталей твэла типа 1 – нержавеющая сталь, твэла типа 2 – ниобиевый сплав.

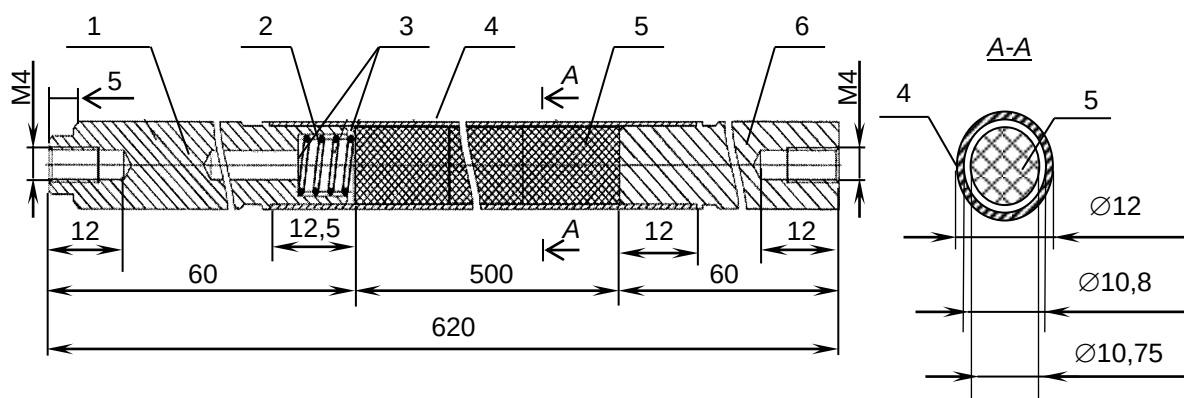


Рис. 10. Твэл типа 1 (типа 2):
1 – пробка нижняя; 2 – пружина; 3 – прокладки; 4 – оболочка; 5 – топливный сердечник;
6 – пробка верхняя

Критическая сборка на быстрых нейтронах представляет собой гексагональную решетку из топливных кассет с твэлами типа 1 и типа 2 и отражателем из бериллия и нержавеющей стали. Картограмма загрузки быстрой критической сборки, планируемой к исследованию, представлена на рис. 11.

Критические сборки на промежуточных нейтронах с гидридом циркония в качестве замедлителя содержат топливные кассеты с твэлами типа 1 и типа 2, кассеты для стержней СУЗ, кассеты гидридциркониевого отражателя и блоки стального отражателя в виде гексагональной решетки. Картограммы загрузки промежуточных критических сборок, планируемых к исследованию, представлены на рис. 12. Описание конструкции, состава и результатов расчетов этих критических сборок представлены в [8].

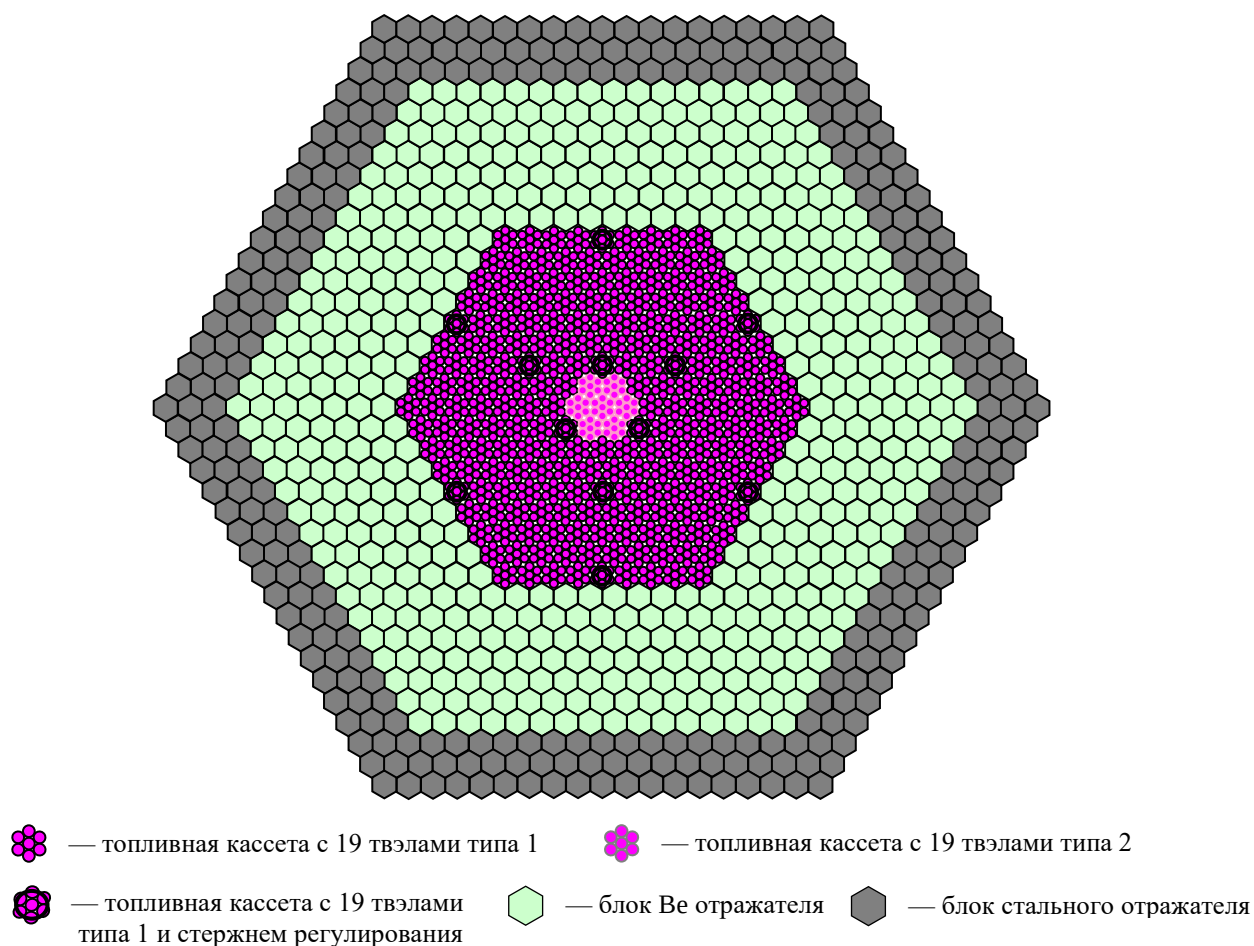


Рис. 11. Картограмма загрузки быстрой критической сборки

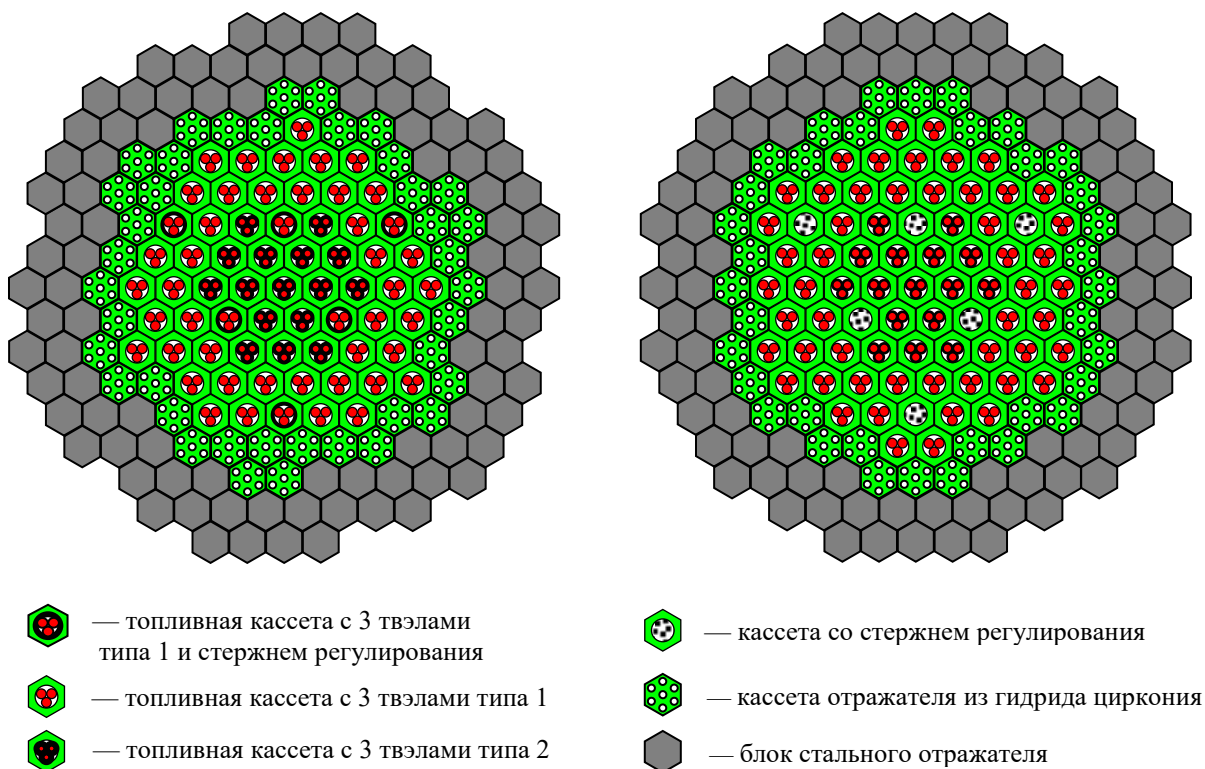


Рис. 12. Картограммы загрузки критических сборок с гидридциркониевым замедлителем

Заключение

В результате работы по исследованию свойств и характеристик топлива на основе уран-циркониевого карбонитрида в условиях облучения был проведен методический реакторный эксперимент в реакторе СМ-3. Испытания облучательного устройства «ОУ КНТ» проводились в ячейке № 11 отражателя реактора СМ-3. Время облучения устройства составило 23,3 эффективных суток. Среднее значение объемного энерговыделения в исследуемых таблетках за время методических реакторных испытаний составило 516 Вт/см³. Выгорание, достигнутое в исследуемых таблетках – 0,63 fifa.

В результате неразрушающих послереакторных исследований (гамма-сканирования экспериментальной капсулы) выявлено, что топливный столб не имеет разрывов, длина топливного столба после облучения не изменилась в пределах погрешности измерения. Также показано, что накопленный в процессе облучения цезий-137 полностью остался в топливе.

В результате проведенных материаловедческих исследований установлено, что в результате доспекания топлива размеры топливных таблеток (высота и диаметр) уменьшились в процессе облучения приблизительно на 1 %, а плотность увеличилась приблизительно на 3 %.

Микроструктура топлива характеризуется равноосными зернами. Топливо в процессе облучения сохранило однофазную кристаллическую структуру с кубической гранецентрированной решеткой (пространственная группа Fm-3m), но имеет место незначительное уменьшение параметра кристаллической решетки.

Проведена подготовка к реакторному эксперименту, направленному на получение данных о поведении уран-циркониевого карбонитридного топлива при выгорании 5% fifa.

Разработана конструкторская документация на критические сборки, содержащие

тепловыделяющие сборки с ядерным топливом на основе низкообогащенного UZrCN, имитирующие физические особенности активных зон перспективных быстрых и промежуточных реакторов с газовым теплоносителем. Элементы этих критическихборок изготовлены, идет подготовка к экспериментам.

Список литературы

1. *Алексеев С.В., Зайцев В.А.* Нитридное топливо для ядерной энергетики. М.: Техносфера, 2013. 240 с.
2. *Котельников Р.Б., Башлыков С.Н., Кашианов А.И., Меньшикова Т.С.* Высокотемпературное ядерное топливо. М.: Атомиздат, 1978. 432 с.
3. *Гомин Е.А.* Статус MCU-4 // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. Вып.1. 2006. С. 6–32.
4. ANSYS Mechanical User Guide, ANSYS Inc. Southpointe Technology Drive. Canonsburg, 2012.
5. Исследовательские ядерные установки государств-участников Содружества Независимых Государств / Ред. сост. М.К. Виноградов, В.Н. Федунин. – М.: Гелиос АРВ, 2016. С. 16–27.
6. Исследовательские ядерные установки Государственного научного учреждения «Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны» Национальной академии наук Беларуси / Сост. Сикорин С.Н., Солтан И.С., Григорович Т.К. – РУП «Издательский дом «Беларуская навука», 2018. С. 17–29.
7. *Кузьмин А.В., Михалевич А.А., Сикорин С.Н.* Научное сопровождение развития атомной энергетики в Республике Беларусь. М.: Беларуская навука, 2023. С. 262–276.
8. *Sikorin S., Kuzmin A., Mandzik S., Polazau S., Hryharovich T., Tukhvatulin Sh., Galev I., Bakhin A., Vishnevsky V., Mokrushin A., Izhutov A.* Low enrichment nuclear fuel based on uranium-zirconium carbonitride: reactor tests and preparation for studies at critical assemblies // Nonlinear Phenomena in Complex Systems. Vol.25. № 2, 2022. P. 177–188.