

ИЗМЕНЕНИЕ РАЗМЕРОВ ТАБЛЕТОК ИЗ МОДИФИЦИРОВАННОГО ДИОКСИДА УРАНА В ПРОЦЕССЕ ОБЛУЧЕНИЯ

Божко Ю. В., Малыгин В. Б., Михеев Е. Н., Набойченко К. В., Новиков В. В.

Государственное учреждение федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»» (115409, г. Москва, Каширское ш., 31), rector@mephi.ru

Представлены результаты исследований размерной стабильности таблеток твэлов реактора ВВЭР-1000 из модифицированного диоксида урана в процессе облучения. Изменение размеров определяется процессами радиационного уплотнения и набухания топлива вследствие накопления продуктов деления. Впервые показано, что на начальной стадии облучения увеличение размеров таблеток твэлов контролируется увеличением параметра кристаллической решетки диоксида урана. Результаты могут быть использованы для проектирования и обоснования работоспособности твэлов энергетических реакторов, а также для изучения фундаментальных вопросов физики радиационных повреждений, связанных с накоплением и эволюцией радиационных дефектов в диоксиде урана.

Ключевые слова: диоксид урана, доспекание, облучение, параметр решетки, набухание.

THE DIFFERENCE IN THE SIZE OF THE MODIFIED URANIUM DIOXIDE PELLETS IN THE PROCESS OF IRRADIATION

Bozhko Y. V., Malygin V. B., Mikheev E. N., Naboychenko K. V., Novikov V. V.

State Institution Federal Autonomous Educational Establishment for Higher Vocational Education National Research Nuclear University MEPhI (115409, Moscow, Kashirskoye shosse, 31), rector@mephi.ru

In this work we demonstrate the results of the research into the size stability of the VVER-1000 reactor's fuel pellets of modified uranium dioxide in the process of irradiation. The difference in the size is defined by the densification and swelling processes due to accumulation of fission products. For the first time, we demonstrate that in the first stage of irradiation process the increase in the size of fuel pellets is controlled by the increase in the size of uranium dioxide cell. The results can be used in the design and justification of fuel rods efficiency as well as for fundamental research of radiation damage associated with accumulation and evolution of radiation defects in uranium dioxide.

Keywords: cell size, densification, irradiation, swelling, uranium dioxide.

Изменение размеров в процессе облучения – важнейшая характеристика ядерного топлива, определяющая выбор зазоров между сердечником и оболочкой, температурный режим работы твэла, его поведение в условиях аварии и напряженно-деформированное состояние оболочки. Принято считать, что размерные изменения топлива, в частности диоксида урана, контролируются процессами радиационного уплотнения и набухания.

В работе проведены исследования изменения размеров таблеток из модифицированного диоксида урана в процессе облучения. Результаты сопоставлены с ранее полученными данными по изменению размеров таблеток из диоксида урана штатной технологии [3]. Модификация проводилась с целью снижения сопротивления деформированию таблеток и увеличения размера зерна, что было достигнуто путем легирования диоксида урана алюмосиликатом и оксидом ниобия в количестве десятых долей процента. Работы по модификации состава и структуры оксидного топлива интенсивно ведутся в последнее время в нашей стране и за рубежом по программе повышения его выгорания в твэлах энергетических реакторов, однако,

информация об эксплуатационных свойствах, в частности, о размерной стабильности такого топлива весьма ограничена или отсутствует [6, 7].

Методика исследования размерной стабильности основана на непрерывной регистрации изменения высоты топливного столба с помощью специально разработанного радиационно-стойкого преобразователя перемещений. Для изотропных материалов, каким является диоксид урана, справедливы соотношения: $\Delta V/V = -\Delta P = 3\Delta L/L$, где ΔV – изменение объема, ΔL – изменение любого линейного размера, например высоты образца, ΔP – изменение плотности. Из последнего выражения следует, что для изучения закономерностей объемных изменений и пористости диоксида урана в процессе облучения достаточно измерять линейную деформацию топливного столба – ΔL . Методика и экспериментальные средства исследований представлены в работе [2].

Экспериментальные исследования выполнены на реакторе ИВВ–2. Использовались тонкостенные образцы в виде полых цилиндров с толщиной стенки 1,5 – 1,6 мм. Толщина стенки выбиралась из условия, чтобы расчетные термические напряжения, вызванные радиальным градиентом температуры, не превышали предела прочности материала при растяжении. Образцы имели форму втулок внешним диаметром 7,18 мм, внутренним – 4,00 мм. Высота образцов изменялась от 9,8 до 10,6 мм. Выбранные геометрические размеры таблеток обеспечивали проведение испытаний при энерговыделении до 600 Вт/см^3 , что соответствует реальной тепловой нагрузке топлива в твэле реактора ВВЭР – 1000. В установку загружалось 8 образцов. Общая высота топливного столба равнялась 8,156 мм. Обогащение образцов по U^{235} составляло 4,4 %. Плотность образцов равнялась $10,4 - 10,5 \text{ г/см}^3$, средний размер зерна – 15 – 16 мкм, кислородный коэффициент – 2,0035.

Температура образцов измерялась в их центральной отверстии с помощью стандартных реакторных термопар ВР5/20, и изменялась в процессе облучения в интервале 640 – 670 °С. Средняя расчетная температура образцов, определенная методом конечных элементов с использованием программных средств ANSYS, на 60 градусов ниже температуры, измеренной в центральной отверстии. Изменение высоты топливного столба в зависимости от выгорания показано на рис.1.

В процессе облучения, исключая первые 20–25 часов, наблюдается уменьшение высоты топливного столба, связанное с процессом радиационного уплотнения. Максимальное уменьшение высоты топливного столба равно 0,11 %, что соответствует изменению объема на 0,33 %. Процесс уплотнения завершается при выгорании $(7 - 8)10^{19}$ дел/см³. Полученная величина существенно меньше допустимых значений уменьшения объема, ограниченных в проекте твэла реактора ВВЭР – 1000 величиной 1,2 %.

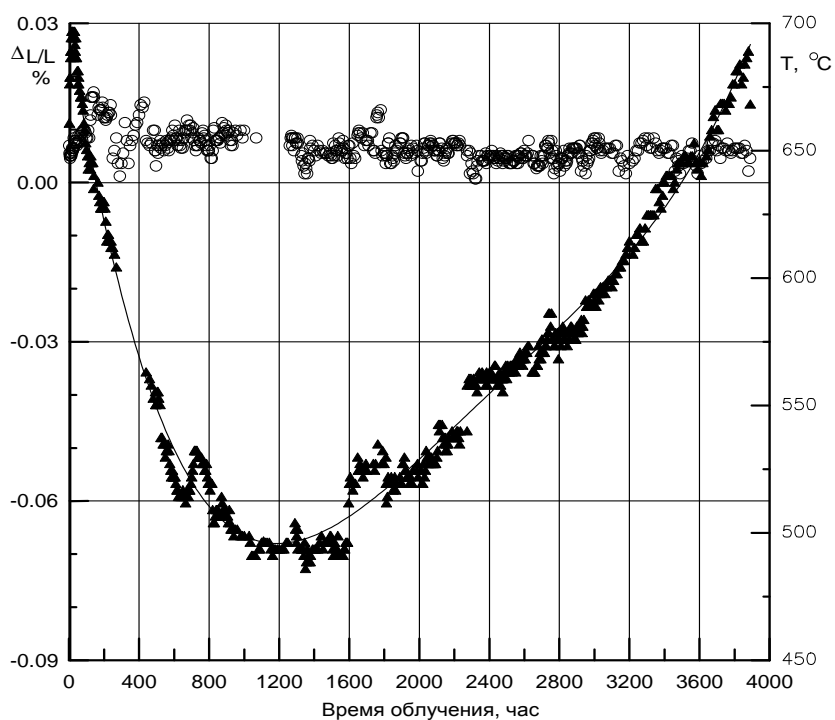


Рис.1. Зависимость изменения высоты топливного столба из таблеток модифицированного диоксида урана от времени облучения. Плотность деления $1,7 \cdot 10^{13}$ дел/см³с. ▲ – изменение высоты, ○ – изменение температуры

После выгорания 10^{20} 1/см³ начинается увеличение высоты столба образцов, причем скорость процесса постепенно возрастает до выгораний примерно $1,5 \cdot 10^{20}$ 1/см³. В дальнейшем до конца испытаний наблюдается распухание топлива с практически постоянной скоростью. В эксперименте достигнуто выгорание $2,4 \cdot 10^{20}$ 1/см³. В относительных единицах это составляет примерно 1 % от всех тяжелых атомов. Анализ показал, что скорость линейного распухания равна $8,2 \cdot 10^{-24}$ см/дел. Исходя из этого, можно получить, что скорость изменения объема при распухании равна $2,46 \cdot 10^{-23}$ см³/дел или 0,59 % на 1 % выгорания в относительных единицах. Скорость распухания диоксида урана, полученная путем непосредственного измерения изменения объема сердечника твэлов реактора ВВЭР–1000 после облучения до разных выгораний методом гидростатического взвешивания составляла 0,6 % на процент выгорания [4], что соответствует представленным нами значениям.

Сравнение объемных изменений исследованного топлива и топлива штатной технологии со средним размером зерна 10 мкм и различной начальной пористостью [3] в зависимости от выгорания показано на рис.2. Модифицированное топливо имеет лучшую размерную стабильность на начальной стадии облучения по сравнению с топливом штатной технологии. Это может быть следствием большего размера зерна и, возможно, низкого содержания пор малого размера, которые определяют величину радиационного уплотнения.

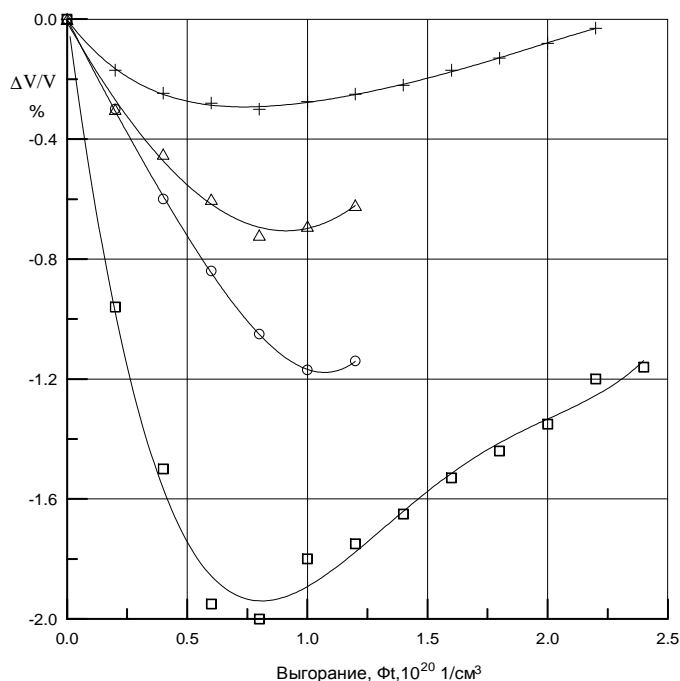


Рис.2. Кинетика изменения объема диоксида урана в процессе облучения
 + – данные настоящей работы, $T=590^{\circ}\text{C}$, пористость 5 %; Δ – диоксид урана штатной технологии, $T=790^{\circ}\text{C}$, пористость 4,2 %, O – диоксид урана штатной технологии, $T=540^{\circ}\text{C}$, пористость 5,9 %, – диоксид урана штатной технологии, $T=790^{\circ}\text{C}$, пористость 6,8 %.

Заслуживает внимания вопрос о результатах, полученных в первом цикле облучения после выхода реактора на мощность. В течение первых 20 – 22 часов после начала облучения наблюдалось увеличение высоты топливного столба. На показанных ранее графиках этот факт не заметен ввиду малого масштаба оси абсцисс. Изменение размеров топливного столба в начальный период облучения в крупном масштабе показано на рис.3.

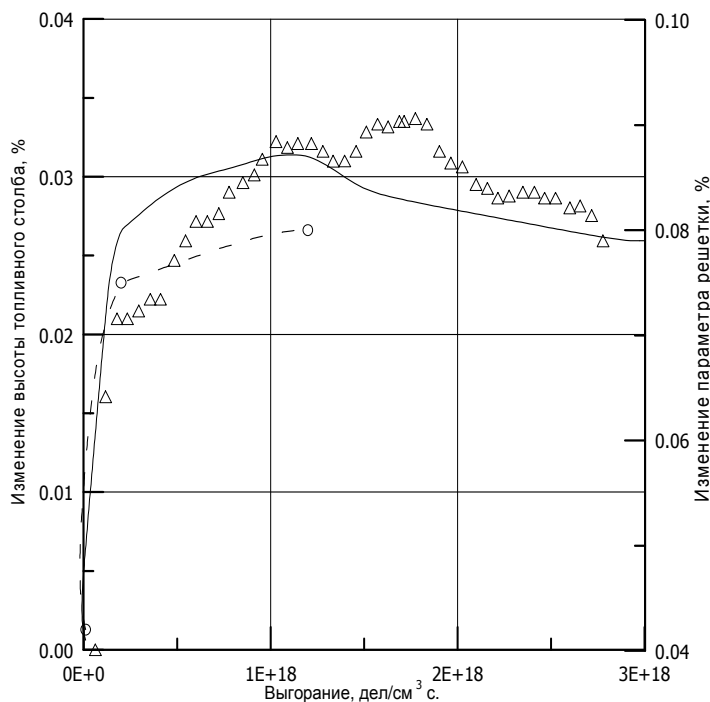


Рис. 3. Зависимость изменения высоты топливного столба и параметра решетки диоксида урана от выгорания. Δ – изменение высоты топливного столба, сплошная и пунктирная линии – изменение параметра решетки при температурах 100 и 60 $^{\circ}\text{C}$ [1, 8]

Подобных данных мы не нашли в доступной литературе. Это связано с тем, что процессы размерных изменений при облучении топлива в нашей стране и за рубежом изучались, как правило, путем периодического измерения размеров выгруженных образцов или твэлов. При такой методике эффекты в начале облучения пропускались.

При анализе литературы по радиационным повреждениям диоксида урана мы обратили внимание на изменение параметра решетки при облучении осколками деления. Сравнение показывает, что увеличение длины образцов и увеличение параметра решетки достигают максимальных значений при близких выгораниях. Относительное изменение длины образцов при выгорании $1,5 \cdot 10^{18}$ дел/см³ составляет 0,035 %, а параметра решетки – примерно 0,08 %. Эти значения имеют один порядок. Рентгенографические данные по изменению параметра решетки в процессе облучения на монокристаллах диоксида урана получены при относительно низких (100 и 60 °С) температурах. В наших исследованиях температура облучения составляла 640 – 670 °С. В работе [1] показано, что в процессе изотермической выдержки при температуре 500 °С в течение часа наблюдается возврат (отжиг), и параметр решетки уменьшается примерно на 50 %. При повышении температуры отжига до 900 °С значение параметра решетки возвращается практически к исходному значению. Если предположить, что параметр решетки уменьшился на 50 % за счет отжига, результаты изменения размеров полностью совпадут с изменением параметра решетки.

Наблюдаемый эффект нужно учитывать при обосновании работоспособности твэлов (например, увеличение высоты топливного столба в твэле за счет увеличения параметра решетки составляет 1,4 – 3,5 мм). Кроме того, подобные результаты важны для понимания физики радиационных повреждений топлива. При использовании методов изотермического и изохронного отжига изменения размеров на начальной стадии облучения могут быть получены энергии миграции дефектов и кинетика их эволюции. Подобные данные необходимы для развития теоретических моделей поведения топлива под облучением.

Список литературы

1. Влияние нейтронного облучения на структуру и механические свойства монокристаллов двуоксида урана. / Бутра Ф. П., Вотинова В. В., Евкина З. Ф. // ВАНТ, сер. Некоторые проблемы физики твердого тела. – 1974. – Т. 2. – С. 29–35.
2. Малыгин В. Б., Соколов А. Н. Комплекс экспериментальных средств для исследования радиационной ползучести и размерной стабильности топлива энергетических реакторов // Инженерная физика. – 2004. – № 4. – С. 27–30.

3. Малыгин В. Б. Расчетно-экспериментальные исследования радиационного уплотнения диоксида урана // Инженерная физика. – 1999. – № 2. – С. 20–23.
4. Павлов С. В. Неразрушающие ультразвуковые методы исследования облученного ядерного топлива. ГНЦ НИИАР. – Дмитровград, 2013. – 205 с.
5. Bloh J. Jor. of Nucl. Mater. 3. – 1961. – P. 28.
6. Delafoy Ch., Blanpain P., Maury C. Advanced UO₂ fuel with improved PCI resistance and fission gas retention capability // Proc. On Inter. Conf. Nuclear Fuel for Today and Tomorrow Experience and Outlook. Top Fuel – 2003, March 16 – 19, 2003, Germany.
7. M. Hirai et. al. // Jor. of Nucl. Mater. 278. – 2000. – P. 54–63.
8. Weber W. J. // Jor. of Nucl. Mater. 98. – 1981. – P.206–215.

Рецензенты:

Кудрявцев Евгений Михайлович, доктор физико-математических наук, профессор НИЯУ МИФИ, г. Москва.

Чернов Иван Ильич, доктор физико-математических наук, профессор НИЯУ МИФИ, г. Москва.