

# НЕКОТОРЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УРАН-ГАДОЛИНИЕВОГО ОКСИДНОГО ТОПЛИВА



*С.А. Сиренко, А.И. Большак, В.К. Яковлев, Е.А. Слабоспицкая,  
О.В. Данилова, Н.М. Роечко*

*ННЦ “Харьковский физико-технический институт”,  
61108, г. Харьков, Украина*

Проведены исследования уран-гадолиниевого оксидного топлива при содержании  $Gd_2O_3$  от 3 до 10 мас.%. Изучено влияние температуры и времени спекания, а также содержания выгорающего поглотителя  $Gd_2O_3$  на характеристики спеченных таблеток.

## ВВЕДЕНИЕ

Повышение технико-экономических показателей АЭС связано с увеличением выгорания ядерного топлива. Увеличение компании 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 (ВП). Такой способ имеет ряд преимуществ перед применением ВП как самостоятельного конструкционного элемента. Введение выгорающего поглотителя в виде окиси гадолиния ( $Gd_2O_3$ ) 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 тепло-выделяющих стержнях (ТВС), уменьшается паразитное поглощение нейтронов, отпадает необходимость в транспортировке и хранении облученных выгорающих поглотителей (ВП). Гадолий имеет высокое поперечное сечение захвата нейтронов и не вызывает образования нежелательных дочерних продуктов, обладает хорошей совместимостью с  $UO_2$ . Содержание  $Gd_2O_3$  в штатных твэлах достигает 9 мас.% [2], а в опытных 12 мас.% [3].

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

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 предварительно смешивались в нужных пропорциях методом квартования. Окончательное перемешивание осуществлялось на планетарной мельнице в течение 2 ч. Смешивание приготовленной порошкообразной шихты со связующим (10 мас.% парафина, растворенным в пропорции 1:5 бензином) проводили в универсальном лопастном смесителе в течение 2 ч. В этом же смесителе, не извлекая материал, проводили его сушку при температуре 80°C в течение часа при постоянном перемешивании.

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 на связующем с выгорающим поглотителем производили двухсторонним прессованием в стальных прессформах на гидравлическом прессе П6320 при удельном давлении 1000 МПа. Спрессованные заготовки топливных таблеток проходили контроль внешнего вида на наличие дефектов и передавались на операцию отгонки связующего и спекания. Таблетки на связующем в состоянии засыпки помещали в графитовые тигли, футерованные молибденовым прокатом. Процесс отгонки связующего проводили при остаточном давлении  $10^{-3}$  мм рт.ст. в течение 4 ч. Поднимали температуру печи до 300°C, скорость подъема температуры составила 50°C/ч. При этой температуре исследуемые таблетки выдерживали 1 ч и охлаждали до комнатной температуры. 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  $10^{-3}$  мм рт.ст. при различных температурах и временах. Контроль плотности спеченных таблеток производили методом гидростатического взвешивания с точностью  $\pm 0,01$  г/см<sup>3</sup>.

Для измерения содержания урана в  $(U,Gd)O_2$ -топливе и определения отношения O/U использовался термогравиметрический метод с погрешностью определения  $\pm 0,5\%$ .

Производился металлографический анализ структуры спеченных таблеток.

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

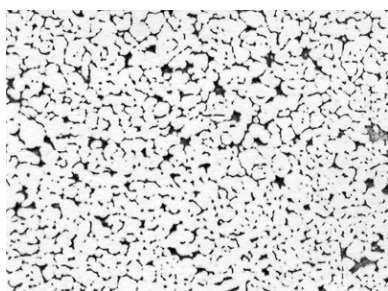
### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Значения абсолютной и относительной плотности, кислородного коэффициента O/U таблеток с различным содержанием  $Gd_2O_3$ , спеченных при различных температурах и временах выдержки представлены в таблице.

Характерная структура спеченных (U,Gd) $O_2$  таблеток представлена на рис.1. Наблюдается равномерная структура без видимых включений с некоторой долей пор и размером зерна 10...20 мкм.

Обнаруживается снижение плотности спеченных (U,Gd) $O_2$  таблеток относительно теоретической при содержании  $Gd_2O_3$  2...4 % (рис.2).

Для сравнения на рис.3 представлена зависимость теоретической плотности твердого раствора от содержания  $Gd_2O_3$ .



20 мкм

Рис 1. Микроструктура спеченных таблеток  $UO_2+10\%Gd_2O_3$

Рентгеноструктурный анализ показал что, оба образца ( $UO_2$  и  $UO_2+10\%Gd_2O_3$ ) имеют одинаковую кристаллическую решетку - гранецентрированный куб. Дополнительных дифракционных линий на рентгенограммах образцов не обнаружено. Дифракционные линии образца из  $UO_2+10\%Gd_2O_3$  сильно размыты. Параметры кристаллической решетки обоих образцов определялись по дифракционной линии под большими углами отражения (для  $UO_2$  -  $\vartheta = 69^\circ 05'$ ; для  $UO_2+10\%Gd_2O_3$  -  $\vartheta = 69^\circ 53'$ ). Параметры решетки:  $UO_2 - a = 5,4743 \pm 0,0009$  А;  $UO_2+Gd_2O_3 - a = (5,4458 \pm 0,0009)$  А.

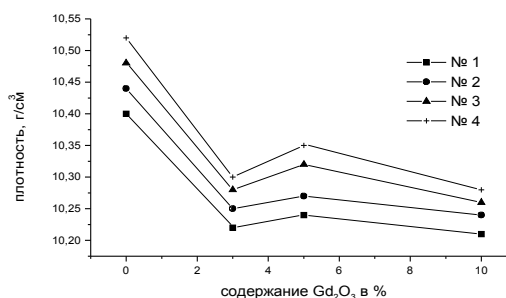


Рис.2. Зависимость плотности спеченных таблеток от температуры, времени спекания и содержания  $Gd_2O_3$ : №1-1700 °С, 2 ; №2-1800 °С, 2 ч; №3-1800 °С, 4 ч; №4-1800 °С, 6 ч

### ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Критические свойства топлива ( отношение O/U, плотность, параметр решетки и др.) взаимосвязаны и каждое из них определяется структурой твердого раствора  $UO_2-GdO_3$ . Отмеченное в данной работе снижение плотности спеченных (U,Gd) $O_2$ -таблеток в диапазоне содержания  $Gd_2O_3$  2...4 % соответствует данным работ [5,6,7]. В то же время в работе [8] плотность таблеток достигает максимального значения при содержании  $Gd_2O_3$  4...8 %.

### Основные параметры образцов $Gd_2O_3+UO_2$

Температура спекания, °С	Время спекания, ч	% содержание по массе, $Gd_2O_3+UO_2$	$\rho$ , г/см <sup>3</sup>	Относительная плотность, %	O/U
1700	2	0	10,40	0,951	1,99
		3	*10,22	0,943	2,01
		5	*10,24	0,951	2,03
		10	*10,21	0,962	2,06
1800	2	0	10,44	0,954	2,00
		3	10,25	0,946	2,01
		5	10,27	0,954	2,04
		10	*10,24	0,965	2,08
1800	4	0	10,48	0,958	2,01
		3	10,28	0,948	2,02
		5	10,32	0,958	2,04
		10	10,26	0,967	2,09
1800	6	0	10,52	0,962	2,01
		3	10,30	0,950	2,02
		5	10,35	0,961	2,06
		10	10,28	0,969	2,11

\* Данные, не соответствующие ТУ.

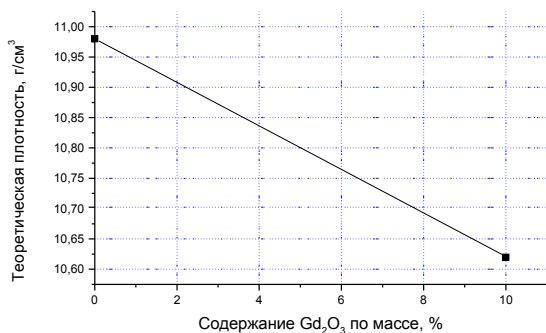


Рис.3. Зависимость теоретической плотности твердого раствора от содержания Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

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<sub>2</sub>-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.

Полученные результаты указывают на возможность при изготовлении (U,Gd)O<sub>2</sub>-топлива использования спекания в вакууме.

Рентгеноструктурный анализ показал, что спеченные таблетки с точностью до 5 мас.% являются в действительности твердым раствором UO<sub>2</sub>-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Параметр решетки образца UO<sub>2</sub>+10%Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> соответствует по данным работ [4,9] кристаллическую решетку - гранцентрированному кубу. Дополнительных дифракционных линий на рентгенограммах образцов не обнаружено. Таким образом, спеченные таблетки являются в действительности твердым раствором UO<sub>2</sub>-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Это объясняет отсутствие линий Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> на рентгенограммах образцов.

### ВЫВОДЫ

1. Значения плотности спеченных таблеток и кислородного коэффициента O/U в основном

соответствуют установленным требованиям к (U,Gd)O<sub>2</sub>-топливу.

2. При изготовлении (U,Gd)O<sub>2</sub>-топлива возможно применение спекания в вакууме.
3. В диапазоне содержания Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 2...4 мас.% происходит снижение плотности спеченных таблеток относительно теоретической.
4. Определен параметр решетки твердого раствора UO<sub>2</sub>+Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Установлено его соответствие с литературными данными [4,9].
5. Проведенные исследования позволяют изготавливать (U,Gd)O<sub>2</sub>-таблетки с заданными свойствами.

### 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, №3, с.-3-11.
4. 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.
5. J.Littlechild, G.Butler, G.Lester. *The production of burnable poison oxide fuel*. 1983, p.65.1-65.4.
6. R.Beals, J.Handwerk. Solid solutions in the system uranium-rate-earth oxides: I, UO<sub>2</sub>-Gd<sub>1,5</sub> // *J. Amer. Ceram. Soc.* 1965, v. 48, № 5, p. 271-274.
7. H.Assmann, M.Peehs, H.Roepenack. Survey of binary oxide fuel manufacturing and quality control // *Ibid.* 1988, v.153, p. 115-126.
8. S.Ho, K.Radford. Structural chemisrry of solid solution in the UO<sub>2</sub>-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> system // *Nucl. Technol.* 1986, v. 73, №3, p. 350-360.
9. 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. 1-63. 3.

## ДЕЯКІ ХАРАКТЕРИСТИКИ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УРАН-ГАДОЛІНІЄВОГО ОКСИДНОГО ПАЛИВА

С. А. Сіренко, О.І. Большак, В.К. Яковлев, Є. О. Слабоспицька, О. В. Данилова, Н. М. Роєнко

Проведені дослідження уран-гадолінієвого оксидного палива при вмісті Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> від 3 до 10 мас.%. Вивчено вплив температури і часу спечення, а також вмісту вигоряємого поглинача Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> на характеристики спечених таблеток.

## SOME DESCRIPTIONS OF EXPERIMENT URAN-GADOLINIUM OXIDE FUEL

S. A. Sirenko, A. I. Bolhak, V. K. Jakovlev, J. A. Slabospizkaja, O. V. Danilova, N. M. Rojenko

Conducted experiments on UO<sub>2</sub>-Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fuel with Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> content from 3 up to 10 weight percent. Determined the effect of temperature and time of thermal treatment as well as Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> content on the performance of fuel pellets.