

(19)



**Евразийское  
патентное  
ведомство**

(11) **033850**(13) **B1**(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ**(45) Дата публикации и выдачи патента  
**2019.12.02**(51) Int. Cl. **G21C 21/02 (2006.01)**  
**G21C 3/02 (2006.01)**(21) Номер заявки  
**201800578**(22) Дата подачи заявки  
**2018.10.31****(54) СПОСОБ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ДИСПЕРСИОННОГО ТЕПЛОВЫДЕЛЯЮЩЕГО ЭЛЕМЕНТА И ТОПЛИВНЫХ ТАБЛЕТОК НА ЕГО ОСНОВЕ**(43) **2019.11.29**(96) **2018000127 (RU) 2018.10.31**(71)(73) Заявитель и патентовладелец:  
**ФЕДЕРАЛЬНОЕ  
ГОСУДАРСТВЕННОЕ УНИТАРНОЕ  
ПРЕДПРИЯТИЕ "НАУЧНО-  
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ  
ИНСТИТУТ НАУЧНО-  
ПРОИЗВОДСТВЕННОЕ  
ОБЪЕДИНЕНИЕ "ЛУЧ" (ФГУП  
"НИИ НПО "ЛУЧ") (RU)**

(72) Изобретатель:

**Галёв Дмитрий Эдуардович, Жалилов  
Рафаэль Хайбуллович, Колганов  
Александр Антонович, Мартыненко  
Анатолий Васильевич, Нужин  
Владимир Николаевич, Солдаткин  
Дмитрий Михайлович, Солнцев  
Владимир Анатольевич, Тухватулин  
Шамиль Талибулович (RU)**(56) **EA-A1-201600108  
RU-A1-94044516  
RU-C2-2223558  
RU-C2-2201627  
GB-A-1063631**

(57) Изобретение относится к ядерной энергетике, в частности к дисперсионным тепловыделяющим элементам (ТВЭлам) для исследовательских и энергетических реакторов, в которых топливо равномерно распределено в матрице из неделящегося материала. Способ изготовления дисперсионного тепловыделяющего элемента заключается в том, что путём обжатия стержня из металлического урана, заключённого в оболочку из циркония, получают биметаллический пруток, который делят на части. Затем полученные части объединяют в сборку, сборку обжимают и получают многоволоконный пруток. Операции деления и объединения частей многоволоконного прутка в сборку с последующим обжатием осуществляют до получения требуемого количества волокон при обеспечении заданной объёмной доли топливной фазы. Затем ТВЭЛ калибруют до требуемой площади поперечного сечения, а после калибровки проводят термообработку в вакуумной среде при температуре нахождения урана в  $\gamma$ -фазе с последующим охлаждением. Время

термообработки  $t$  определяют из соотношения  $t \geq \frac{4SV_f}{\pi NK}$ , где  $S$  - площадь поперечного сечения сердечника ТВЭЛа,  $V_f$  - объёмная доля топливной фазы,  $N$  - количество топливных волокон,  $K$  - коэффициент диффузии урана в цирконии. На основе ТВЭЛа изготавливают топливные таблетки, для чего полученный ТВЭЛ разрезают по диаметру на части, которые затем обрабатывают до заданного размера.

**B1****033850****033850 B1**

## I. Область техники, к которой относится изобретение

Изобретение относится к ядерной энергетике, в частности к дисперсионным тепловыделяющим элементам (ТВЭЛам) для исследовательских и энергетических реакторов, в которых топливо равномерно распределено в матрице из неделиющегося материала.

## II. Предшествующий уровень техники

Конструктивно основными элементами дисперсионных ТВЭЛов являются сердечник и оболочка, в которую заключён сердечник. В дисперсионных ТВЭЛх сердечник представляет собой композицию из частиц делящихся (топливных) материалов, которые равномерно распределены в матрице из неделиющихся материалов.

Дисперсионные ТВЭЛы должны удовлетворять требованиям теплопроводности, прочности, размерной стабильности и высокой степени выгорания топливного материала при наименьшем распухании, чему в немалой степени способствует равномерность распределения делящегося материала в сердечнике.

Известен способ дисперсионного изготовления ТВЭЛа (RU №2374705, МПК G21C21/02, опубл. 27.11.2009), согласно которому в оболочку ТВЭЛа помещают соответствующую долю матрицы, нагревают до расплава и подают в расплав недостающую долю делящегося материала в виде крупки при постоянном вибрировании. Образуется дисперсионная композиция. Однако, структура делящегося материала в виде крупки неоднородна, что приводит к локальным перегревам, распуханию и деформации ТВЭЛа.

Другой известный способ изготовления ТВЭЛов основан на центробежном литье делящегося материала и матрицы (Н.Н. Белаш и др. Кинетика распределения углерода и легирующих элементов в уране и его сплавах при центробежном литье /Вопросы атомной науки и техники. Серия: "Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение", 2002, вып.3, Харьков, с. 88-93). По этому способу топливные стержни мерной длины помещали в герметизированные циркониевые ампулы. Центробежным литьём обеспечивалось сцепление топлива с оболочкой топливной секции. Топливные секции помещали в циркониевую оболочку, а зазор заполняли силумином, легированным никелем. К преимуществам этого способа относится обеспечение очистки изделий от примесей (в том числе привнесённых), возможность получать заданную геометрическую форму без дополнительной механической обработки, формировать необходимую структуру материала, регулируя процесс кристаллизации, а также появляется возможность проводить легирование обрабатываемого материала за счет растворения материала формы. При этом имеет место неравномерность распределения урана от центра к периферии.

К недостаткам методов изготовления дисперсионных ТВЭЛов, связанных с плавкой и литьём, можно отнести неравномерность распределения топливных частиц с возможностью образования сгустков (слипаний) и пор между ними. Поэтому для получения равномерности распределения необходимо несколько переплавок. Кроме того, материал матрицы имеет относительно невысокую прочность, ввиду того, что находится в литом состоянии, в котором прочность металлов значительно ниже, чем в деформированном. Очевидно также, что всякого рода дефекты, возникающие при затвердевании материала матрицы (усадочные раковины, неслитины, газовые включения, ликвации, трещины), негативно влияют на прочность и теплопроводность сердечника и ТВЭЛа в целом. Кроме того, наличие частиц топлива с размерами большими длины свободного пробега осколков деления приводит к снижению прочности и теплопроводности ТВЭЛа из-за накопления в них продуктов деления.

Известен дисперсионный ТВЭЛ, имеющий внутри оболочки ТВЭЛа топливный сердечник из дисперсионной композиции урансодержащих частиц и сплава алюминия, в которой объемное содержание урансодержащих частиц составляет до 45%, размер урансодержащих частиц составляет от 63 до 315 мкм. Оболочка и сердечник имеют диффузионное сцепление между собой, полученное при изготовлении ТВЭЛа методом совместного выдавливания через формирующую матрицу составной цилиндрической заготовки, состоящей из топливного сердечника, заглушек и оболочки (патент RU№ 2267175, МПК G21C3/32, G21C3/02, опубл. 27.05.2005).

Недостатком этого ТВЭЛа является то, что в нём независимо от содержания объёмной доли топливной фазы, распределение топливных частиц, имеющих различные формы и размеры по сечениям сердечника, происходит случайно (хаотично), так как сердечник формируется путём смешения топливных частиц. Соприкосновение топливных частиц, а также смыкание повреждённых зон, где локализируются продукты деления, приводит к снижению прочности матрицы, образованию теплового барьера, снижающего теплопередачу от топливных частиц к оболочке, что приводит к локальному повышению температуры (перегреву) и, вследствие этого, к снижению ресурса работы ТВЭЛа.

Изготовление таких дисперсионных ТВЭЛов достаточно сложно и трудоемко.

Наиболее близким по технической сущности и достигаемому при использовании изобретения техническому результату - прототипом заявляемому изобретению является способ изготовления ТВЭЛа по евразийскому патенту №027036 (опубл. 30.06.2017, МПК G21C 3/02, G21C 21/02), согласно которому осуществляют обжатие в металлической оболочке стержня из металлического урана, последующее деление полученного биметаллического прутка на части, сборку полученных частей в герметичную обойму с последующим её обжатием, делением полученного многоволоконного прутка с равномерным распределением заданного числа волокон по сечению, а также калибровку до получения требуемого сечения при обеспечении заданной объёмной доли топливной фазы  $V_f$ . Способ обеспечивает достаточную прочность,

теплопроводность и относительную равномерность распределения топлива в сердечнике твэла.

Однако в твэле, полученном по известному способу, наличие границ между всеми составляющими твэла, а именно: между оболочкой и сердечником, оболочками соседних волокон, между самим волокном и его оболочкой уменьшает теплопроводность твэла, а также возможные расслоения и неравномерности сцепления между ними не только уменьшают теплопроводность, но и снижают прочность твэла.

### III. Раскрытие изобретения

Задача изобретения состояла в том, чтобы устранить границы между составляющими твэла и более равномерно распределить металлический уран по объёму матрицы за счёт взаимной диффузии материалов топлива и матрицы по всему объёму сердечника и, тем самым, повысить теплопроводность и прочность твэла.

Для решения поставленной задачи и достижения при использовании изобретения технического результата в способе изготовления дисперсионного тепловыделяющего элемента, включающем получение биметаллического прутка путём обжата стержня из металлического урана, заключённого в оболочку из циркония, деление его на части, объединение этих частей в сборку и обжатие сборки с получением многоволоконного прутка, при этом операции деления и объединения частей многоволоконного прутка в сборку с последующим обжатием осуществляют до получения требуемого количества волокон при обеспечении заданной объёмной доли топливной фазы, после чего осуществляют калибровку твэла до требуемой площади поперечного сечения твэла, а затем согласно изобретению проводят термообработку твэла в вакуумной среде при температуре нахождения урана в  $\gamma$ -фазе с последующим охлаждением, при этом время термообработки  $t$  определяют из соотношения

$$t \geq \frac{4SV_f}{\pi NK},$$

где  $S$  - площадь поперечного сечения сердечника твэла,

$V_f$  - объёмная доля топливной фазы,

$N$  - количество волокон,

$K$  - коэффициент диффузии урана в цирконии с учётом энергии активации.

Охлаждение твэла можно осуществлять со скоростью (30-50)°C/ч, то есть вместе охлаждением печи, что позволяет улучшить радиационную стойкость.

Для изготовления топливных таблеток полученный твэл делят на части, которые обрабатывают до заданного размера, например, шлифовкой. Полученные таким образом топливные таблетки обеспечивают низкое распухание, и их можно использовать, например, для формирования сердечника стержневых твэлов контейнерного типа, которые используются в реакторе на быстрых нейтронах.

Для изготовления твэла по предложенному способу, как и в прототипе, целесообразно использовать в качестве материала матрицы цирконий или его сплавы и металлический уран - в качестве делящегося материала. Цирконий, как матричный материал способствует удержанию продуктов деления в эксплуатационных режимах и переходных процессах, поскольку цирконий имеет свойства геттера. Уран, закалённый из  $\beta$ -фазы, имеет мелкозернистую структуру, что позволяет получать тонкие топливные волокна за меньшее число циклов экструзии. Многократное обжатие в циркониевой оболочке стержня из металлического урана, многоволоконных прутков между собой и оболочкой обеспечивает надёжный контакт по поверхностям и создаёт условия для диффузии в процессе заключительной термообработки твэла.

Нами было установлено, что термообработка твэла на заключительном этапе после калибровки твэла в течение заявленного времени в вакуумной среде (для снижения неконтролируемого окисления поверхностей) при температуре нахождения урана в  $\gamma$ -фазе позволяет осуществить диффузию урана из тонких волокон в цирконий, то есть равномерно распределить материал топлива в матрице и тем самым произвести упрочнение циркония ураном.

Благодаря диффузии формируется теплопроводная и равнопрочная структура твэла за счёт «размытия» границ между топливными волокнами и их оболочками 1, соседними оболочками топливных волокон 2, сердечником и наружной оболочкой 3 (фиг. 1 и фиг. 2). Так, устранение границы в системе: граница, например, в виде расслоения толщиной 0,1 мкм между оболочками волокон и цирконий толщиной 100 мкм повышает теплопроводность системы в два раза, так как теплопроводности составляющих системы сравнимы.

Такая структура не подвержена радиационному росту и обладает удовлетворительным сопротивлением газовому распуханию при повышенном выгорании за счёт урана диффузионно распределённого ("размытого") из волокон по матрице. В данном случае размеры диффундировавшего в матрицу урана меньше или соизмеримы с длиной свободного пробега продуктов деления, поэтому эффективней осуществляется диффузия продуктов распада в менее плотную матрицу (геттер). Известно также, что равномерное распределение урана приводит к повышению допустимого выгорания в твэле почти в два раза и снижению отношения скорости выхода осколков деления к скорости их образования на несколько порядков. Кроме того известно, что термообработка металла при высокой температуре позволяет залечить несплошности, например, трещины под действием локальных сжимающих усилий в ее вершине, создаваемых в результате нагрева материала.

Предлагаемый способ практически реализует "бестигельную плавку", которая позволяет сформировать цельнометаллический твэл с легированным сердечником при отсутствии границ между составляющими твэла и равномерно распределённым металлическим ураном по объёму циркониевой матрицы, а также обеспечивает отсутствие привносимых примесей, которые неизбежны при легировании в тигле.

#### IV. Краткий перечень фигур графических изображений

Сущность изобретения иллюстрируется фигурами графических изображений.

На фиг. 1 показан шлиф твэла, содержащего 133 топливных волокна, до проведения операции термообработки.

На фиг. 2 приведен шлиф твэла, содержащего 133 топливных волокна, после проведения термообработки в соответствии с заявленным изобретением.

На фиг. 2а и 2б приведены фрагменты шлифа твэла, показанного на фиг. 2, с различной степенью увеличения.

На фиг. 3 приведён шлиф таблетки и увеличенный фрагмент шлифа, на котором хорошо видна сетчатая структура таблетки.

#### V. Сведения, подтверждающие возможность осуществления изобретения

Для изготовления твэла с заданным поперечным сечением  $4,15 \text{ мм}^2$  и долей топливной фазы  $V_f = 0,1$  из металлического урана, закалённого из  $\beta$ -фазы с обогащением до 20% по изотопу  $U^{235}$  заключают в герметичную оболочку из сплава циркония Э110. При этом полученная и последующие сборки должны соответствовать заданному значению топливной фазы. Сборку выдавливают через фильеру. Затем полученный биметаллический пруток делят на части. Из них комплектуют сборку из 7 частей (прутков), которую также выдавливают через фильеру, получая семиволоконный пруток. При этом каждое из волокон заключено в оболочку из сплава циркония, а оболочки соседних урановых волокон диффузионно связаны между собой. Пруток снова делят на части, из которых комплектуют следующую сборку из 19 частей, помещают в циркониевую оболочку, герметизируют и снова выдавливают через фильеру, получая пруток, содержащий оболочку с заключённым в ней сердечником из 133 урановых волокон, каждое из которых находится в своей оболочке. Волочением осуществляют калибровку твэла до требуемого размера сечения твэла ( $4,15 \text{ мм}^2$  при диаметре прутка  $2,3 \text{ мм}$  и  $S = 2,84 \text{ мм}^2$ ).

После калибровки проводят термообработку заготовки твэла в вакуумной среде (для исключения окисления циркониевой оболочки) при температуре нахождения урана в  $\gamma$ -фазе, например при  $T=1000^\circ\text{C}$  в течение трёх часов с последующим охлаждением одновременно с печью, например, около суток при этом время термообработки  $t$  определяли из соотношения

$$t \geq \frac{4SV_f}{\pi NK}, \quad (1)$$

где  $S$  - площадь поперечного сечения сердечника твэла,

$V_f$  - объёмная доля топливной фазы,

$N$  - количество волокон,

$K$  - коэффициент диффузии.

Для определения коэффициента  $K$  использовались данные из статьи (Л.В. Павлинов. Диффузия урана в цирконий. Атомная энергия, 1967, том 22, вып.4, стр.290-293).

$$K = 1,4 \times 10^{-4} e^{-\frac{13990}{T}}$$

При значениях  $S = 2,84 \text{ мм}^2$ ,  $N = 133$ ,  $V_f = 0,1$  время термообработки составило  $t = 3$  ч при температуре  $1000^\circ\text{C}$  с последующим охлаждением с печью в течение суток.

В случае, когда  $N = 49$  при одинаковых  $S$  и  $V_f$ , время термообработки при  $1000^\circ\text{C}$  будет около 8,5 ч, т.е. время термообработки будет меняться пропорционально числу топливных волокон. Таким образом, изменяя значения  $N$ ,  $S$  и  $V_f$  можно получать твэлы с различными конструктивными параметрами, и особенно важно то, что это даёт возможность варьирования объёмной топливной фазой  $V_f$  в широких пределах вплоть до значения 0,75 (см. фиг. 3), например, при изготовлении топливных таблеток.

В процессе термообработки по режиму в соответствии с предложенной зависимостью металлический уран из топливных волокон (см. фиг. 1) диффундирует в циркониевую матрицу, равномерно распределяясь по сечению сердечника (см. фиг. 2). На фиг. 1 хорошо видны границы соприкосновения циркониевых оболочек топливных волокон, которые практически полностью исчезают в процессе диффузии (см. фиг. 2). На фиг. 2а и 2б приведены фрагменты шлифа твэла, показанного на фиг. 2 с различной степенью увеличения. Из фиг. 2 видно, что границы между оболочкой и сердечником, между оболочками соседних волокон, между ураном и оболочками "размыты". Сформировалась (фиг. 2б) мелкозернистая равномерная двухфазная разориентированная структура ( $\alpha\text{-Zr}$  и  $\text{UZr}_2$ ), которая существенно влияет на снижение радиационного роста.

На основе полученного твэла можно изготовить топливные таблетки, которые обеспечивают низкое распухание (например, для реакторов на быстрых нейтронах, для судовых реакторов с  $V_f = 0,75$ ), путём резки по диаметру и последующей обработки до нужных размеров, из которых формируют топливный сердечник укладкой таких таблеток в трубчатую оболочку.

Предложенный способ позволяет изготавливать топливные таблетки с мелкозернистой структурой

и высоким содержанием урана, а также прочностью, благодаря наличию сетчатой структуры (см. фиг. 3). На фиг. 3 приведено фото шлифа таблетки, изготовленной по предлагаемому способу с  $V_f = 0,75$ , а ниже приведён увеличенный фрагмент этого шлифа. Из фиг. 3 видно, что сформирована мелкозернистая структура, армированная крупной сеткой, являющаяся каркасным элементом таблетки.

Благодаря указанному техническому результату твэл, изготовленный по предложенному способу, обладает высокой теплопроводностью, прочностью, более длительным ресурсом работы и имеет размерную стабильность. Кроме того, изобретение расширяет технологические возможности изготовления твэлов и топливных таблеток, что позволяет осуществлять конверсию существующих реакторов при переходе с твэлов с высоким обогащением на твэлы с обогащением по изотопу  $U^{235}$  менее 20%.

#### ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ изготовления дисперсионного тепловыделяющего элемента, включающий получение биметаллического прутка путём обжатия стержня из металлического урана, заключённого в оболочку из циркония, деление его на части, объединение этих частей в сборку и обжатие сборки с получением многоволоконного прутка, при этом операции деления и объединения частей многоволоконного прутка в сборку с последующим обжатием осуществляют до получения требуемого количества волокон при обеспечении заданной объёмной доли топливной фазы, после чего осуществляют калибровку твэла до требуемой площади поперечного сечения твэла, отличающийся тем, что после калибровки проводят термообработку твэла в вакуумной среде при температуре нахождения урана в  $\gamma$ -фазе с последующим охлаждением, при этом время термообработки  $t$  определяют из соотношения

$$t \geq \frac{4SV_f}{\pi NK},$$

где  $S$  - площадь поперечного сечения сердечника твэла,

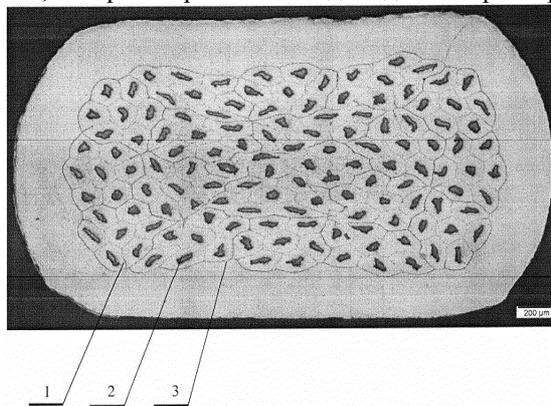
$V_f$  - объёмная доля топливной фазы,

$N$  - количество топливных волокон,

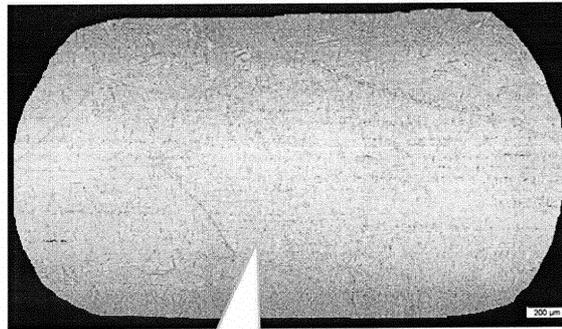
$K$  - коэффициент диффузии урана в цирконии.

2. Способ по п.1, отличающийся тем, что охлаждение твэла осуществляют со скоростью (30-50)°C/ч.

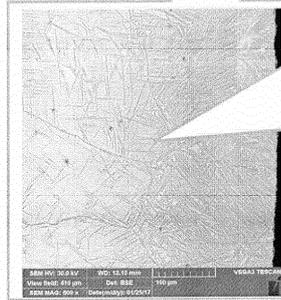
3. Способ получения топливных таблеток, характеризующийся тем, что твэл, полученный по п.1, нарезают по диаметру на части, которые обрабатывают до заданного размера.



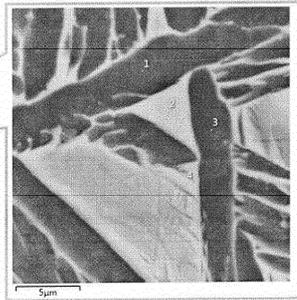
Фиг. 1



Фиг.2

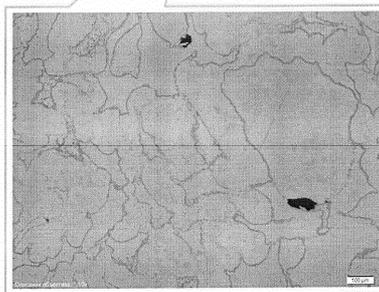
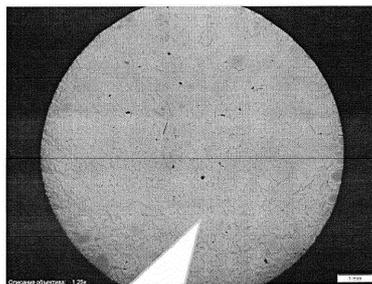


Фиг.2а



Фиг.2б

Фиг. 2



Фиг. 3

