

ТЕХНИЧЕСКИЕ НАУКИ

УДК 621.762

Т.М. Алдажаров, докторант, ВКГТУ, Республика Казахстан (Усть-Каменогорск)
(e-mail: aldazharov-timur@yandex.ru)

Ю.Г. Русин, канд. физ.-мат. наук, ВКГТУ, Республика Казахстан (Усть-Каменогорск)
(e-mail: rusin.yurij@mail.ru)

Ж.В. Еремеева, д-р техн. наук, доцент, Национальный исследовательский технологический университет (МИСИС) (e-mail: eremeeva-shanna@yandex.ru)

Т.А. Рыспаев, д-р техн. наук, приват-доцент, Технический университет Клаусталь (Германия).
(e-mail: talant.ryspaev@gmail.com)

Е.В. Агеев, д-р техн. наук, доцент, ФГБОУ ВО «Юго-Западный государственный университет» (Курск) (e-mail: ageev_ev@mail.ru)

МЕТОДЫ ПОДГОТОВКИ И ПОЛУЧЕНИЕ ИСХОДНЫХ МАТЕРИАЛОВ ДЛЯ ПРИГОТОВЛЕНИЯ ГРАНУЛ ОКСИДА ГАДОЛИНИЯ ДЛЯ ТВЭЛ

Целью работы являлись разработка в лабораторных условиях и обоснование способа получения эффективного композитного уран-гадолиниевого топлива, применение которого позволит улучшить технико-экономические показатели АЭС.

Объектом исследования являлось высокоэффективное композитное уран-гадолиниевое топливо, обладающее повышенной теплопроводностью по сравнению со стандартным УГТ, предназначенным для использования в атомной энергетике.

Плотность спеченных таблеток композитного УГТ авторы оценивали гидростатическим методом по ГОСТ 95.882-81 с точностью $\pm 0,01$ г/см³. При этом использовался метод гидростатического взвешивания без проникновения воды в поры. Он основан на определении объема таблетки путем нахождения ее «сухой» массы и последующего взвешивания ее в воде.

Анализ параметров микроструктуры топливных таблеток проводили на установке ПЭВМ 8 IBM с установленным в ней адаптером micro VIDEO DC 20 для ввода изображения с видеокамеры типа Sharp CCD HS-135, которая монтируется на оптическом микроскопе МЕТАМ ЛВ-31.

Исходя из результатов проведенных авторами экспериментов были сформулированы следующие окончательные требования, предъявляемые к таблеткам УГТ:

– теплопроводность должна быть на уровне или выше теплопроводности таблеток UO_2 ;

– плотность должна лежать в диапазоне 10,35–10,70 г/см³;

– размер частиц (гранул) $(U_{1-x}Gd_x)O_2$ или Gd_2O_3 должен составлять 100–200 мкм;

– гранулы $(U_{1-x}Gd_x)O_2$ или Gd_2O_3 должны иметь геометрическую и химическую стабильность, гарантирующую невозможность их растворения в матрице и образование вне гранул твердого раствора $(U_{1-x}Gd_x)O_2$, для чего необходимо создание антидиффузионного барьера вокруг гадолинийсодержащих гранул;

– содержание Gd_2O_3 в таблетках не должно быть меньше 10 мас. %.

Ключевые слова: ядерное топливо, композитное уран-гадолиниевое топливо, выгорающий поглотитель, диоксид урана, оксид гадолиния, теплопроводность, твердый раствор.

Введение

Одной из главных задач ядерной энергетики является достижение более высоких технико-экономических показателей атомных электростанций (АЭС) за счет повышения глубины выгорания топлива и увеличения кампании топливной загрузки ядерного реактора до 24 мес. Для достижения этой цели требуется ис-

пользование топлива с обогащением 4,5–5,0 % по U-235. Как показывают расчеты, для подавления высокой начальной реактивности, а также достижения более высоких глубин выгорания топлива понадобятся таблетки уран-гадолиниевого топлива (УГТ) с содержанием гадолиния на уровне 10–12 мас. % [1].

Известно, что увеличение количества Gd_2O_3 снижает теплопроводность топлива вследствие образования в таблетках твердого раствора $(U_{1-x}, Gd_{1-x})O_2$. Поэтому для выравнивания энергонапряженности в активной зоне реактора, содержащей топливовоздушную смесь с обогащением ПО U-235 4,4 %, принципиально нельзя применять УГТ с содержанием Gd_2O_3 выше 2,0 мас.% из-за большой вероятности локального перегрева топлива [2]. В связи с этим тепловыделяющие элементы (ТВЭЛ) с УГТ имеют более низкое обогащение по урану (чем больше гадолиния в таблетках, тем меньше их обогащение по U-235).

Как показывают измерения теплопроводности таблеток УГТ, содержащих 10 мас.% Gd_2O_3 , ее значения при 1000 °С лежат в диапазоне $\lambda = 1,8 \pm 0,18$ Вт/(м·К), что практически в 1,7 раза меньше, чем у таблеток из UO_2 ($3,0 \pm 0,18$ Вт/(м·К)) [3].

Таким образом, традиционная технология изготовления УГТ при содержании в нем Gd_2O_3 на уровне 8–12 мас.% не позволяет получать таблетки с приемлемой теплопроводностью, близкой к теплопроводности «чистого» UO_2 . Кроме того, таблетки УГТ имеют также и более низкие термомеханические свойства по сравнению с UO_2 -топливом. Это также зависит от количества в составе таблеток Gd_2O_3 : чем его больше, тем выше вероятность появления микротрещин и дальнейшего снижения теплопроводности топлива.

В связи с этим топливо PWR, содержащее УГТ, эксплуатируется на мощности на 10–15 % ниже, чем без него [4]. Экспериментальные и теоретические работы в данном направлении показывают, что топливо, в котором Gd_2O_3 более 10 мас.%, может иметь повышенную тепло-

проводность (на уровне UO_2) и высокие термомеханические характеристики [5, 6].

Целью настоящей работы являлись разработка в лабораторных условиях и обоснование способа получения эффективного композитного уран-гадолиниевого топлива, применение которого позволит улучшить технико-экономические показатели АЭС.

Материалы и методики исследования

Объектом исследования являлось высокоэффективное композитное уран-гадолиниевое топливо, обладающее повышенной теплопроводностью по сравнению со стандартным УГТ, предназначенным для использования в атомной энергетике.

Плотность спеченных таблеток композитного УГТ оценивали гидростатическим методом по ГОСТ 95.882-81 с точностью $\pm 0,01$ г/см³. При этом использовался метод гидростатического взвешивания без проникновения воды в поры. Он основан на определении объема таблетки путем нахождения ее «сухой» массы и последующего взвешивания ее в воде.

Насыпная плотность порошка как при свободной засыпке, так и при утряске определяется, в первую очередь, его морфологическими особенностями. Знание этой величины позволяет точно оценить количество навески порошка для его прессования.

Анализ параметров микроструктуры топливных таблеток проводили на установке ПЭВМ 8 IBM с установленным в ней адаптером micro VIDEO DC 20 для ввода изображения с видеокамеры типа Sharp CCD HS-135, которая монтируется на оптическом микроскопе METAM ЛВ-31.

Результаты исследования и их обсуждение

Анализ различных разработок, направленных на модернизацию уран-гадолиниевого топлива, показывает, что единственным путем улучшения его теплофизических и термомеханических характеристик является создание композитного УГТ на основе UO_2 без образования в топливных таблетках твердого раствора $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$. То есть в матрицу UO_2 внедряются частицы (гранулы), состоящие либо из твердого раствора $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$, либо непосредственно из Gd_2O_3 . В такой модели в зависимости от объема дисперсной фазы композита теплопроводность системы будет определяться теплопроводностью матрицы (UO_2) [7, 8]. Действительно, повышение концентрации вводимого в решетку второго компонента значительно увеличивает количество дополнительных центров рассеяния фононов (точечных дефектов) [9]. Влияние последних на теплопроводность связано с сечением рассеяния фононов точечными дефектами. Этот параметр может быть описан следующим выражением:

$$\Gamma_i = y_i \left[\frac{(M_i - M)^2}{M^2} + \eta \frac{(r_i - r)^2}{r^2} \right], \quad (1)$$

где y_i – атомная доля точечных дефектов; M_i – атомная масса точечных дефектов i -го типа; M – средняя атомная масса замещенных атомов в решетке; r_i – атомный радиус точечных дефектов i -го типа в узлах решетки; r – средний атомный радиус замещенного иона в узле решетки; η – феноменологический параметр, выражающий величину возникающих в решетке напряжений.

При растворении Gd_2O_3 в решетке UO_2 из-за различия ионных радиусов урана и гадолиния возникают напряжения, а также за счет разницы атомных

масс усиливается роль ангармонизма в рассеянии фононов. Эти факторы приводят к повышению теплового сопротивления решетки. Кроме того, при введении в UO_2 полуторных оксидов типа Me_2O_3 в кристаллической решетке образуются ионы U^{5+} , что еще больше увеличивает концентрацию центров рассеяния фононов [10].

Таким образом, становится понятным, что единственным путем обеспечения теплопроводности УГТ хотя бы на уровне «чистого» UO_2 является создание композитного топлива, содержащего в матрице из UO_2 более или менее гомогенно распределенные гранулы из твердого раствора $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$ или Gd_2O_3 . При этом среднюю теплопроводность композита можно определить из соотношения Максвелла–Эйкена [11]:

$$\lambda_{cp} = \lambda_n \left[1 + 2V_d \frac{1 - \lambda_n/\lambda_d}{2\lambda_n/\lambda_d + 1} / 1 - V_d \frac{1 - \lambda_n/\lambda_d}{\lambda_n/\lambda_d + 1} \right], \quad (2)$$

где λ_n и λ_d – величины теплопроводности непрерывной среды и дисперсной фазы соответственно; V_d – объемная доля дисперсной фазы.

Анализ полученных значений теплопроводности фаз УГТ с использованием формулы (2) показывает, что для сохранения приемлемых величин λ композита оптимальная объемная доля дисперсной фазы в УГТ может находиться в пределах 10–15 % в зависимости от концентрации второго компонента в твердом растворе $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$. При этом надо учитывать нежелательную потерю делящегося изотопа $U-235$ в УГТ при увеличении концентрации Gd_2O_3 до 10 мас.% и выше, а также размеры диспергированных в матрицу гранул $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$ или Gd_2O_3 , так как значительное их отклонение от среднего размера зерна матрицы может существенно повлиять на пластичные характе-

ристики композита [11, 12]. Кроме того, известно, что достаточно малые частицы $(U_{1-x}, Gd_{1-x})O_2$ или Gd_2O_3 (менее 100 мкм) в условиях спекания таблеток УГТ, а следовательно, в активной зоне реактора при рабочих температурах топлива от 700 до 1200 °С, могут полностью раствориться в матрице UO_2 с образованием твердого раствора [13].

В то же время, как показывают результаты методов компьютерного моделирования, а также ряд экспериментальных исследований, строение и свойства, размер и форма частиц наполнителя, а также характер их взаимодействия с матрицей для многих керамических материалов являются факторами, определяющими эффект повышения или снижения механических характеристик (прочность, пластичность, трещиностойкость) синтезируемого композиционного материала [14].

Таким образом, введение гадолиния или его оксида в UO_2 без образования в

системе твердого раствора $(U_{1-x}, Gd_{1-x})O_2$ является единственным решением получения УГТ, отвечающего современным требованиям. Очевидно, что компоненты твердого раствора $(U_{1-x}, Gd_{1-x})O_2$ можно соединять на различных стадиях технологического процесса. Однако механическое смешивание оксидов урана и гадолиния является наиболее экономичным и технологически легко организуемым процессом. Однако на его проведение накладываются специфические ограничения, обусловленные малым размером гранул, и соответственно, составляющих их частиц, размер которых не должен превышать единицы микрометров.

Если окислы РЗЭ под микроскопом выглядят как слабо агрегированные кристаллы размером около 1 мкм, то частицы UO_2 представляют собой кристаллы, плотно упакованные в прочные частицы (агломераты) размером 50÷2000 мкм (рис. 1).



Рис. 1. Агломераты в порошке UO_2 (увеличение 100×)

Сухое измельчение такого порошка до частиц размером хотя бы 3–5 мкм, причем без дополнительного загрязнения и окисления, представляет собой серьезную технологическую задачу [15].

Таким образом, одинаковый состав гранул композитного топлива может быть обеспечен только при механическом смешении пластичных, дезагрегированных порошков исходных компонентов. Единственным неагломерированным, пластичным урансодержащим порошком, представляющим собой отдельные кристаллы размером около 1 мкм, является полиурат аммония – полупродукт в технологии производства порошка UO_2 .

Из анализа схемы получения смеси для изготовления гранул $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$ (рис. 2) следует, что наиболее важной стадией является операция смешения компонентов с целью получения однородной смеси отдельных кристаллов. При этом важным моментом при спекании гранул является обязательное отсутствие в них микротрещин, вероятность образования которых напрямую зависит от размера используемых кристаллов Gd_2O_3 и наличия в них влаги, режимов и атмосферы спекания, а также от разницы в скорости усадки порошков UO_2 и Gd_2O_3 , обусловленной различием значений их полной удельной поверхности.

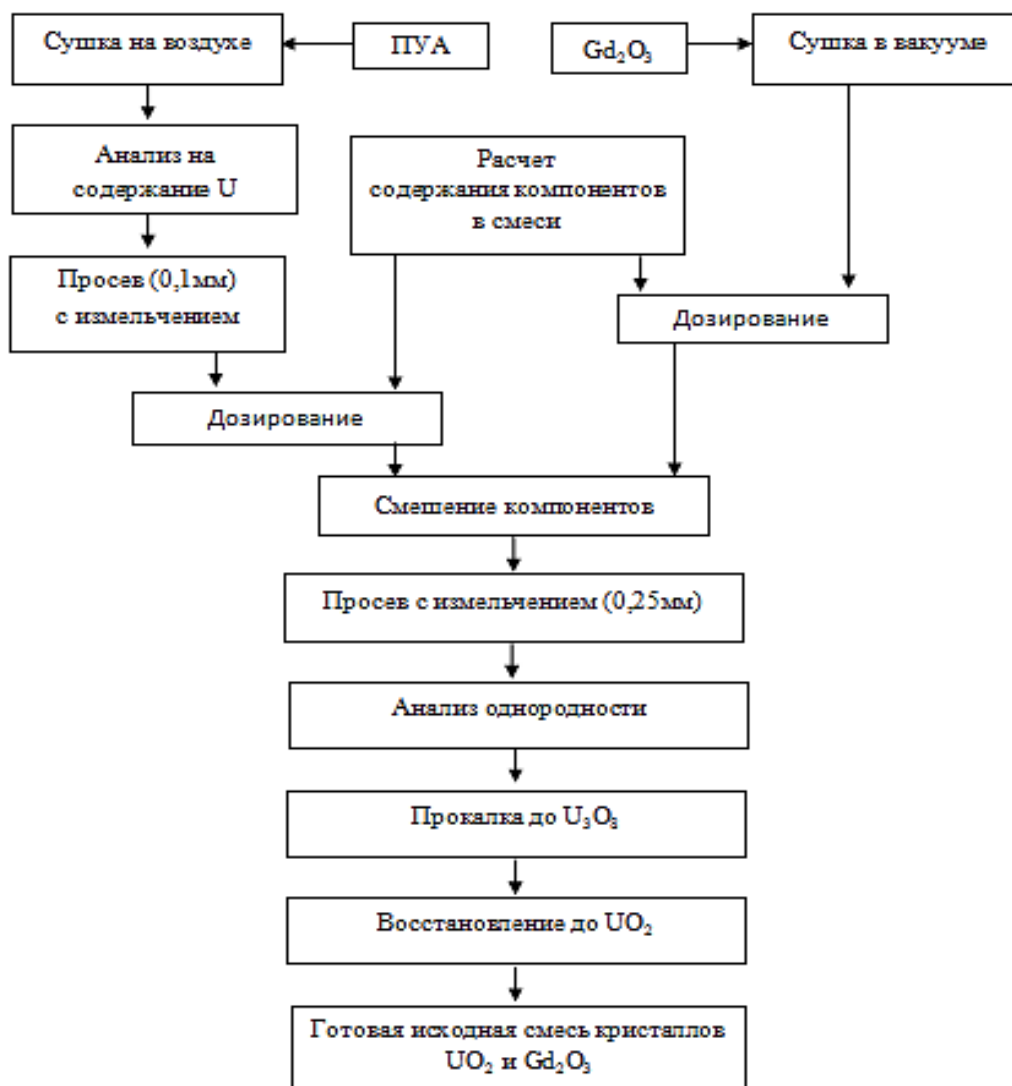


Рис. 2. Схема получения смеси для изготовления гранул $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$

Перед использованием реагентов для изготовления компонентов композитного УГТ были исследованы их технологические свойства и сделаны выводы о необходимости их соответствующей подготовки.

Согласно с ТУ 48-4-524-90 на порошок Gd_2O_3 , применяемый в технологии производства таблеток уран-гадолиниевое топлива для реакторов ВВЭР-1000, потеря его массы при прокалке (ППП) при $t = 850 \div 900$ °С не должна превышать $1 \pm 0,14$ % [16]. Однако контрольная прокалка Gd_2O_3 показала, что этот параметр

имеет более высокие значения, а следовательно, встал вопрос о качестве Gd_2O_3 , применяемого для изготовления композитного топлива. Важно было установить, как его прокалка влияет на качество U–Gd-керамики. Исходный Gd_2O_3 прокаливали при различных температурах и по уменьшению массы проб рассчитывали потери при прокалке (рис. 3). Далее методом БЭТ были определены значения удельной поверхности ($S_{уд}$) прокаленных проб (рис. 4).

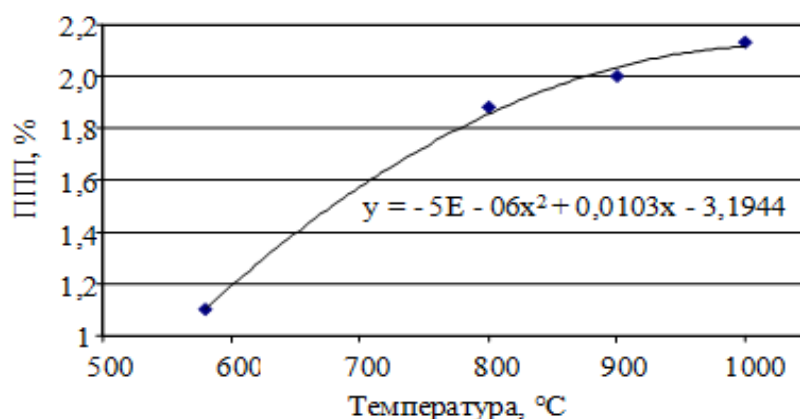


Рис. 3. Потеря массы Gd_2O_3 при прокалке на воздухе

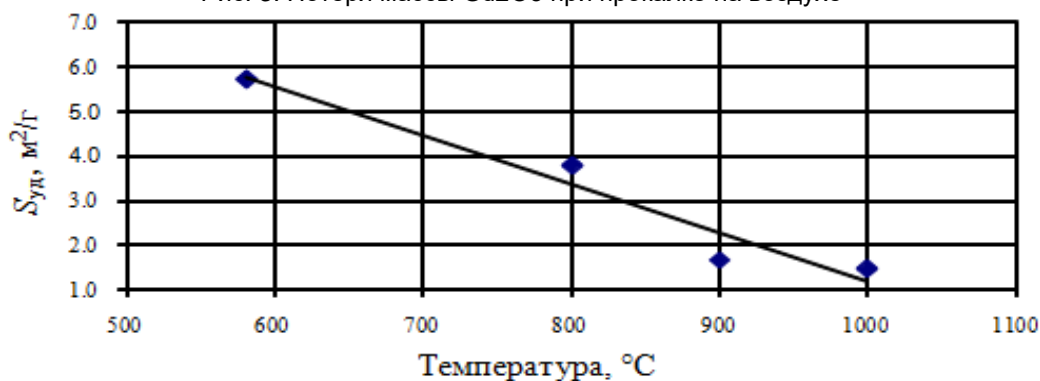


Рис. 4. Зависимость удельной поверхности Gd_2O_3 от температуры прокалки

Из приведенных данных следует, что разница между ППП («РАЗНИЦА» это температура на графике, сначала 200 °С, потом 100 °С и т.д.) – это пояснение, можно удалить монотонно убывает. Это значит, что полное удаление влаги происходит при температурах более 1000 °С. Удельная поверхность исходного Gd_2O_3 составила около 6 м²/г. Также были про-

ведены измерения насыпной плотности порошков Gd_2O_3 , прокаленных при различных температурах. Полученные данные приведены в таблице, из которой следует, что для температур прокалки в диапазоне 800–900 °С имеется тенденция к уменьшению показателей плотности с ростом величины t .

Насыпная плотность (г/см^3) порошка Gd_2O_3 для различных температур прокалики

Порошок	Температура, °С			
	0	800	850	900
Без утряски	0,75	0,83	0,79	0,75
С утряской	1,23	1,34	1,33	1,29

Как известно, специфичность таблеток, содержащих Gd_2O_3 , состоит в возможности образования микротрещин в их структуре. Это происходит из-за изменения кристаллической решетки в процессе формирования твердого раствора. Вероятность микрорастрескивания структуры зависит как от среды спекания таблеток, так и от текущего размера зерна в керамике. Твердый раствор, имеющий мелкое зерно с малым количеством трещин, как правило, получается при относительно быстром времени нагрева (~ 5 ч) материала до температуры спекания.

Увеличение длительности выдержки и уменьшение скорости нагрева изделий приводит к росту зерна и в результате – к усилению растрескивания. Отсюда следует, что важным фактором является наличие возможности уменьшить время спекания таблеток до минимума. Известно, что при изготовлении партии из UO_2 желательнее использовать порошки, различающиеся по величине удельной поверхности не более чем на $1 \text{ м}^2/\text{г}$. Эта величина регламентируется, так как при смешении порошков с сильно различающейся $S_{\text{уд}}$ наблюдается снижение плотности спеченных изделий вследствие различной скорости усадки (спекания) частиц UO_2 . Это явление (эффект Френкеля–Киркендала) применительно к твердому раствору $(\text{U}_{1-x}, \text{Gd}_{1-x})\text{O}_2$ обусловлено, главным образом, неравенством коэффициентов гетеродиффузии разнородных атомов. Отсюда вытекает необходимость

сбалансированности активности к спеканию у компонентов смеси, что может быть достигнуто корректировкой их удельной поверхности.

Исходя из этого было получено несколько вариантов таблеток, содержащих 10 мас.% Gd_2O_3 , обработанных при различных температурах. В экспериментах использовались стандартные порошки UO_2 и Gd_2O_3 , полные удельные поверхности которых составляли 3,0 и 6,0 $\text{м}^2/\text{г}$ соответственно. Таблетки изготавливались без применения пластификатора по лабораторной схеме: дозирование компонентов \rightarrow смешение \rightarrow измельчение \rightarrow грануляция \rightarrow введение пластификатора \rightarrow формование \rightarrow спекание. При этом измеряли плотность (ρ) как сырых, так и спеченных образцов. Полученные результаты приведены на рис. 4.

Из представленных данных следует, что прессуемость пресс-порошка заметно улучшается для термообработанного Gd_2O_3 , что говорит о существенном изменении его технологических свойств. Плотность спеченных таблеток имеет максимум в диапазоне температур между 580 и 800 °С. Повышение плотности выше 580 °С замедляется, так как постепенно начинается рост зерна и все больший вклад в формирование ее величины вносит процесс трещинообразования.

Структура материала, образующаяся вследствие прокалики Gd_2O_3 при $t = 800$ °С, приведена на рис. 5.

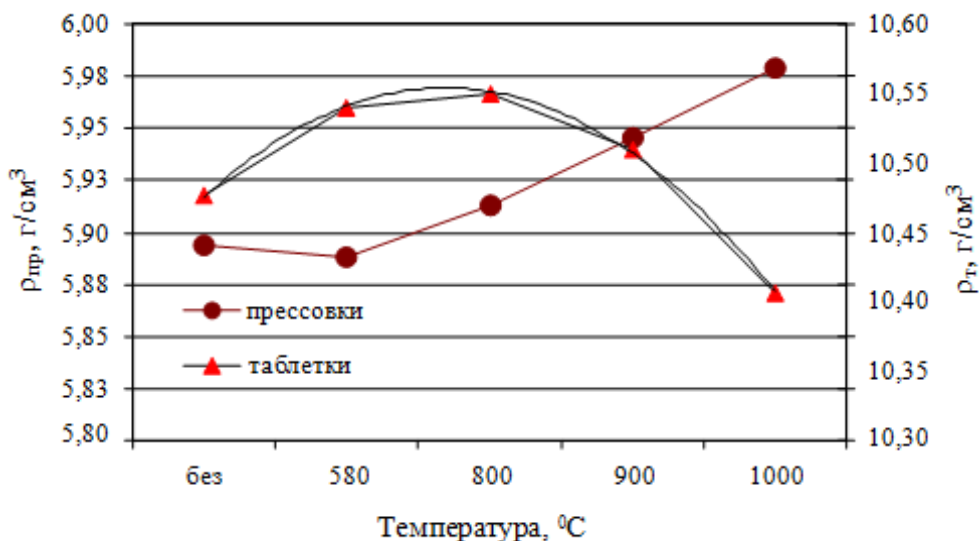


Рис. 5. Зависимость плотности прессовок ($\rho_{пр}$) и таблеток ($\rho_{т}$) от температуры прокаливания Gd_2O_3 (почему на верхнем графике 2 кривые? Потому что один график для прессовок, один для спеченных таблеток)

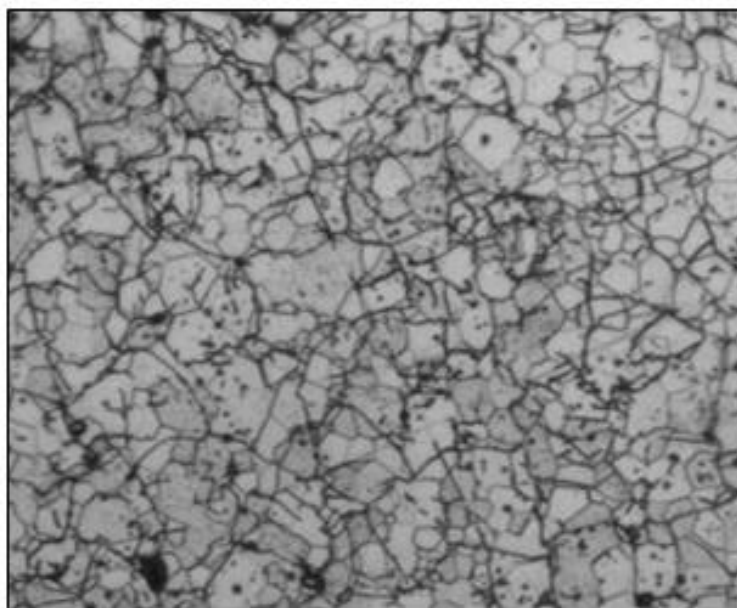


Рис. 6. Рост зерна в композиции твердого раствора $(U_{1-x}Gd_{1-x})O_2$ с предварительной прокаливанием Gd_2O_3 при $800\text{ }^\circ\text{C}$ (увеличение $250\times$)

Принципиальная возможность избежать образования трещин в материале заключается в проведении процесса спекания в печах с контролируемым кислородным потенциалом атмосферы. Если при этом использовать операции, гарантирующие тщательное и качественное смешение исходных оксидов, образова-

ние твердого раствора будет завершаться быстро – до начала процесса роста зерна.

Полученные в работе результаты говорят о том, что при разработке технологии изготовления композитного УГТ целесообразно использовать низкопрокаленный Gd_2O_3 , а оптимальной температурой его термообработки считать $580\text{ }^\circ\text{C}$.

Заключение

Исходя из результатов проведенных экспериментов были сформулированы следующие окончательные требования, предъявляемые к таблеткам УГТ:

– теплопроводность должна быть на уровне или выше теплопроводности таблеток UO_2 ;

– плотность должна лежать в диапазоне 10,35–10,70 г/см³;

– размер частиц (гранул) $(\text{U}_{1-x}\text{Gd}_x)\text{O}_2$ или Gd_2O_3 должен составлять 100–200 мкм;

– гранулы $(\text{U}_{1-x}\text{Gd}_x)\text{O}_2$ или Gd_2O_3 должны иметь геометрическую и химическую стабильность, гарантирующую невозможность их растворения в матрице и образование вне гранул твердого раствора $(\text{U}_{1-x}\text{Gd}_x)\text{O}_2$, для чего необходимо создание антидиффузионного барьера вокруг гадолинийсодержащих гранул;

– содержание Gd_2O_3 в таблетках не должно быть меньше 10 мас. %.

Список литературы

1. Производство топливных таблеток с выгорающими поглотителями / А.А. Кучковский, А.А. Маныч, Ю.Г. Русин, Б.А. Карманов // Актуальные проблемы урановой промышленности: сб. докл. II Междунар. науч.-практ. конф.» (Алматы, 10–13 июля 2002 г.). – Алматы: Бастау, 2003. – С. 133–135.
2. Jeffrey R. Secker, Baard J. Johansen, David L. Stucker, Odelli Ozer, Kostadin Ivanov, Serkan Yilmaz, E. H. Young. Optimum Discharge Burn-up, Cycle Length for BWRs // Nucl. Technol. – 2005. – Vol. 151. – No. 2. – P. 109–119.
3. Горский В.В. Уран-гадолиниевое оксидное топливо. Ч. 2. Теплофизические свойства $\text{UO}_2\text{--Cd}_2\text{O}_3$ и методы их измерения // Атомная техника за рубежом. – 1989. – No. 3. – С. 5–15.
4. Hirai M., Ishimoto S. Thermal diffusivities and Thermal conductivities of $\text{UO}_2\text{--Gd}_2\text{O}_3$ // J. Nucl. Sci. Technol. – 1991. – Vol. 28. No. 11. – P. 995–1000.
5. Investigation of Thermal-Physical and Mechanical Properties of Uranium-Gadolinium Oxide Fuel, Advanced fuel pellet materials and designs for water cooled reactors / Yu.K. Bibilashvili, A.V. Kuleshov, O.V. Milovanov, E.N. Mikheev, V.V. Novikov, S.G. Popov, V.N. Proselkov, Yu.V. Pimenov, Yu.G. Godin // Proceedings of a technical committee Brussels, 20–24 oct. 2003). IAEA-TECDOC-1416. – 2003. – P. 85–99.
6. Gregg R., Worrall A. Effect of Highly Enriched/Highly Burnt UO_2 Fuels on Fuel Cycle Costs, Radiotoxicity and Nuclear Design Parameters // Nucl. Technol. – 2005. – Vol. 151. – P. 126–132.
7. Альдавахра С., Савандер В.И., Белоусов Н.И. Методика расчета и анализ применения гранулированных поглотителей в ВВЭР // Атомная энергия. – 2006. – No. 1. – С. 8–13.
8. Изучение физики легководных решеток с уран-гадолиниевым топливом, содержащим Gd_2O_3 -гранулы / А.А. Поляков, Ю.В. Стогов, В.И. Савандер, Н.И. Белоусов, В.Н. Проселков // Научная сессия МИФИ-2000. Ч. 8. Молекулярно-селективные и нелинейные явления и процессы. Физико-технические проблемы ядерной энергетики. Ультрадисперсные (нано) материалы. – М., 2000. – С. 90–91.
9. Klemens P.G. Effect of crystal lattice defects on thermal conductivity // Phys. Rev. – 1960. – Vol. 119. – P. 507.
10. Ohmichi T., Fukushima S., Maeda A. Watanabe H. Effect of Gd_2O_3 dope on UO_2 thermal conductivity // J. Nucl. Mater. – 1981. – Vol. 102. – P. 40–46.

11. Кингери У.Д. Введение в керамику. – М.: Стройиздат, 1967.

12. Горский В.В. Уран-гадолиниевое оксидное топливо. Ч. 1. Основные свойства Gd_2O_3 и $UO_2-Gd_2O_3$ // Атомная техника за рубежом. – 1989. – №. 2. – С. 3–10.

13. Yuda R., Une K. Effect of sintering atmosphere on the densification of $UO_2-Gd_2O_3$ compacts // J. Nucl. Wat. – 1991. – Vol. 178. – P. 195–203.

14. Boccaccini A.R. Glass and glass-ceramic matrix composite materials // J. Ceram. Soc. Japan. – 2001. – Vol.109. – No. 7. – P. 99–109.

15. Исследование процесса получения наноструктурированного титаната диспрозия механохимической обработкой оксидов титана и диспрозия / Е.В. Агеев, В.С. Панов, Ж.В. Еремеева, Е.В. Агеев, Л.В. Мякишева, А.А. Лизунов // Известия Юго-Западного государственного университета. – 2015. – №. 5 (62). – С. 21–27.

16. Дементьев Б.А. Ядерные энергетические реакторы. – 2-е изд. – М.: Энергоатомиздат, 1990.

Получено 20.06.16

T.M. Aldayarov, Doctoral Candidate, Republic of Kazakhstan (Ust-Kamenogorsk) (e-mail: aldazharov-timur@yandex.ru)

J.G. Rusin, Candidate of Physico-mathematical Sciences, Senior Lecturer, Republic of Kazakhstan, (Ust-Kamenogorsk) (e-mail: rusin.yuriy@mail.ru)

J.V. Eremeeva, Doctor of Engineering Sciences, Associate Professor, National Research Technological University (MISIS) (e-mail: eremeeva-shanna@yandex.ru)

T.A. Ryspaev, Doctor of Engineering Sciences, Assistant Professor, Technical University of Clausthal (e-mail: talant.ryspaev@gmail.com)

E.V. Ageev, Doctor of Engineering Sciences, Assistant Professor, Southwest State University (Kursk) (e-mail: ageev_ev@mail.ru)

METHODS FOR PREPARATION AND PRODUCTION OF INITIAL MATERIALS FOR GADOLINIUM OXIDE GRAINS PREPARATION FOR TVEL

The objective of the research is to develop and substantiate under laboratory conditions a method for production of an efficient composite uranium-gadolinium fuel, which application allows improving NPS technical and economic parameters.

The subject of the research is a high-efficient composite uranium-gadolinium fuel with enhanced thermal conductivity in comparison with standard UGF intended to be use in NPP.

The density of sintered composite UGF pellets was estimated according to the hydrostatic method as per GOST 95.88-81 to $\pm 0, 01$ g/cm³ accuracy. The sinker method without water penetration to pores was applied. The method is based on determination of the volume of a pellet by means of its "dry" mass determination and further water weighing.

The analysis of fuel pellet microstructure parameters was performed using PC 8 IBM with installed adapter micro VIDEO DC 20 for the input of images from camera Sharp CCD HS-135, which is mounted on optical microscope МЕТАМ ЛВ-31.

Based on the outcome of the experiments the following final requirements to UGF pellets were specified:

- thermal conductivity shall be the same or higher than that of UO_2 pellets;*
- density within 10,35–10,70 g/cm³;*
- particle (grains) size $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$ or Gd_2O_3 shall be 100–200 μ m;*
- grains $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$ or Gd_2O_3 shall be dimensionally and chemically stable, which ensures impossibility of their dissolving in the matrix and $(U_{1-x},Gd_{1-x})O_2$ solid-solution formation outside the grains, for which it is necessary to create an anti-diffusion barrier around gadolinium pellets;*
- Gd_2O_3 content in pellets shall be at least 10 % wt.*

Key words: nuclear fuel, composite uranium-gadolinium fuel, burnable absorber, uranium dioxide, gadolinium oxide, thermal conductivity, solid solution.

References

1. Proizvodstvo toplivnyh tabletok s vygorajushhimi poglotiteljami / A.A. Kuchkovskij, A.A. Manych, Ju.G. Rusin, B.A. Karmanov // Aktual'nye problemy uranovoj promyshlennosti: sb. dokl. II Mezhdunar. nauch.-prakt. konf.» (Almaty, 10–13 ijulja 2002 g.). – Almaty: Bastau, 2003. – S. 133–135.
2. Jeffrey R. Secker, Baard J. Johansen, David L. Stucker, Odelli Ozer, Kostadin Ivanov, Serkan Yilmaz, E. H. Young. Optimum Discharge Burn-up, Cycle Length for BWRs // Nucl. Technol. – 2005. – Vol. 151. – No. 2. – P. 109–119.
3. Gorskij V.V. Uran-gadolinievoe oksidnoe toplivo. Ch. 2. Teplofizicheskie svojstva UO_2 – Cd_2O_3 i metody ih izmerenija // Atomnaja tehnika za rubezhom. – 1989. – No. 3. – S. 5–15.
4. Hirai M., Ishimoto S. Thermal diffusivities and Thermal conductivities of UO_2 – Gd_2O_3 // J. Nucl. Sci. Technol. – 1991. – Vol. 28. No. 11. – P. 995–1000.
5. Investigation of Thermal-Physical and Mechanical Properties of Uranium-Gadolinium Oxide Fuel, Advanced fuel pellet materials and designs for water cooled reactors / Yu.K. Bibilashvili, A.V. Kuleshov, O.V. Milovanov, E.N. Mikheev, V.V. Novikov, S.G. Popov, V.N. Proselkov, Yu.V. Pimenov, Yu.G. Godin // Proceedings of a technical committee Brussels, 20–24 oct. 2003). IAEA-TECDOC-1416. – 2003. – P. 85–99.
6. Gregg R., Worrall A. Effect of Highly Enriched/Highly Burnt UO_2 Fuels on Fuel Cycle Costs, Radiotoxicity and Nuclear Design Parameters // Nucl. Technol. – 2005. – Vol. 151. – P. 126–132.
7. Al'davahra S., Savander V.I., Belousov. N.I. Metodika rascheta i analiz primenenija granulirovannyh poglotitelej v VVJeR // Atomnaja jenergija. – 2006. – No. 1. – S. 8–13.
8. Izuchenie fiziki legkovodnyh reshetok s uran-gadolinievim toplivom, sodержashhim Gd_2O_3 -granuly / A.A. Poljakov, Ju.V. Stogov, V.I. Savander, N.I. Belousov, V.N. Proselkov // Nauchnaja sessija MIFI-2000. Ch. 8. Molekuljarno-selektivnyye i nelinejnyye javlenija i processy. Fiziko-tehnicheskie problemy jadernoj jenergetiki. Ul'tra-dispersnyye (nano) materialy. – M., 2000. – S. 90–91.
9. Klemens P.G. Effect of crystal lattice defects on thermal conductivity // Phys. Rev. – 1960. – Vol. 119. – P. 507.
10. Ohmichi T., Fukushima S., Maeda A. Watanabe H. Effect of Gd_2O_3 dope on UO_2 thermal conductivity // J. Nucl. Mater. – 1981. – Vol. 102. – P. 40–46.
11. Kingeri U.D. Vvedenie v keramiku. – M.: Strojizdat, 1967.
12. Gorskij V.V. Uran-gadolinievoe oksidnoe toplivo. Ch. 1. Osnovnyye svojstva Gd_2O_3 i UO_2 – Gd_2O_3 // Atomnaja tehnika za rubezhom. – 1989. – No. 2. – S. 3–10.
13. Yuda R., Une K. Effect of sintering atmosphere on the densification of UO_2 – Gd_2O_3 compacts // J. Nucl. Mater. – 1991. – Vol. 178. – P. 195–203.
14. Boccaccini A.R. Glass and glass-ceramic matrix composite materials // J. Ceram. Soc. Japan. – 2001. – Vol. 109. – No. 7. – P. 99–109.
15. Issledovanie processa poluchenija nanostrukturirovannogo titanata disprozija mehanohimicheskoj obrabotkoj oksidov titana i disprozija / E.V. Ageev, V.S. Panov, Zh.V. Eremeeva, E.V. Ageev, L.V. Mjakisheva, A.A. Lizunov // Izvestija Jugo-Zapadnogo gosudarstvennogo universiteta. – 2015. – № 5 (62). – S. 21–27.
16. Dement'ev B.A. Jadernye jenergeticheskie reaktory. – 2-e izd. – M.: Jenergoatomizdat, 1990.