(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ

(45) Дата публикации и выдачи патента

(51) Int. Cl. *G21C 3/62* (2006.01)

2023.01.31

(21) Номер заявки

202192974

(22) Дата подачи заявки

2020.04.27

(54) ТАБЛЕТКА ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

(31) 2020116142

(32)2020.04.27

(33)RU

(43) 2022.02.22

(86) PCT/RU2020/000579

(87) WO 2021/221533 2021.11.04

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:

АКЦИОНЕРНОЕ ОБЩЕСТВО "ТВЭЛ" (RU)

(72)Изобретатель:

> Новиков Владимир Владимирович, Михеев Евгений Николаевич,

Кузнецов Владимир Иванович, Лысиков Александр Владимирович, Самохвалов Анатолий Николаевич, Ярополов Юрий Леонидович, Сергиенко Иван Романович (RU)

(74) Представитель:

Снегов К.Г. (RU)

RU-C-1669308 RU-C1-2713619 EA-B1-033850 KR-B1-101622569

Изобретение относится к ядерной технике, а именно к конструкции таблетированного топлива для тепловыделяющих элементов легководных реакторов, например реакторов ВВЭР, и может быть использовано для твэлов реакторов, работающих в длительных топливных циклах, а также в режимах маневрирования мощностью реактора. Разработана конструкция таблетки, выполненной в форме цилиндра с наружными фасками и центральным отверстием вдоль продольной оси, наружной фаской под углом 20-30° к плоскости поверхности торцевой площадки, отношением ширины фаски к диаметру таблетки от 0,02 до 0,15, размер единичных дефектов внешнего вида таблетки не более 1,3% от площади наружной поверхности таблетки для дефектов торцевой поверхности, не более 1,0% от площади наружной поверхности таблетки для дефектов боковой цилиндрической поверхности и не более 0,7% от площади наружной поверхности таблетки для дефектов, примыкающих к наружной границе фаски, средний размер зерен диоксида урана составляет от 6 до 35 мкм. Таблетка может содержать алюминий от 0,002 до 0,020 мас.% и кремний от 0,001 до 0,010 мас. % в виде оксидов, распределенных равномерно по всему объему таблетки. Таблетка может содержать оксид гадолиния от 0,3 до 10,0 мас. %, который в виде твердого раствора с диоксидом урана равномерно распределен по всему объему таблетки, или оксид эрбия от 0,3 до 2,5 мас.%, который в виде твердого раствора с диоксидом урана равномерно распределен по всему объему таблетки. Технический результат заключается в снижении растягивающих окружных напряжений в оболочке твэлов за счет уменьшения размера единичных дефектов внешнего вида таблетки, а также в снижении выхода газообразных продуктов деления за счет введения добавок, увеличивающих размер зерна.

Область техники

Изобретение относится к области ядерной техники, а именно к конструкции таблетированного топлива для тепловыделяющих элементов легководных реакторов, например реакторов ВВЭР, и может быть использовано для твэлов реакторов, работающих в длительных топливных циклах, а также в режимах маневрирования мощностью реактора.

В настоящее время происходит постоянное ужесточение требований к ядерному топливу современных атомных реакторов. В частности, такое топливо должно обеспечивать безопасную работу реактора в длительных топливных циклах, в режимах маневрирования мощностью реактора и сохранять работоспособность при эксплуатации при высоких уровнях выгорания.

Предшествующий уровень техники

Известна таблетка (RU 2376665, МПК G21C 3/62, опубл. 2009 г.), которая содержит оксиды алюминия и кремния, равномерно распределенные по всему объему таблетки, причем по отношению к урану содержание алюминия составляет от 0.005 до 0.03 мас.%, кремния от 0.003 до 0.02 мас.%, массовое отношение алюминия к кремнию составляет от 1.5 до 4, размер зерна диоксида урана изменяется в пределах от 20 до 45 мкм.

Недостатком известной таблетки является более высокая граница по величине размера зерна, что снижает прочностные характеристики топлива и увеличивает скалываемость таблеток.

Известна таблетка ядерного топлива (RU 2193242, МПК G21C 3/62, C01G 43/025, опубл. 2002 г.) из диоксида урана с добавками алюминия от 0,03 до 0,10 мас.% и кремния от 0,01 до 0,05 мас.% в виде оксидов, распределенных по границам зерен диоксида урана. В частных вариантах эта таблетка может содержать также добавки оксида железа, распределенные частично по границам зерен и частично в виде твердого раствора в диоксиде урана, а также добавки оксида ниобия, распределенные в виде твердого раствора в диоксиде урана. В частных случаях таблетка из диоксида урана может иметь размер зерна от 10 до 20 мкм или от 12 до 30 мкм. В частных вариантах таблетка может содержать добавку оксида гадолиния от 0,3 до 10,0 мас.% или оксида эрбия от 0,3 до 0,8 мас.%.

Недостатком известной таблетки является высокое содержание легирующих элементов, превышающее существующие требования, что повышает суммарный борный эквивалент (СБЭ) топлива, и низкий размер зерна, что снижает способность к удержанию газообразных продуктов деления (ГПД) и препятствует достижению высоких выгораний.

Известна таблетка (RU 2339094, МПК G21C 3/62, опубл. 2007 г.) ядерного уран-эрбиевого керамического топлива от 0,36 до 0,64 вес.% по эрбию совместно с добавкой из порошка оксида алюминия (Al₂O₃) с порошком одного из оксидов следующего ряда: TiO_2 , Nb_2O_5 , SiO_2 , CaO, MgO либо только одной добавкой минеральных алюмосиликатов: каолин, метакаолин, галлаузит, монтмориллонит, вермикулит.

Недостатком известной таблетки является высокое содержание легирующих элементов - до 0,10 вес.% каждого элемента, что превышает существующие требования и повышает СБЭ топлива. В одном из вариантов размер зерна таблетки достигает до 50 мкм, что снижает прочностные характеристики топлива и увеличивает скалываемость таблеток.

Известна таблетка (RU 2268507, МПК G21C 3/62, 21/00, опубл. 2005 г.) ядерного топлива из двуокиси урана или из двуокиси урана с добавлением окиси гадолиния в количестве 2,0-8,0 вес.% совместно с добавкой из порошка оксида алюминия (Al_2O_3) с порошком одного из оксидов следующего ряда: TiO_2 , Nb_2O_5 , SiO_2 , CaO, MgO, BeO, Na_2O , P_2O_5 в количестве, обеспечивающем содержание в таблетке алюминия и окислообразующего элемента из указанного ряда в пределах 20-500 ррт каждого элемента по отношению к урану, при соотношении: 60-85% Al, остальное - окислообразующий элемент из указанного ряда.

Недостатком известной таблетки является высокое содержание легирующих элементов, превышающее существующие требования, что повышает СБЭ топлива. В одном из вариантов размер зерна таблетки достигает до 100 мкм, что снижает прочностные характеристики топлива и увеличивает скалываемость таблеток.

Наиболее близким аналогом является известная таблетка (RU 1669308, МПК G21C 3/28,3/16, опубл. 1994 г.), в конструкции которой для улучшения качества за счет увеличения прочности торцов, а также уменьшения термических деформаций таблеток и их термомеханического взаимодействия с оболочкой конусные с плоскими площадками выступы выполнены высотой $h_{\rm B}$ =(0,005-0,009)H, где H - высота таблетки, равная 0,25-2,0 ее диаметра, а конусные в виде полусфер или с плоскими площадками углубления выполнены высотой $h_{\rm v}$ =(1,1-2,5)($h_{\rm H,0}$, где $h_{\rm H,0}$, - высота наружной фаски.

Недостатком известной таблетки является снижение ураноемкости из-за наличия конусных выступов и углублений, увеличение окружных напряжений на внутренней поверхности оболочки твэла в местах контакта соседних таблеток топливного столба из-за увеличенной суммарной высоты фасок и выступов таблеток.

Раскрытие изобретения

Задачей заявляемого изобретения является обеспечение безопасной работы твэлов с топливными таблетками в режимах нормальной эксплуатации, нарушения нормальной эксплуатации и маневренных режимах работы реактора, а также повышение глубины выгорания топлива.

Технический результат заключается в снижении растягивающих окружных напряжений в оболочке твэлов за счет уменьшения размера единичных дефектов внешнего вида таблетки, а также в снижении выхода газообразных продуктов деления за счет введения добавок, увеличивающих размер зерна.

Технический результат достигается за счет того, что таблетка ядерного топлива выполнена в форме цилиндра с наружными фасками и с центральным отверстием вдоль продольной оси, причем наружная фаска, соединяющая боковую цилиндрическую поверхность с торцевой площадкой, проходит под углом α к плоскости поверхности торцевой площадки, равным 20-30°, а отношение ширины фаски к диаметру таблетки составляет l_{ϕ}/D =0,02-0,15, при этом размер единичных дефектов внешнего вида таблетки не более 1,3% от площади наружной поверхности таблетки для дефектов торцевой поверхности, не более 1,0% от площади наружной поверхности таблетки для дефектов боковой цилиндрической поверхности и не более 0,7% от площади наружной поверхности таблетки для дефектов, примыкающих к наружной границе фаски, причем средний размер зерен диоксида урана составляет от 6 до 35 мкм.

В частном варианте выполнения таблетки ядерного топлива она содержит алюминий от 0,002 до 0,020 мас.% и кремний от 0,001 до 0,010 мас.% в виде оксидов, распределенных равномерно по всему объему таблетки.

В другом частном варианте выполнения таблетки ядерного топлива она содержит от 0,3 до 10,0 мас.% гадолиния, который в виде твердого раствора с диоксидом урана равномерно распределен по всему объему таблетки.

В другом частном варианте выполнения таблетки ядерного топлива она содержит от 0,3 до 2,5 мас.% эрбия, который в виде твердого раствора с диоксидом урана равномерно распределен по всему объему таблетки.

Осуществление изобретения

На фиг. 1 представлен эскиз заявляемой таблетки ядерного топлива.

На фиг. 2 представлен эскиз характерных типов дефектов внешнего вида таблетки ядерного топлива.

На фиг. 3 приведена диаграмма максимальных окружных напряжений на внутренней стороне оболочки твэла в зависимости от площади дефекта (скола) топливной таблетки, примыкающего к наружной границе фаски.

Обеспечение безопасной работы твэлов с топливными таблетками в режимах нормальной эксплуатации, нарушения нормальной эксплуатации и маневренных режимах работы реактора достигается за счет снижения растягивающих окружных напряжений в оболочке твэлов, которое, в свою очередь, достигается за счет уменьшения размера единичных дефектов внешнего вида таблетки. Уменьшение размера дефектов, снижение повреждаемости таблеток в процессе производства и скалываемости при снаряжении и транспортных операциях достигаются благодаря повышению прочности прессовок и таблеток вследствие уменьшения остаточных напряжений в прессовках за счет оптимизации геометрических параметров таблеток, в частности наружных фасок, а также оптимизации содержания добавок алюминия, кремния в таблетках ядерного топлива и диапазона размеров зерна. Повышение глубины выгорания топлива обеспечивается снижением выхода газообразных продуктов деления за счет введения в таблетки ядерного топлива добавок, увеличивающих размер зерна.

Таблетка ядерного топлива (фиг. 1) выполнена в форме цилиндра 1 с центральным отверстием 2 вдоль продольной оси и наружными фасками 3, причем наружная фаска, соединяющая боковую цилиндрическую поверхность с торцевой площадкой, проходит под углом а к плоскости поверхности торцевой площадки, равным $20-30^{\circ}$, а отношение ширины фаски к диаметру таблетки составляет $l_{\phi}/D=0.02-0.15$. Обеспечение безопасной эксплуатации усовершенствованного топлива ВВЭР достигается за счет повышения прочностных характеристик, уменьшения количества сколов и снижения образования крошки внутри твэла при снаряжении и транспортировке. Данный результат достигается за счет снижения остаточных напряжений в топливной таблетке, в особенности в областях вблизи наружных фасок, что способствует повышению прочности прессовок и спеченных таблеток и, соответственно, уменьшению повреждаемости таблеток в процессе их изготовления. Для снижения остаточных напряжений в топливной таблетке была разработана математическая модель прессования [Математическое моделирование процесса прессования порошка диоксида урана при изготовлении таблеток ядерного топлива. О.А. Бахтеев, А.В. Лысиков, Е.Н. Михеев, А.Н. Жиганов, А.Д. Истомин, А.А. Матолыгин, М.Д. Носков, А.А. Чеглоков // Вестник национального исследовательского ядерного университета МИФИ, Изд.: МА-ИК "Наука/Интерпериодика" (Москва), 2014, т. 3, № 6, с. 618], с помощью которой выполнены многовариантные вычислительные модельные эксперименты на массиве экспериментальных данных прессования таблеток. Для минимизации компонент тензора остаточных напряжений проведена оптимизация геометрических параметров таблеток в современных производственных условиях изготовления, что позволило повысить прочность прессовок и таблеток и, как следствие, снизить количество и размеры образуемых дефектов в процессе производства топливных таблеток. Оптимальные геометрические параметры для уменьшения скалываемости таблеток ядерного топлива - угол наружной фаски, равный 20-30°, по отношению к плоскости поверхности торцевой площадки и отношение ширины фаски к диаметру таблетки, равное $l_{\phi}/D=0.02-0.15$.

В практике реакторных исследований и эксплуатации известны случаи отказа твэлов по причине разгерметизации оболочки, которая происходила в местах появления дефектов топливной таблетки, появляющихся в процессе изготовления таблеток, снаряжения твэлов, транспортных операциях или в процессе эксплуатации [Krupkin A., Kuznetsov V., Nesterov B., Novikov V. Simulation of ramp tests on WWER-1000 fuel rod without a central hole in ANSYS software // In Proc.: 11th International Conference on WWER Fuel Performance, Modeling and Experimental Support, Varna, Bulgaria, 2015. - p. 416-421]. Исследования напряженно-деформированного состояния оболочки методами численного моделирования в условиях скачка мощности и при наличии скола таблетки подтвердили возможность образования трещины в оболочке по механизму коррозионного растрескивания под напряжением. Проведены работы по определению величины прироста напряжений на внутренней поверхности оболочки твэла при различных геометрических параметрах дефекта топливной таблетки. Как видно из приведенной диаграммы (фиг. 3), критерий напряжений SC1 оболочки твэла для кратковременных режимов (величиной 350 МПа) ограничивает допустимый размер единичного дефекта, примыкающего к наружной границе фаски таблетки ядерного топлива, величиной, соответствующей 0,7% от общей площади поверхности таблетки. На основании этих данных установлены требования на максимально допустимую площадь единичных дефектов поверхности топливной таблетки, которая позволяет обосновать прочность оболочки твэла в переходных режимах эксплуатации реактора. Исходя из наличия статистической вероятности совмещения двух дефектов, примыкающих к наружной границе фаски, для двух соседних таблеток или на одной таблетке со стороны как торцевой, так и боковой поверхностей максимальная площадь единичных дефектов для торцевой и боковой цилиндрической поверхности рассчитана как эквивалентная площадь двух совмещенных дефектов.

Повышение безопасности при эксплуатации в маневренных режимах, в режимах нормальной эксплуатации и нарушения нормальной эксплуатации достигается за счет того, что уменьшен допустимый размер единичных поверхностных дефектов внешнего вида (фиг. 2). По сравнению с действующими техническими требованиями, предъявляемыми к таблеткам для реакторов ВВЭР, площадь единичного дефекта 1 торцевой поверхности уменьшена с 1,7 до 1,3% от площади наружной поверхности таблетки. Площадь единичного дефекта 2 боковой цилиндрической поверхности уменьшена с 2,0 до 1,0% от площади наружной поверхности таблетки. Площадь единичного дефекта 3, примыкающего к наружной границе фаски, уменьшена с 1,7 до 0,7% от площади наружной поверхности таблетки.

Повышение уровня выгорания достигается, главным образом, за счет использования топлива с увеличенным размером зерна. Существующие требования предполагают средний размер зерна для "штатных" топливных таблеток из диоксида урана без микродобавок 10-25 мкм; для таблеток с микродобавками алюминия и кремния не менее 25 мкм; для таблеток с добавкой оксида гадолиния от 6 до 25 мкм. Для заявляемой таблетки в зависимости от используемых добавок оптимальный размер зерна составляет от 6 до 35 мкм. Снижение выхода ГПД обеспечивается за счет введения добавок алюминия и кремния, увеличивающих размер зерна до 25-35 мкм [A.V. Medvedev, J.K. Bibilashvili, O.V. Milovanov, S.M. Bogatyr, Influencing and optimizing fuel pellet parameters for achievement of extended burnup // IAEA-TECDOC-1036 In Proc.: Technical Committee meeting, Tokyo, Japan, 1996. - p. 257-266], благодаря чему ГПД удерживаются во внутризеренных порах и тем самым уменьшается выход ГПД в связанные поры, расположенные по границам зерен, и замедляет образование гіт-структуры. Увеличение размера зерна больше 35 мкм, вопервых, приводит к снижению пластичности топлива и уменьшению скорости ползучести, которая обратно пропорциональна квадрату размера зерна, что в итоге повышает взаимодействие топлива с оболочкой. Во-вторых, увеличение размера зерна больше 35 мкм приводит к повышению скалываемости таблеток при снаряжении и транспортировании твэлов за счет повышения хрупкости вследствие изменения механизма распространения трещин с межкристаллитного на транскристаллитный [Вязкость разрушения топливных таблеток BBЭР и PWR из диоксида урана с разным размером зерна. Новиков В.В., Сивов Р.Б., Михеев Е.Н., Федотов А.В. // Атомная энергия, 2015, т. 118, вып.2, с. 91-96] и изменения характера пористости.

Повышение безопасности при эксплуатации при повышенных уровнях выгорания достигается за счет того, что в частном варианте выполнения таблетки ядерного топлива она содержит алюминий от 0,002 до 0,020 мас.% и кремний от 0,001 до 0,010 мас.% в виде оксидов, распределенных равномерно по всему объему таблетки, а размер зерна диоксида урана составляет от 25 до 35 мкм. Этот диапазон размера зерна, с одной стороны, способствует эффективному уменьшению выхода ГПД, с другой стороны, лимитирует повышение скалываемости и позволяет минимизировать количество вводимых добавок для активации роста зерна при изготовлении таблеток. При этом в других частных вариантах выполнения таблетки ядерного топлива она содержит от 0,3 до 10,0 мас.% гадолиния или от 0,3 до 2,5 мас.% эрбия, которые в виде твердого раствора с диоксидом урана равномерно распределены по всему объему таблетки, а размер зерна составляет от 6 до 25 мкм.

Промышленная применимость

Описываемая таблетка ядерного топлива изготавливается известным образом с помощью обычных средств на стандартном оборудовании. Топливо должно иметь определенный фазовый состав, средний

размер зерна, и прочие стандартные параметры.

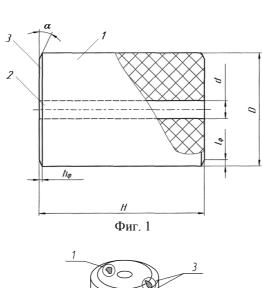
Технология изготовления таблеток ядерного топлива заключается в следующем. В смесителе, в частности, двух- или трехплоскостном гравитационного типа готовится многокомпонентная смесь двуокиси урана (UO_2) , закиси-окиси урана (U_3O_8) , порообразователя, микродобавок кремния и алюминия в виде SiO_2 и Al_2O_3 или $Al(OH)_3$. Далее смесь подвергается грануляции, после чего в гранулят через лигатуру вводится пластификатор и производится перемешивание в смесителе и рассев через сито. Далее осуществляется прессование таблеток, мягкая укладка таблеток в молибденовую лодочку и высокотемпературное спекание. После этого производится шлифование на бесцентровом шлифовальном станке и автоматическая укладка таблеток на паллеты.

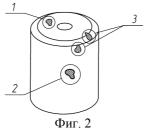
При изготовлении таблеток с добавками гадолиния или эрбия этап подготовки гомогенизированной смеси порошков может дополнительно включать лигатурное смешивание компонентов с последующей обработкой в смесителе и/или вибромельнице.

Таким образом, разработана конструкция таблетки ядерного топлива, обеспечивающая безопасную работу твэлов в режимах нормальной эксплуатации, нарушения нормальной эксплуатации и маневренных режимах работы реактора за счет уменьшения размера единичных дефектов внешнего вида таблетки и снижения растягивающих окружных напряжений в оболочке твэлов, а также повышение глубины выгорания топлива за счет введения добавок, увеличивающих размер зерна и снижения выхода газообразных продуктов деления.

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

- 1. Таблетка ядерного топлива из диоксида урана для ядерных реакторов типа ВВЭР, выполненная в форме цилиндра с наружными фасками и с центральным отверстием вдоль продольной оси, отличающаяся тем, что наружная фаска, соединяющая боковую цилиндрическую поверхность с торцевой площадкой, проходит под углом α к плоскости поверхности торцевой площадки, равным 20-30°, а отношение ширины фаски к диаметру таблетки составляет l_{ϕ}/D =0,02-0,15, при этом размер единичных дефектов внешнего вида таблетки не более 1,3% от площади наружной поверхности таблетки для дефектов торцевой поверхности, не более 1,0% от площади наружной поверхности таблетки для дефектов боковой цилиндрической поверхности и не более 0,7% от площади наружной поверхности таблетки для дефектов, примыкающих к наружной границе фаски, причем средний размер зерен диоксида урана составляет от 6 до 35 мкм.
- 2. Таблетка по п.1, отличающаяся тем, что она содержит алюминий от 0,002 до 0,020 мас.% и кремний от 0,001 до 0,010 мас.% в виде оксидов, распределенных равномерно по всему объему таблетки.
- 3. Таблетка по п.1, отличающаяся тем, что она содержит от 0,3 до 10,0 мас.% оксида гадолиния, который в виде твердого раствора с диоксидом урана равномерно распределен по всему объему таблетки.
- 4. Таблетка по п.1, отличающаяся тем, что она содержит от 0,3 до 2,5 мас.% оксида эрбия, который в виде твердого раствора с диоксидом урана равномерно распределен по всему объему таблетки.







Фиг. 3