

Акционерное общество «Государственный научный центр –
Научно-исследовательский институт атомных реакторов»

УДК 621.039.531

ГРНТИ 29.19.21

На правах рукописи

Беляева Анна Викторовна

**ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ БЫСТРЫМИ НЕЙТРОНАМИ НА
МИКРОСТРУКТУРУ И РАСПУХАНИЕ УРАН-ПЛУТОНИЕВОГО
НИТРИДНОГО ТОПЛИВА**

1.3.8. Физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание ученой степени кандидата технических наук

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук
Крюков Федор Николаевич

Димитровград – 2022г.

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ.....	4
Глава 1. Обзор литературных данных.....	10
1.1 Изменение объема нитридного топлива в процессе облучения.....	10
1.2 Влияние облучения на химический и фазовый состав UPuN.....	13
1.2.1 Кристаллическая структура и фазовый состав необлученного топлива	13
1.2.2 Химический и фазовый состав облученного топлива	16
1.2.3 Влияние примесей на фазовый состав нитридного топлива.....	21
1.3 Влияние условий облучения на поведение продуктов деления и распухание топлива	23
1.4 Изменение микроструктуры топлива в результате облучения.....	27
1.5 Распухание за счет твердых продуктов деления.....	31
1.6 Распухание за счет газообразных продуктов деления. Газовыделение	33
1.7 Основные выводы главы 1 и выбор направлений исследования	35
Глава 2. Характеристика материалов, условий облучения и методов послереакторных исследований	37
2.1 Характеристика топлива, твэлов и условий облучения	37
2.2 Методы исследования облученных топливных композиций	41
2.3 Выводы по главе 2.....	53
Глава 3. Особенности структурно-фазового состояния уран-плутониевого нитридного топлива после низкотемпературного облучения в реакторе БОР-60.....	54
3.1. Микроструктура нитридного топлива после облучения.....	54
3.2. Результаты исследований элементного состава топливной композиции.....	63
3.3 Кристаллическая структура топливной композиции после облучения	69
3.4 Выводы по главе 3.....	72
Глава 4 Радиационное распухание нитридного топлива в условиях низкотемпературного облучения.....	74
4.1 Изменение размеров топливного сердечника	74
4.2 Изменение плотности топлива в результате облучения.....	77
4.3 Распухание уран-плутониевого нитридного топлива.....	78
4.4. Механизмы радиационного распухания нитридного топлива в условиях низкотемпературного облучения.....	80
4.5 Выводы по главе 4.....	87
Глава 5 Особенности структурно-фазового состояния уран-плутониевого нитридного топлива после высокотемпературного облучения в реакторе БОР-60.....	88

5.1 Микроструктура нитридного топлива после облучения	88
5.2 Результаты исследований элементного состава топливной композиции	93
5.2.1 Распределение газообразных и летучих продуктов деления	93
5.2.2 Распределение твердых продуктов деления и компонентов топлива	96
5.3. Кристаллическая структура топливной композиции после облучения	98
5.4 Выводы по главе 5	100
Глава 6 Радиационное набухание нитридного топлива в условиях высокотемпературного облучения	101
6.1 Изменение размеров топливного сердечника	101
6.2 Изменение плотности топлива в результате облучения	106
6.3 Определение набухания уран-плутониевого нитридного топлива	107
6.5 Оценка скорости набухания топлива в свободном состоянии и в условиях сдерживания со стороны оболочки	110
6.4 Механизмы радиационного набухания нитридного топлива в условиях высокотемпературного облучения.	112
6.5 Выводы по главе 6	116
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	117
СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ	119
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	120

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность работы

Стратегия развития атомной энергетики России основывается на двухкомпонентной системе с реакторами на быстрых и тепловых нейтронах и замкнутым ядерным топливным циклом [1]. В настоящее время в России существует два направления развития реакторов на быстрых нейтронах – это реакторы типа БН с натриевым теплоносителем (действующие БН-600 и БН-800 и проектируемый БН-1200) и реакторы со свинцовым теплоносителем типа БРЕСТ (проектируемые БРЕСТ ОД-300 и БРЕСТ-1200). На первом этапе освоения реакторов на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем используется оксидное урановое и уран-плутониевое топливо, а в качестве перспективы рассматривается использование смешанного нитридного уран-плутониевого (СНУП) топлива. В проектах реакторов БРЕСТ изначально заложено использование нитридного топлива.

Сочетание высоких значений теплопроводности, температуры до начала разложения, удельного содержания тяжёлых изотопов в соединениях на основе моонитридов урана и плутония и их совместимость как с натриевым, так и со свинцовым теплоносителем позволяют рассматривать эти соединения в качестве топливных композиций, способных обеспечить необходимые нейтронно-физические характеристики, теплогидравлические параметры и безопасную работу реакторных установок на быстрых нейтронах. Для практического применения нитридного топлива необходима информация о влиянии реакторного облучения на изменение его свойств [2].

К числу основных факторов, определяющих работоспособность тепловыделяющих элементов (ТВЭЛОВ), относится радиационное распухание топлива, природа которого обусловлена изменением элементного состава и структуры топливной композиции вследствие образования и накопления продуктов деления. Поведение газообразных и твердых продуктов деления, структурно-фазовое состояние облученного топлива зависят от нейтронно-физических и температурных условий облучения, достигнутого уровня выгорания и исходных характеристик топливной композиции.

В рамках выполнения научно-исследовательских программ по изучению свойств нитридного топлива в АО «ВНИИНМ» были разработаны и изготовлены экспериментальные ТВЭЛЫ с топливными композициями (U,Pu)N для облучения в опытном реакторе на быстрых нейтронах БОР-60 (АО «ГНЦ НИИАР»). Различное конструктивное исполнение ТВЭЛОВ и сборно-разборный тип облучательных устройств обеспечили возможность проведения реакторных испытаний топлива в интервале температуры от 550 до 1760 °С с поэтапным увеличением выгорания до 5,5 % т.а. для ТВЭЛОВ с жидкометаллическим (свинцовым)

заполнением и до 12,1 % т.а. для твэлов с газовым (гелиевым) заполнением, промежуточными и итоговыми послереакторными исследованиями в материаловедческом комплексе НИИАР. В результате был получен обширный массив экспериментальных данных о влиянии облучения в реакторе на быстрых нейтронах на состояние топливных композиций, оболочек и твэлов в целом. К числу наиболее актуальных, существенных для развития научных представлений и важных для практического применения относятся экспериментальные данные о характеристиках радиационного набухания нитридного топлива, представленные в настоящей работе.

Цель и задачи

Целью работы было выявление закономерностей набухания уран-плутониевого нитридного топлива под действием облучения в реакторе на быстрых нейтронах.

Для достижения поставленной цели было необходимо решить следующие задачи.

1. Получить экспериментальные данные о распределении продуктов деления, микроструктуре, фазовом составе и изменении объёма уран-плутониевого нитридного топлива для выявления физической природы, величины и скорости набухания в результате низкотемпературного облучения в твэлах со свинцовым заполнением.
2. Исследовать влияние уровня выгорания при низкотемпературном облучении на особенности состояния топлива – перераспределение продуктов деления, изменение микроструктуры и скорости набухания.
3. Получить экспериментальные данные о влиянии температуры на перераспределение продуктов деления, изменения микроструктуры и фазового состава топлива для анализа особенностей его набухания в условиях повышенных температур в составе твэлов с гелиевым заполнением.
4. Определить скорость свободного и сдерживаемого оболочкой набухания уран-плутониевого нитридного топлива на разных этапах облучения в составе твэлов с гелиевым заполнением, определить изменения объёма твёрдой фазы и пористости.

Научная новизна полученных результатов

1. Установлено, что в результате облучения уран-плутониевого нитридного топлива при температуре в центре сердечника ниже 870 °С до выгорания 3,9 % т.а. его набухание обусловлено в основном увеличением объёма твёрдой фазы; изменений микроструктуры и фазового состава, влияющих на набухание, не происходит, основное количество продуктов деления находится в твёрдой фазе, обуславливая увеличение параметра кристаллической решётки многокомпонентного твёрдого раствора на основе (U,Pu)N.
2. Обнаружено, что при низкотемпературном облучении уран-плутониевого нитридного топлива до уровня выгорания около 5,5 % начинается процесс формирования характерной

мелкопористой субзёрненной структуры высоковыгоревшего топлива, связанный с измельчением зерна до субмикронных размеров, формированием пористости и выходом газообразных продуктов деления в образующиеся поры. Увеличение средней скорости набухания топлива за счёт реструктуризации на начальном этапе составило около 0,1 %/% выгорания.

3. Установлено, что в результате облучения уран-плутониевого нитридного топлива при максимальной температуре в центре таблетки до 1760 °С основные изменения микроструктуры связаны с выходом газообразных продуктов деления из твёрдой фазы, образованием новых пор, увеличением пористости и выделением вторых фаз, содержащих металлические продукты деления, при этом основу твёрдой фазы составляет многокомпонентный твёрдый раствор с увеличенным параметром кристаллической решётки.

4. Для данной конструкции ТВЭЛов и условий облучения определены значения выгорания до контакта топлива с оболочкой, количественные характеристики свободного и сдерживаемого оболочкой набухания, значения величины и скорости набухания за счёт увеличения пористости и увеличения объёма твёрдой фазы, включая вклад за счёт увеличения параметра кристаллической решётки.

Практическая значимость работы

Исследования, результаты которых представлены в диссертации, являются частью работ, выполненных в рамках ФЦП «Ядерные энерготехнологии нового поколения на период 2010-2015 годов и на перспективу до 2020 года» и реализуемой в настоящее время в Госкорпорации «Росатом» «Комплексной программы расчетно-экспериментального обоснования плотного топлива для реакторов на быстрых нейтронах». Полученные экспериментальные данные о влиянии нейтронного облучения в опытном реакторе БОР-60 на свойства уран-плутониевого нитридного топлива послужили основой для обоснования работоспособности, безопасности и возможности поэтапного увеличения выгорания в промышленном реакторе БН-600, для обоснования проектов ТВЭЛов первых загрузок реакторов БРЕСТ-ОД-300 и БН-1200, а также для подготовки программы НИОКР «Разработка смешанного уран-плутониевого нитридного (СНУП) топлива со средним выгоранием до 12 % т.а.». Результаты исследования микроструктуры, поведения продуктов деления и набухания нитридного топлива непосредственно использованы при разработке универсального ТВЭЛного кода БЕРКУТ (ИБРАЭ РАН), для модернизации и верификации топливного кода ДРАКОН (АО «ГНЦ РФ-ФЭИ»), предназначенных для численного моделирования поведения топлива и ТВЭЛов в реакторах на быстрых нейтронах, что подтверждено справками об использовании результатов.

Основные положения и результаты, выносимые на защиту

1. Распухание нитридного уран-плутониевого топлива, облученного в составе твэлов со свинцовым подслоем при максимальной температуре в центре таблетки ниже 870 °С до выгорания 3,9 % т.а., происходит преимущественно за счет увеличения объема твёрдой фазы вследствие образования и накопления продуктов деления в топливной матрице, новых пор не образуется, выход ГПД в технологические поры происходит по атермическому механизму; средняя скорость распухания топливной композиции не превышает $(1,4 \pm 0,1) \%/\%$ выгорания.
2. При достижении выгорания 5,5 % т.а. в нитридном уран-плутониевом топливе, облученном в составе твэлов со свинцовым подслоем при максимальной температуре 870 °С, обнаружено явление реструктуризации, сопровождающееся образованием новых пор, выходом газообразных продуктов деления в поры и формированием субзеренной структуры. Это приводит к изменению механизма и скорости распухания топлива: к распуханию за счет увеличения объема твёрдой фазы (при начальном уровне выгорания) добавляется вклад в распухание за счет образования и роста пор, появившихся в процессе реструктуризации. Скорость распухания топлива на начальной стадии реструктуризации при выгорании 5,5 % т.а. составила $(1,5 \pm 0,1) \%/\%$ выгорания.
3. В уран-плутониевом нитридном топливе, облученном в составе твэлов с гелиевым подслоем до выгорания 12,1 % т.а. при максимальной температуре в центре топлива до 1760 °С, выход ксенона и цезия из твёрдой фазы составляет соответственно 65 и 62 % от образовавшихся количеств. Распухание топлива происходит как за счёт увеличения объема твёрдой фазы, так и за счёт формирования пористости.
4. Распухание уран-плутониевого нитридного топлива, облучённого в составе твэлов с гелиевым подслоем, состоит из двух стадий – стадии свободного распухания до контакта топлива с оболочкой при выгорании меньше 5 % т.а. и стадии распухания в условиях механического сдерживания со стороны оболочки твэла при выгорании выше 5 % т.а. Скорость распухания топлива до контакта с оболочкой составляет $(2,1 \pm 0,2) \%/\%$ выгорания, при этом средняя за весь период облучения скорость распухания равна $(1,3 \pm 0,1) \%/\%$ выгорания.

Апробация работы

Основные положения и результаты, полученные на разных стадиях проведения данной работы, докладывались и обсуждались на Всероссийской научной школе для молодежи «Реакторы на быстрых нейтронах» (г. Обнинск, 2009 г.), VIII Курчатовской молодежной научной школе (г. Москва, 2010 г.), Всероссийской научной конференции «Материалы ядерной техники» (Туапсе, 2010 г.), Молодежной отраслевой научно-технической конференции «Развитие технологий реакторов на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем» (Нижний Новгород, 2011 г.), Международной школе-семинаре по ядерным технологиям «Черемшанские

чтения» (Дмитровград, 2011 г.), школе-конференции для молодых ученых и специалистов «Материалы перспективных реакторных установок» (г. Звенигород, 2012 г.), Международной научно-технической конференции «Инновационные проекты и технологии ядерной энергетики» (Москва, 2012 г.), Всероссийской молодежной конференции «Научные исследования и технологические разработки в обеспечение развития ядерных технологий нового поколения» (Дмитровград, 2016 г.), Всероссийской молодежной конференции «Научные исследования и технологические разработки в обеспечение развития ядерных технологий нового поколения» (Дмитровград, 2018 г.), XI конференции по реакторному материаловедению (Дмитровград, 2019 г.), X Всероссийской молодежной конференция «Научные исследования и технологические разработки в обеспечение развития ядерных технологий нового поколения» (Дмитровград, 2021 г.).

Достоверность научных положений, результатов и выводов определяется:

- воспроизводимостью экспериментальных данных;
- верификацией методов исследований по результатам измерений разными методами и сравнением с литературными данными;
- метрологической аттестацией методик исследования;
- наличием системы обеспечения качества в АО «ГНЦ НИИАР» в соответствии с государственной аккредитацией научной организации в области обеспечения единства измерения для выполнения работ и (или) оказания услуг по аттестации методик (методов) измерений, метрологической экспертизе и поверке средств измерений (аттестат аккредитации № 01.00050-2014 от 12.05.2014), а также лицензией на осуществление деятельности по данному тематическому направлению (ГН-03-115-3888 от 10.08.2020).

Личный вклад автора

Все экспериментальные результаты послереакторных исследований получены в отделении реакторного материаловедения АО «ГНЦ НИИАР» при непосредственном участии автора. Личный вклад автора состоит в получении, обработке, анализе и обобщении экспериментальных данных, подготовке публикаций. Постановка задач и обсуждение результатов были проведены совместно с научным руководителем. Основные результаты, использованные в диссертации для определения особенностей распухания СНУП топлива, получены автором самостоятельно. Исследования методами рентгеноструктурного анализа, сканирующей электронной микроскопии и электронно-зондового рентгеноспектрального микроанализа выполнены с участием доктора технических наук, профессора Косенкова В.М., кандидатов физико-математических наук Кузьмина С.В. и Никитина О.Н. Параметры облучения экспериментальных твэлов в реакторе БОР-60 были рассчитаны в управлении перспективных разработок реакторного исследовательского комплекса АО «ГНЦ НИИАР» под

руководством доктора технических наук Жемкова И.Ю. и в АО «ГНЦ РФ ФЭИ» под руководством кандидата технических наук Забудько Л.М.

Публикации

По теме диссертации и результатам исследований при участии автора в научных изданиях опубликованы 19 научных работ, в том числе, 7 статей в изданиях, входящих в международные реферативные базы данных и системы цитирования Scopus и Web of Science, 3 статьи в журналах, входящих в национальную библиографическую базу данных научного цитирования, индексируемых в РИНЦ, 9 статей в сборниках и трудах международных и российских научных конференций.

Структура и объём диссертации

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения и списка цитируемой литературы. Общий объём работы составляет 125 страницы, включая 69 рисунков и 30 таблиц. Список литературы содержит 73 наименования.

Глава 1. Обзор литературных данных

К основным факторам, определяющим работоспособность твэла, относят радиационное распухание топлива, которое происходит за счет образования и накопления твердых и газообразных продуктов деления и приводит, с одной стороны, к увеличению диаметра топливного сердечника, а с другой – к уменьшению его плотности. Скорость распухания топлива в процессе облучения зависит от условий облучения, конструкции твэла и исходных характеристик топливного сердечника. Поэтому для прогнозирования распухания топлива требуется знание многих характеристик, которые меняются в процессе облучения, а комплексное исследование и анализ распухания ядерного топлива включает в себя не только его количественное выражение, но также изучение механизмов и влияния на скорость распухания различных факторов.

1.1 Изменение объема нитридного топлива в процессе облучения

Увеличение объёма топливного сердечника тепловыделяющего элемента под действием облучения (радиационное распухание) обусловлено изменением элементного и фазового состава ядерного топлива в результате деления тяжелых элементов.

В общем случае в увеличение объема ядерного топлива вносят вклад следующие процессы:

- изменение объема твёрдой фазы за счет увеличения количества атомов вещества (атомов продуктов деления), которые могут находиться в состоянии твёрдого раствора в кристаллической решетке $UPuN$ или образовывать включения вторых фаз, кластеры, скопления на дислокациях и на границах зёрен;
- образование и рост газовых пор вследствие накопления и выделения газообразных продуктов деления (ГПД) в топливном сердечнике;
- изменения размера технологических пор [3].

Понимание причин, вызывающих увеличение объема ядерного топлива в процессе облучения, не позволяет, однако, легко спрогнозировать скорость его распухания в рабочих условиях. Величина распухания зависит от многих факторов, оказывающих существенное влияние на поведение продуктов деления и состояние твердого раствора: температуры и выгорания, содержания примесей, конструкции твэла, плотности и структуры топливного сердечника (доли открытой и закрытой пористости) и др. Другими словами, для прогнозирования распухания нитридного топлива требуется знание многих характеристик, изменяющихся под облучением [4, 5]. Поэтому на практике получают разного рода эмпирические зависимости, определяющие распухание топливного сердечника в составе реальных изделий [6].

Для подтверждения существующих эмпирических зависимостей, полученных для определенных условий облучения и характеристик топливных композиций, а также увеличения их статистической достоверности необходимы экспериментальные данные. Первые реакторные испытания и послереакторные исследования твэлов с нитридным топливом были проведены в конце 1960-х гг. при высоких тепловых нагрузках (1000 Вт/см и выше) и высокой температуре топливных сердечников (выше 1600 °С). Для описания относительного изменения объема топлива вследствие радиационного распухания часто используется значение скорости распухания, измеряемой в %/% выгорания. Скорость распухания или удельное распухание топливных материалов – это относительное изменение объема топлива за время облучения, в течение которого происходило деление 1 % тяжелых атомов. Средняя скорость распухания нитридного топлива $U_{0,8}Pu_{0,2}N$ в рассмотренных экспериментах принимала значения от 1,6 %/ % выгорания (при температуре в центре таблетки ниже 1350 °С) до 5 %/ % выгорания (при температуре топлива в центре таблетки выше 1350 °С) (рисунок 1.1) [5].

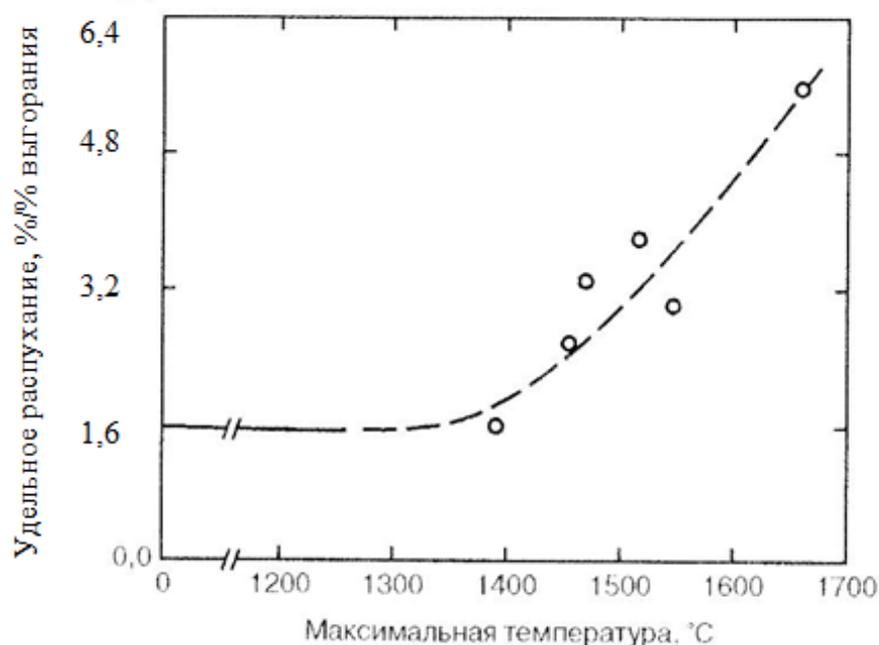


Рисунок 1.1 – Зависимость изменения объема уран-плутониевого нитрида от температуры в центре таблетки (линейная тепловая мощность 1918 Вт/см) [5]

Исследования, проведенные при высоких тепловых нагрузках в реакторах на тепловых нейтронах [6-8], подтвердили высокие эксплуатационные характеристики топливных композиций на основе нитридов урана и плутония, однако для эффективной и безопасной работы современных реакторных установок в России принята и реализуется стратегия развития реакторов на быстрых нейтронах умеренной энергонапряженности [4].

Поэтому при анализе литературных данных внимание было сконцентрировано на результатах исследований радиационного распухания уран-плутониевого нитридного

топлива, облученного при умеренных тепловых нагрузках в реакторах на быстрых нейтронах. В таблице 1.1 представлены сводные данные о скорости распухания уран-плутониевого нитридного топлива, облученного в составе ТВЭЛОВ реакторов БОР-60, БН-600 (Россия), Phenix (Франция), JOYO, JMTR (Япония) [9-14]. Весомый вклад в общий объем знаний, касающихся поведения и свойств нитридного топлива в условиях реакторного облучения, получен при эксплуатации нитрида урана в реакторе БР-10: было облучено 1250 ТВЭЛОВ с нитридным топливом, большая часть которых проработала до проектного выгорания 8 % т.а. [15].

Таблица 1.1 – Сводные данные о распухании нитридного топлива

Состав топлива	Реактор	Выгорание, % т.а.	Линейная мощность, Вт/см	Подслои	Скорость распухания, %/ % выгорания	Источ- ник
$U_{0,8}Pu_{0,2}N$	JMTR	3,4 4,1	535 650	гелий	0,39 0,3	9
$U_{0,8}Pu_{0,2}N$	JOYO	4,3	750	гелий	1,8	10
$U_{0,8}Pu_{0,2}N$	Phenix	3,71 6,93 3,71	420	гелий	1,89 1,69 2,43	11
$U_{0,8}Pu_{0,2}N$	Phenix	5,68	730	гелий	1,75	11
$U_{0,86}Pu_{0,14}N$	БН-600	5,5	383	гелий	2,4	12,13
$U_{0,86}Pu_{0,12}N$	БОР-60	1,3	360	гелий	2,4	14
$U_{0,86}Pu_{0,12}N$	БОР-60	2,5 3,2	360	гелий	1,5 2,8	14
UN	БР-10	3,9	500	натрий	1,0	15
UN	БР-10	2,9 3,6 3,8 4,3	500	гелий	2,68 2,50 2,76 1,8*	15

* - скорость распухания после контакта топлива с оболочкой

Из данных таблицы 1.1 можно увидеть, что скорость распухания нитридного топлива в рассмотренных работах находится в интервале от 0,3 до 2,8 %/%, что может быть следствием влияния условий облучения, состава (особенно содержания примесей) и структуры топливных композиций. Поэтому комплексное исследование и анализ распухания ядерного топлива включает в себя не только его количественное выражение, но также изучение механизмов и влияния различных факторов на скорость распухания.

1.2 Влияние облучения на химический и фазовый состав UPuN

1.2.1 Кристаллическая структура и фазовый состав необлученного топлива

Уран-плутониевое нитридное топливо представляет собой твердый раствор замещения на основе моонитридов урана и плутония. Подобно оксидам UO_2 и PuO_2 , UN и PuN могут образовывать неограниченный ряд твердых растворов [4]. Хорошая взаимная растворимость UN и PuN в твердом состоянии обусловлена одинаковым типом химической связи, типом и близкими значениями параметра кристаллических решеток этих соединений.

Гранецентрированная кубическая кристаллическая решетка твердого раствора UPuN имеет плотную упаковку. Ее геометрия главным образом определяется близкорасположенными большими атомами металла (U и Pu), которые находятся в узлах кристаллической решетки. Меньшие по размеру атомы азота (N) занимают октаэдрические междуузлия (рисунок 1.2) [3,16].

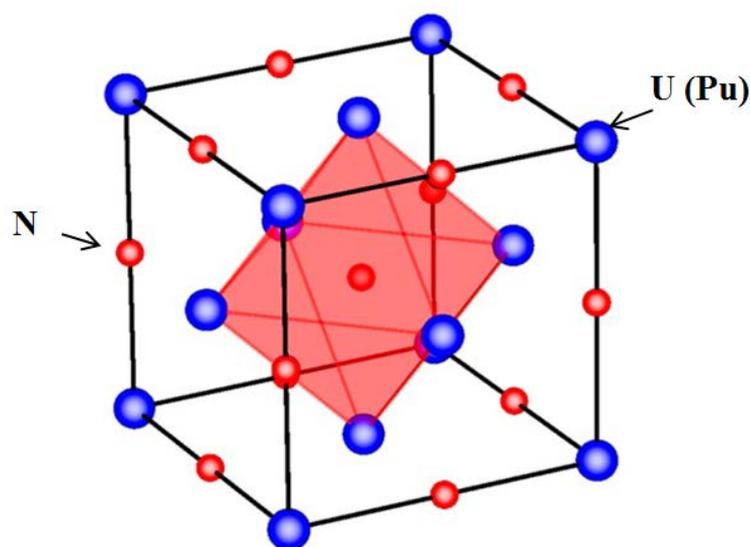


Рисунок 1.2 – Кристаллическая структура UPuN (каждый атом N окружен шестью атомами U или Pu в октаэдрической конфигурации) [16]

Период решетки твердого раствора UPuN изменяется в зависимости от содержания урана и плутония [17]. При анализе влияния облучения на изменение параметра кристаллической решетки необходимо учитывать, что его значения до облучения имеют некоторый разброс в зависимости от ряда факторов. На величину параметра кристаллической решетки как чистых соединений UN, PuN, так и твердых растворов системы UN – PuN оказывают влияние содержание примесей (особенно кислорода и углерода) и стехиометрия (таблица 1.2) [3-5, 17-19]. Для наглядности зависимость параметра кристаллической решетки твердого раствора UPuN от соотношения урана и плутония показана на рисунке 1.3.

Таблица 1.2 – Параметр кристаллической решетки системы UN – PuN

Топливная композиция	Параметр кристаллической решетки, нм	Примечания	Литература
UN	0,4888		17
	0,4890		17
	0,4891	UN присутствовал в двухфазном сплаве со свободным углеродом	17
	0,48925	UN+3 мас.% O ₂ , спеченный при 1400 °С	5
	0,4889	Давление азота 2,5 атм.	3
	0,48898	Получен диссоциацией U ₂ N ₃ при 1200 °С	5
	0,48904	UN, спеченный при 1400 °С	5
	0,48915	UN+1 мас.% O ₂ , спеченный при 1400 °С	5
PuN	0,4905	Давление азота 1 атм.	3
	0,4910	PuN+1 мас.% O ₂	4
U _{0,5} Pu _{0,5} N	0,4896		19
U _{0,55} Pu _{0,45} N	0,48978		18
U _{0,4} Pu _{0,6} N	0,49001		18
U _{0,8} Pu _{0,2} N	0,4901		5
U _{0,81} Pu _{0,19} N	0,48906		18
U _{0,82} Pu _{0,18} N	0,4892		18
U _{0,8} Pu _{0,2} N	0,4891	(1 атм N ₂)	3
U _{0,74} Pu _{0,26} N	0,4895		19
U _{0,48} Pu _{0,52} N	0,4900		19
U _{0,22} Pu _{0,78} N	0,4904		19

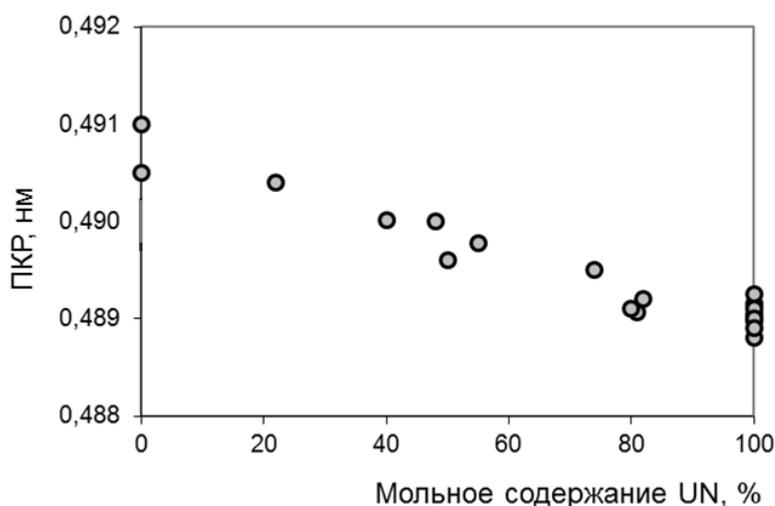


Рисунок 1.3 – Зависимость параметра кристаллической решетки твердого раствора UPuN от содержания UN по данным таблицы 1.2

Химическая связь в моонитридах урана и плутония имеет металло-ковалентный характер, но в большей степени является металлической, что приводит к появлению электронной проводимости, высокой теплопроводности и наличию металлического блеска [3].

Фаза UPuN может существовать в узком диапазоне по содержанию азота. Узкие области существования характерны и для составляющих твердый раствор фаз UN и PuN. На рисунке 1.4 представлена фазовая диаграмма состояния системы U-N в условиях, когда давление азота над системой составляет 1 атм. Моонитрид урана существует в виде стехиометрического соединения с содержанием азота 5,56 % масс. Теоретическая плотность UN составляет 14,32 г/см³. С увеличением содержания азота возникает фаза полупторного нитрида U₂N₃. Полупторный нитрид урана U₂N₃ существует в виде двух фаз – переменной по составу α-U₂N₃ с теоретической плотностью 11,24 г/см³, кристаллизующейся в ОЦК решетку типа Mn₂O₃ (период кристаллической решетки изменяется от 0,10706 нм до 0,10568 нм в зависимости от состава), и β-U₂N₃, кристаллизующаяся в ГПУ решетку типа La₂O₃ (периоды кристаллической решетки a=0,3696±0,0001 нм и c=0,5840±0,0001 нм) и рентгеновской плотностью 12,44 г/см³. Третий вид соединения азота с ураном – это динитрид урана UN₂, который кристаллизуется в ГЦК решетку типа CaF₂ с периодом 0,531±0,001 нм и рентгеновской плотностью 11,73 г/см³. Несмотря на то, что высшие нитриды урана не рассматриваются в качестве материала ядерного топлива, т.к. температура, при которой возможна их диссоциация, входит в диапазон рабочих температур топлива (выше 800 °С), они играют важную роль в поддержании баланса азота в процессе облучения [3-5].

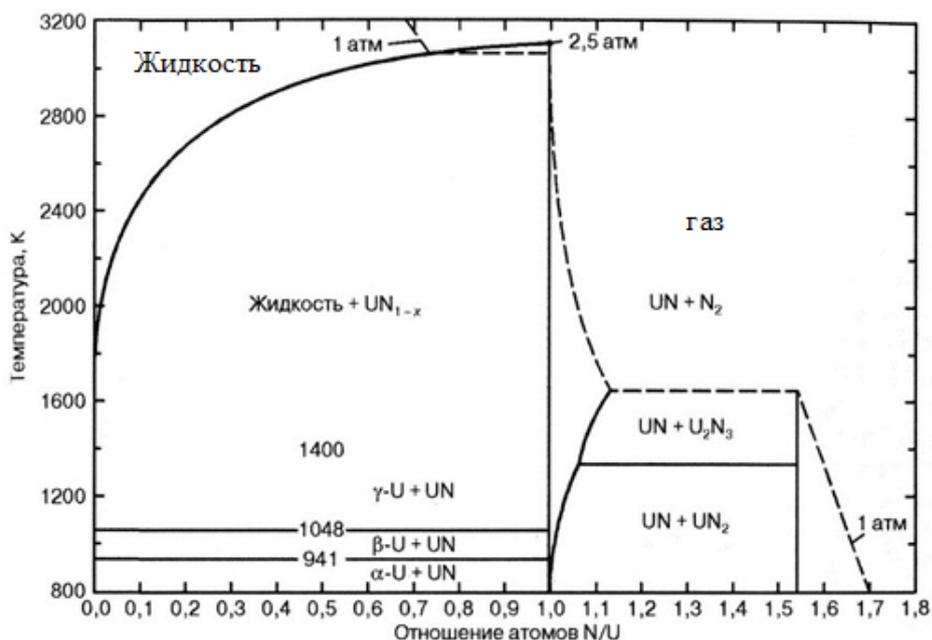


Рисунок 1.4 - Фазовая диаграмма состояния системы U-N [20]

Изменение давления азотной атмосферы дает возможность контролировать устойчивость фаз и границы их областей, и позволяет предотвращать диссоциацию нитридов при нагревании. Так заметная диссоциация UN в вакууме начинается при температуре около 1700 °С. В тех условиях, когда давление азота становится равно 10^{-4} атм., моонитрид урана плавится с разложением (инконгруэнтно) при температуре 2050 °С. При этом испаряется азот и выделяется жидкий уран. Температура плавления моонитрида урана повышается до 2800 °С с увеличением давления азота до 1 атм. А при давлении азота более 2,5 атм. моонитрид урана плавится без разложения (конгруэнтно) при 2830 ± 30 °С [3-5, 21].

Из химических соединений плутония с азотом известен только моонитрид плутония PuN [5], представляющий собой стехиометрическое соединение с содержанием азота 5,53 мас. % и теоретической плотностью $14,35 \text{ г/см}^3$.

1.2.2 Химический и фазовый состав облученного топлива

Облучение топливных композиций нейтронами приводит к образованию и накоплению новых элементов – атомов продуктов деления. Часть продуктов деления растворяется в кристаллической решётке облученного топлива, изменяя его химический состав и стехиометрию, другая часть - выделяется в виде отдельных конденсированных фаз, изменяя его фазовый состав. Содержание основных продуктов деления, накапливающихся в уран-плутониевом нитридном топливе при облучении в реакторе на быстрых нейтронах до выгорания 4 и 8 % т.а., представлено в таблице 1.3 [22]. В таблице 1.3 также представлены размеры атомных радиусов компонентов и основных продуктов деления уран-плутониевого нитридного топлива [3]. Легко увидеть, что размеры всех атомов продуктов деления существенно больше размеров атома азота, занимающего междуузельное положение в кристаллической решетке UPuN и имеющего атомный радиус 0,075 нм. Следовательно, у атомов продуктов деления при определенных условиях есть возможность занять узлы кристаллической решетки вместо разделившихся атомов урана или плутония, т.е. образовать твердые растворы замещения на металлической подрешетке UPuN.

Таблица 1.3 – Размеры атомных радиусов [3, 23] и концентрация основных продуктов деления нитридного топлива $U_{0,8}Pu_{0,2}N$, урана и плутония [22]

Элемент	Атомный радиус, нм	Концентрация элементов, % по массе	
		Выгорание 4 % т.а.	Выгорание 8 % т.а.
Xe	0,220	0,4992	1,0026
Zr	0,160	0,2831	0,5644
Cs	0,2658 0,2116 ^a 0,2051 ^b 0,167 ⁺	0,4383	0,8628
Ba	0,225	0,1458	0,3061
Sr	0,215	0,0512	0,0987
La	0,186	0,1262	0,2516
Ce	0,182	0,2643	0,4957
Nd	0,182	0,3487	0,7285
Y	0,118	0,0275	0,0536
Nb	0,140	0,0036	0,0072
Mo	0,140	0,3344	0,6765
Tc	0,136	0,0902	0,1748
Ru	0,132	0,3607	0,692
Rh	0,134	0,0996	0,1984
Pd	0,134	0,2276	0,4926
I	0,133	0,0388	0,0717
Te	0,137	0,0714	0,1441
Se	0,117	0,0054	0,0107
Pu	0,162	17,9795	17,1858
U	0,153	72,5609	69,4621

Примечание: атомный радиус Cs зависит от внешнего давления: ^a при $p = 4,1$ GPa; ^b при $p = 4,25$ GPa, ⁺ - в случае, когда атом Cs находится в ионизированном состоянии [3]

Для оценки равновесного состава топлива в зависимости от выгорания часто используют термодинамические расчеты. С использованием специализированных программ расчета химического равновесия в работах [24, 25] оценена возможность образования химических соединений продуктов деления между собой и с основными составляющими нитридного топлива при температуре от 630 до 1630 °C и выгорании от 4,5 до 18 % т.а. В таблице 1.4 приведены основные химические соединения, образующиеся в облученном уран-плутониевом нитридном топливе по данным термодинамических расчетов.

Таблица 1.4 – Основные продукты деления и их соединения в облученном уран-плутониевом нитридном топливе [25]

Элемент	Соединение	Элемент	Соединение
Xe	Xe	Nb	NbN
Zr	ZrN	Mo	Mo
Cs	Cs, CsI, CsTe	Tc	Tc
Ba	Ba ₃ N ₂	Ru	(U,Pu)(Ru,Rh,Pd) ₃
Sr	Sr ₃ N ₂	Rh	(U,Pu)(Ru,Rh,Pd) ₃
La	LaN	Pd	(U,Pu)(Ru,Rh,Pd) ₃
Ce	CeN	I	CsI
Nd	NdN	Te	CsTe
Y	YN	Se	SeN

Из таблицы видно, что часть продуктов деления образует нитриды. Степень растворимости нитрида продукта деления в матрице топлива зависит от типа кристаллической структуры и параметра кристаллической решетки растворенного нитрида $a(M_{n.d.}N_x)$ а также параметра решетки нитрида – растворителя $a((U,Pu)N_y)$ ($x=N/M_{n.d.}$; $y=N/(U+Pu)$). В работе [26] был определен следующий критерий растворимости для продуктов деления уран-плутониевого нитридного топлива:

$$C = \frac{a(M_{n.d.}N_x) - a((U,Pu)N_y)}{a((U,Pu)N_y)}, \quad (1.1)$$

Как установлено эмпирически, полная растворимость наблюдается, если значение C принадлежит интервалу от 7,5 до 8,5 % (например элементы Y, La, Zr, Nd), ограниченная растворимость, если значение C несколько выходит за указанные пределы. Ситуация, когда значение C превышает по абсолютной величине указанные значения примерно в два раза, соответствует практически отсутствию растворения в твердом состоянии (например Tc, Mo, Ru, Ba).

В качестве примера на рисунке 1.5 представлены карты распределения урана, плутония и продуктов деления, – молибдена, палладия, лантана полученные в работе [27] методом электронно-зондового микроанализа на модельном уран-плутониевом нитридном топливе, имитирующем выгорание 10 % т.а. Модельное топливо по составу имитаторов продуктов деления должно было соответствовать облученному в быстром реакторе. Для достижения химического равновесия осуществлялся его нагрев при 2023 К в течение 15 часов. Недостатком такой методики была неизбежная потеря летучих продуктов деления, но структурно-фазовый состав твердых продуктов деления мог быть изучен методами рентгенографии, металлографии,

сканирующей электронной микроскопии и электронно-зондового микроанализа. На изображении поверхности топливной таблетки во вторичных электронах можно видеть, что в матрице топлива присутствуют поры (черного цвета) и большие включения вторых фаз (темно-серый цвет), в состав которых входит молибден. Лантан распределен в топливе преимущественно равномерно, небольшие включения, в состав которых входит этот элемент, образованы, по предположению авторов, нитридами редкоземельных элементов или интерметаллидными соединениями редкоземельных элементов и элементов платиновой группы. Два вида включений обнаружены на карте распределения палладия: фазы, содержащие в своем составе Мо, и фазы, обедненные по урану.

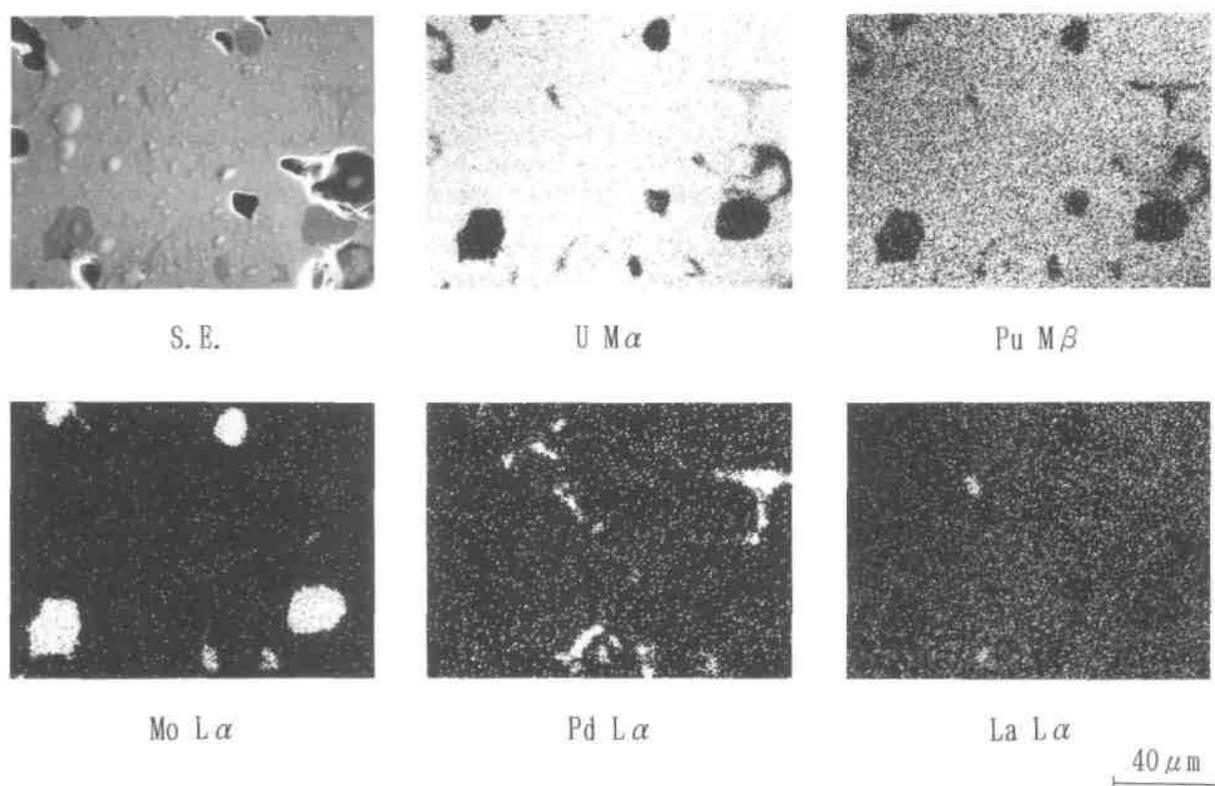


Рисунок 1.5 – Изображение модельного уран-плутониевого нитридного топлива во вторичных электронах (S.E.), а также карты распределения некоторых компонентов топливной композиции и продуктов деления (имитация выгорания 10 % т.а.) [27]

Газообразные и летучие продукты деления могут образовывать внутризеренную и межзеренную пористость в топливе и выходить в свободный объем твэла. Газообразные продукты деления (в основном ксенон и криптон) нерастворимы в топливе. Атомные радиусы этих элементов существенно превышают радиусы элементов, входящих в состав топливной композиции [3, 4, 27].

К летучим элементам относятся щелочные металлы: цезий и рубидий; галогены: йод и бром, а также теллур, кадмий, олово, селен и сурьма. Следует отметить, что почти все

металлические продукты деления образуют иодиды и бромиды. Большинство из них при температуре выше 530 °С легко возгоняются и находятся в газовой фазе. Группы галогенов и щелочных металлов не образуют нитридов, но, как правило, входят в соединения с другими летучими элементами. Только халькогены образуют нитриды (SeN_x и Te_3N_4), но они разлагаются даже при низких температурах [25, 26]. Отдельные фазы Cs, CsI, Cs_2Te могут находиться в топливе в жидком или газообразном виде [22]. При низком выгорании более 50 % цезия находится в газообразном состоянии, его давление растёт до 2 МПа при выгорании 10 % т.а. При этом выгорании давление цезия достигает равновесного давления конденсации, и начинается образование металлической фазы. Часть цезия вступает в реакцию с теллуром с формированием соединения Cs_2Te . Если кислород присутствует в топливе в качестве замещающей примеси на азотной подрешетке, цезий ионизируется, образуя комплекс с кислородом путем обмена его внешним электроном и, таким образом, идеально вписывается в решетку нитрида в качестве примеси замещения на металлической подрешетке. Комплекс Cs-O фиксирует Cs^+ своим атомом O и предотвращает его миграцию из решетки [29].

Таким образом, основные продукты деления уран-плутониевого нитридного топлива по их химическому состоянию и фазовому составу можно разделить на следующие группы: газообразные – Xe, Kr; летучие – I, Br, Cs, Rb, Se, Te; элементы, нитриды которых образуют твердые растворы с моонитридами урана и плутония – Zr, Y, Nb и лантаноиды; элементы, образующие металлические или интерметаллидные фазы, – Mo, Ru, Rh, Pd, Ag, UM_3 , PuM_2 (M = Ru, Rh, Pd); элементы, образующие отдельные нитридные фазы со структурой, отличающейся от ГЦК-структуры моонитрида урана и плутония, – Ba, Sr, In, Ge, Cs, Rb; элементы, образующие иодиды и бромиды – Cs, Rb, Ba, Sr, Zr, Y, Pd, Cd, лантаноиды, которые могут находиться в топливе как в газообразном, так и конденсированном состоянии [22].

Далее отдельно остановимся на изменении в результате облучения элементного состава и стехиометрии твердого раствора UPuN . В п. 1.2.1 было показано, что нитриды урана и плутония полностью взаимно растворимы, твердый раствор UPuN имеет гранецентрированную кубическую структуру. В области высоких рабочих температур зона гомогенности твердого раствора узкая: нижняя фазовая граница зоны гомогенности $\text{U}_{0,8}\text{Pu}_{0,2}\text{N}$ находится в интервале 0,992-0,995, верхняя фазовая граница близка к единице [22]. В процессе облучения часть продуктов деления – таких как Zr, Y, Nb и лантаноиды, образует с азотом соединения со структурой, изоморфной моонитриду урана с узкими областями гомогенности, исключая нитрид циркония. Другими словами, в процессе облучения основная фаза матрицы топлива представляет собой твердый раствор моонитридов циркония, иттрия, ниобия и лантаноидов в уран-плутониевом моонитриде. Нитриды лантаноидов, циркония и иттрия полностью растворимы в уран-плутониевом моонитриде при температуре выше 800 К и концентрации,

соответствующей выгоранию 8 % т.а. [22]. По отношению суммарного содержания металлоидов к суммарному содержанию металлов в твердом растворе ($Z = N/(U+Pu+Me)$, где $Me = Zr + Y +$ лантаноиды) определялось отклонение от стехиометрии твердого раствора $U_{0,8}Pu_{0,2}N_z$. Показано, что при увеличении выгорания происходит смещение нижней фазовой границы твердого раствора в сторону меньших значений коэффициента и расширение области его гомогенности. Это связано с растворением циркония, мононитрид которого имеет существенно более широкую область гомогенности по сравнению с мононитридами урана и плутония [22].

Следует отметить, что повышение содержания азота в твердом растворе вследствие распада атомов U и Pu приводит к смещению состава уран-плутониевого мононитрида к верхней фазовой границе области гомогенности и выпадению фазы полуторного нитрида U_2N_3 (рисунок 1.4) [4]. Согласно расчетным моделям с увеличением выгорания топлива повышается концентрация U_2N_3 – чем ниже температура топлива, тем больше доля U_2N_3 [30].

1.2.3 Влияние примесей на фазовый состав нитридного топлива

На этапе изготовления уран-плутониевого нитридного топлива происходит загрязнение примесями углерода и кислорода, наличие которых может существенно влиять на физико-химические свойства топлива, фазовый состав и характеристики под облучением [31,32]. В зависимости от температуры и массовой доли примесей кислорода и углерода они могут быть растворены в матрице топлива, а также образовывать самостоятельные фазы – оксидные и карбидные, соответственно.

Смешанное нитридное топливо производится по традиционной таблеточной технологии из исходных нитридных порошков. Существуют два наиболее распространенных способа изготовления нитридных порошков [33]:

- карботермический синтез оксидов урана и плутония при температуре 1500-1700 °С в условиях их взаимодействия с углеродом в потоке азота (содержание примесей углерода и кислорода зависит от температуры синтеза, парциального давления азота и оксида углерода, образующегося в ходе реакции, и принимают значение на уровне 0,1 – 0,2 % масс. [4]);

- синтез из исходных металлов и сплавов U, Pu с применением процессов гидрирования их водородом и нитрирования, которые проводятся последовательно в одном аппарате без перегрузки промежуточных продуктов (полученный нитрид содержит примеси кислорода и углерода на уровне 0,05-0,1% масс.) [4].

Первые твэлы с нитридным топливом, испытываемые в исследовательских реакторах России, изготовлены в АО «ВНИИНМ» с применением технологии гидрирования-нитрирования исходных металлов. В 2008-2011 гг. разработана технология карботермического синтеза смешанного уран-плутониевого топлива из исходных оксидов, которая считается наиболее проработанной для промышленного освоения. Главное его преимущество заключается в использовании в качестве исходных материалов оксидов металлов, представляющих собой продукты действующих предприятий радиохимической переработки облученного топлива, главная проблема – получение топлива с заданным содержанием примесей [33].

Допустимый предел загрязнения уран-плутониевого нитридного топлива примесями кислорода и углерода – 0,15 % по массе для каждого элемента [4, 34]. Содержание примесей выше этого значения приводит к увеличению распухания. На рисунке 1.6 показано как меняется величина распухания нитридного топлива с ростом выгорания при разном содержании кислорода. Примеси кислорода и углерода в облученном топливе ведут себя подобно атомам внедрения в твердом растворе, представляя собой своеобразные ловушки для атомов продуктов деления, способствуя снижению газовыделения в свободный объем твэла и увеличению скорости распухания, если массовая доля каждого превышает 0,15 % [4].

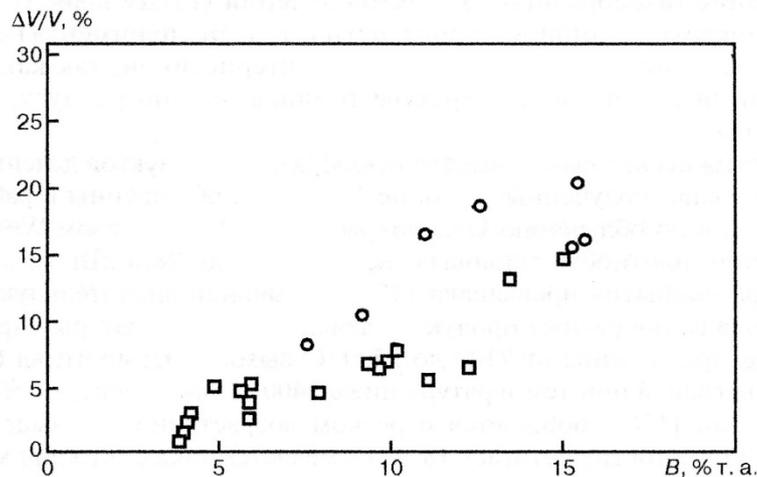


Рисунок 1.6 – Изменение распухания нитридного топлива с увеличением выгорания в зависимости от содержания кислорода: < 0,05 % (\square) и > 0,3 % (\circ) по массе (температура топлива не превышает 1260 °С) [34]

В работе [32] расчетными методами проведено исследование изменения химического и фазового состава уран-плутониевого нитридного топлива $U_{0,8}Pu_{0,2}(N_{0,98}O_{0,02})_{0,995}$ с содержанием кислорода в исходном топливе 0,13 масс. %. Было показано, что при температуре 630 - 1130 °С и значениях выгорания от 4,5 до 13,6 % т.а. топливо представляет собой твердый раствор $UPuMe(N_yO_{1-y})_z$ и выделившиеся фазы полуторного нитрида U_2N_3 , металлических и

интерметаллических включений, а также оксидных фаз (BaUO_3 , SrUO_3 , SrPuO_3 , UO_2 , Y_2O_3 , BaO , SrO , Nd_2O_3) и других отдельных фаз, содержащих продукты деления. Некоторые оксидные фазы образуются в нитридном топливе лишь в определенном интервале выгорания и температуры. Например, в указанном интервале температуры не образуется UO_2 при выгорании выше 6 % т.а. Оксид неодима Nd_2O_3 не формируется при температурах 930 °С и 1130 °С. Наиболее стабильными оксидами являются оксиды бария и стронция BaO и SrO . С ростом выгорания их массовая доля растет, тогда как массовая доля полуторных оксидов Y_2O_3 и Nd_2O_3 снижается [32].

Карбиды урана и плутония образуются в незначительных количествах. Известно, что углерод может находиться в матрице нитридного топлива без образования вторичных карбидных фаз до 0,2 масс. % [5]. Анализ влияния содержания примеси углерода в количестве 0,1 мас. %, на фазовый и химический состав смешанного уран-плутониевого нитридного топлива на примере исходного топлива и топливной композиции после облучения до выгорания 9,3 % т.а. проведен в работе [35]. Показано, что уран в данной системе образует следующие конденсированные соединения с углеродом и азотом: U , UC , UC_2 , U_2C_3 , UN , U_2N_3 . Большая часть атомов урана при различных температурах остаётся в соединении с азотом, но количество молей UN уменьшается, а U_2N_3 возрастает с увеличением выгорания. Присутствие примесей увеличивает содержание U_2N_3 фазы в исходном топливе, особенно в области сравнительно низких температур. Но в исходном топливе количество U_2N_3 не превышает 8 % и по отношению к UN оно невелико [35].

1.3 Влияние условий облучения на поведение продуктов деления и распухание топлива

Увеличение объема топлива в процессе облучения обусловлено изменением его элементного состава и структурно-фазового состояния в результате деления тяжелых атомов и образования новых атомов продуктов деления. В зависимости от температурных условий облучения поведение продуктов деления, их распределение, химическое состояние и фазовый состав может быть разным. Уровень рабочих температур и температурный градиент, возникающий вдоль радиуса топливного сердечника в процессе облучения, зависит главным образом от теплопроводности ядерного топлива и материала, заполняющего зазор между топливом и оболочкой ТВЭЛ.

Уран-плутониевое нитридное топливо обладает высокой теплопроводностью, увеличивающейся с ростом температуры [5, 36]. Для сравнения на рисунке 1.7 представлена зависимость теплопроводности от температуры для UN , UPuN и UO_2 [37].

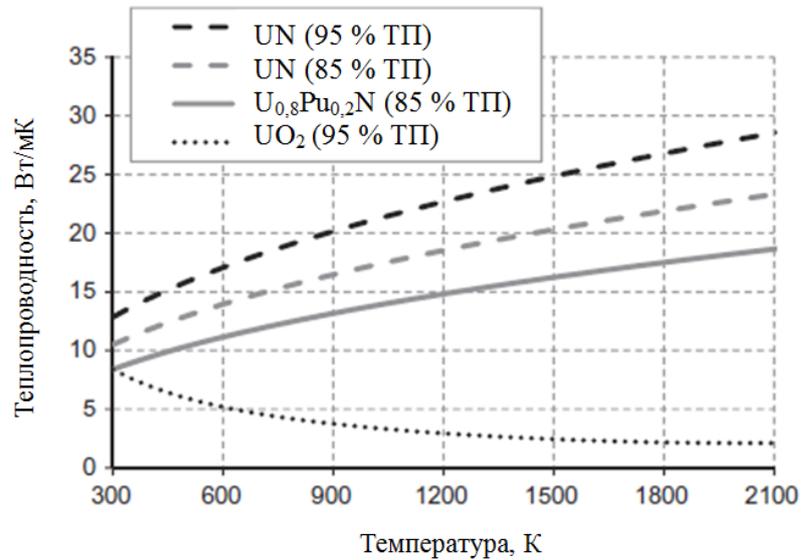


Рисунок 1.7 - Изменение теплопроводности топливных композиций в зависимости от температуры (ТП – теоретическая плотность топлива) [37]

Изменение температуры топлива вдоль радиуса топливного сердечника твэла можно оценить по формуле [38]:

$$T(r) = T_s + \frac{hR^2}{4k} \left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right), \quad (1.2)$$

где $T(r)$ – температура на участке вдоль радиуса топливной таблетки, К;

T_s – температура на поверхности топливной таблетки, К;

R – радиус топливной таблетки, м;

h – объемная мощность твэла, Вт/м³;

k – теплопроводность, Вт/м·К;

r – текущий радиус, м.

С увеличением температуры возрастает также коэффициент линейного термического расширения (ТКЛР) нитридного топлива. Информация о величине коэффициента линейного термического расширения необходима для определения изменения линейных размеров $\left(\frac{\Delta L}{L}\right)$ материала в результате изменения температуры $(T - T_0)$ [37]:

$$\frac{\Delta L}{L} = \alpha(T) \cdot (T - T_0), \quad (1.3)$$

где $T_0 = 20$ °С;

α - коэффициент линейного расширения, °С.

В таблице 1.5 показано изменение ТКЛР с увеличением температуры для U_{0,8}Pu_{0,2}N [39].

Таблица 1.5 – Значения коэффициента линейного расширения $(U_{0,8}Pu_{0,2})N$ в разном диапазоне температур [39]

Интервал температур, °C	20-100	20-300	20-500	20-700	20-900	20-1000	20-1300	20-1500
$\alpha, 10^{-6}/^{\circ}C$	7,9	8,2	8,6	9,0	9,4	9,7	10,1	10,3

В зависимости от условий облучения и материала, заполняющего пространство между топливным сердечником и оболочкой твэла, нитридное топливо может эксплуатироваться в разных диапазонах температур – в «высокотемпературной» и «низкотемпературной» области, при описании которых часто используют соотношение между рабочей температурой (T) с температурой плавления топлива ($T_{пл}$). Температура плавления топливных композиций на основе моонитридов урана и плутония зависит от состава и давления азота над системой (таблица 1.6).

Таблица 1.6 – Температура плавления моонитридов урана и плутония [17]

Фаза	Температура плавления (разложения)
UN	$T_{пл} \sim 3053$ К, $P(N_2) \sim 0,1$ МПа $T_{пл} \sim 3120$ К, $P(N_2) \sim 0,2-0,3$ МПа
PuN	$T_{разл} \sim 2840$ К, $P(N_2) \sim 0,1$ МПа $T_{разл} \sim 3040$ К, $P(N_2) \sim 1$ МПа
$U_{0,8}Pu_{0,2}N$	$T_{разл} \sim 3053$ К, $P(N_2) \sim 0,1$ МПа

В твэлах с газовым подслоем в начале эксплуатации, когда зазор максимален, типичная температура топлива находится в интервале $0,45 < T/T_{пл} < 0,6$, где T – рабочая температура топлива, $T_{пл}$ – температура плавления. В этот период реализуется состояние «горячего» топлива, при котором происходит быстрый выход нерастворившихся продуктов деления из пересыщенного твёрдого раствора, формирование вторых фаз из твёрдых продуктов деления, формирование и рост газовой пористости, высокая скорость распухания. После установления плотного контакта топлива с оболочкой вследствие свободного распухания топливной композиции температура топлива снижается и соответствует интервалу $0,35 < T/T_{пл} < 0,5$ [3]. При такой температуре диффузия атомов продуктов деления мала, так же, как и рост газовых пузырей, но и скорость выхода газообразных продуктов деления низкая. Для того чтобы снизить нагрузку на оболочку с ростом выгорания, в твэлах с газовым подслоем рассматривается вариант применения топлива с плотностью 75-85% от теоретической плотности [24].

Твэлы с жидкометаллическим подслоем характеризуются большой величиной зазора между топливным сердечником и оболочкой твэла (до 0,5 мм) и высокой плотностью топлива (выше 85 % от теоретической плотности). Благодаря хорошей теплопроводности жидкого металла в подслое температура топлива поддерживается на относительно низком уровне. В случае натриевого подслоя температура вдоль радиуса нитридной топливной таблетки находится в интервале $0,3 < T/T_{пл} < 0,4$ [3]. При такой температуре практически не обнаружена термически активируемая диффузия продуктов деления, матрица топлива представляет собой пересыщенный твердый раствор, содержащий кластеры из продуктов деления, ассоциированные с дефектами кристаллической структуры.

Поскольку температура топлива меняется по радиусу сердечника, в качестве параметра, характеризующего температурные условия облучения, принимают расчётное значение температуры в центре таблетки. Влияние температуры в центре топливного сердечника на скорость распухания показано на рисунке 1.8 [37]. Как показано на рисунке, скорость распухания нитридного топлива принимает более высокие значения при температуре топлива выше $1350\text{ }^{\circ}\text{C}$ ($T/T_{пл} \geq 0,5$) и плотности более 94 % от ТП. При температуре ниже $1350\text{ }^{\circ}\text{C}$ ($T/T_{пл} < 0,5$) процесс диффузии атомов продуктов деления происходит медленно, поэтому распухание нитридного топлива обусловлено в основном внедрением атомов продуктов деления в кристаллическую решетку топлива («твердое» распухание). При температуре выше $1350\text{ }^{\circ}\text{C}$, происходит увеличение скорости распухания, обусловленное образованием и ростом объема газовых пор («газовое распухание») [4]. По прогнозам специалистов [34] при температуре в центре топливного сердечника до $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ средняя скорость распухания уран-плутониевого нитридного топлива не превысит 1,5 %/% выгорания.



Рисунок 1.8 – Скорость распухания нитридного топлива [37]

Существенное влияние на величину распухания оказывает ширина зазора между топливом и оболочкой твэла. Скорость распухания уран-плутониевого нитридного топлива при облучении до выгорания 9,3 % т.а. составляла 1,83 % /% выгорания в свободном состоянии и 1,4 %/% выгорания в условиях ограничения со стороны оболочки [40]. В другой работе при ширине зазора между топливом и оболочкой 0,32 мм скорость распухания нитридного топлива составляла 1,8%/% выгорания, и она снизилась до 1,6 %/ % выгорания при сокращении зазора до 0,17 мм [41].

1.4 Изменение микроструктуры топлива в результате облучения

Изменение структуры топлива в результате облучения оказывает большое влияние на теплопроводность, распределение и выход газообразных и летучих продуктов деления, механические и другие свойства топлива, а также на изменение объема топливного сердечника. Благодаря низкому температурному градиенту, обусловленному высокой теплопроводностью, изменение микроструктуры нитридного топлива по радиусу топливной таблетки не такие значительные, как в твэлах с оксидным топливом. На основании результатов исследований, представленных в работах [4, 24, 34, 41-44], можно выделить следующие особенности, характеризующие состояние структуры облученного нитридного топлива:

- образование трещин в топливном сердечнике твэла, происходящее преимущественно в радиальном направлении – явление, свойственное керамическому топливу, не склонному к пластической деформации при термомеханических напряжениях (рисунок 1.9);
- формирование пористости, связанное с накоплением и перераспределением газообразных продуктов деления, их выходом из матрицы топлива и образованием газовых пор; поры могут быть одиночными (рисунок 1.10) или образовывать цепочки вдоль границ зерен (за счет объединения отдельных газовых и технологических пор) (рисунок 1.11);
- выделение вторых фаз, состоящих из твердых продуктов деления с низкой растворимостью в топливной матрице $UPuN$ при достижении высоких значений температуры и выгорания.

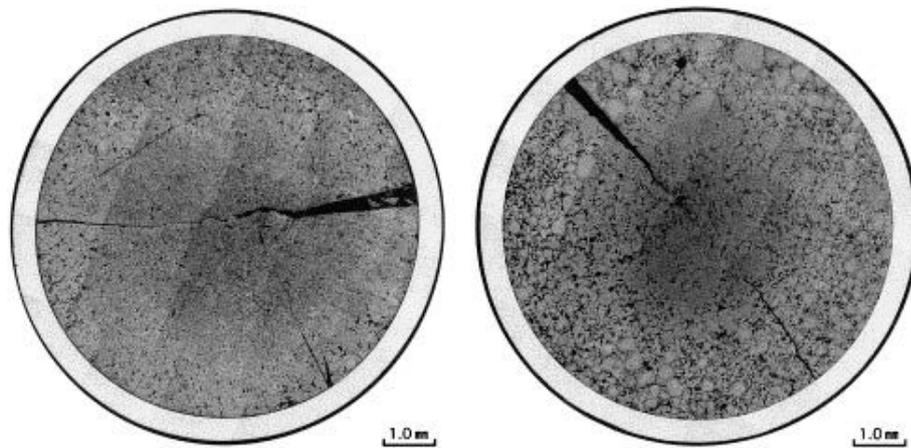


Рисунок 1.9 – Структура поперечных сечений экспериментальных твэлов с UPuN топливом после облучения до выгорания 4,3 % т.а. [41]

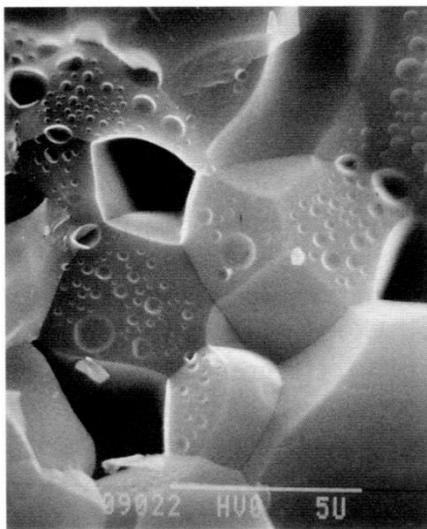


Рисунок 1.10 – Электронно-микроскопическое изображение поверхности излома уран-плутониевого нитридного топлива, облученного до выгорания 0,5 % т.а. (все межзеренные поры - единичные) [3]

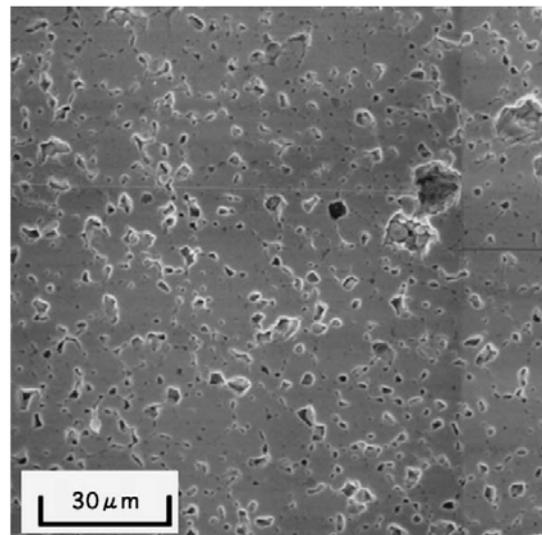


Рисунок 1.11 – Электронно-микроскопическое изображение микроструктуры нитридного топлива, облученного до выгорания 4,3 % т.а. (происходит объединение отдельных пор в цепочки вдоль границ зерен) [41]

Изменение структуры нитридного топлива в процессе эксплуатации определяется главным образом градиентом и уровнем температур.

Для твэлов, работающих в высокотемпературной области (твэлы с гелиевым подслоем), все время облучения можно условно разделить на три периода: А, В и С [3]. Сразу после выхода на полную мощность и достижения максимальных рабочих температур в топливе (период А), начинает происходить растрескивание топливных таблеток и смещение фрагментов в сторону оболочки, которое приводит к уменьшению зазора между топливной таблеткой и оболочкой (δ_0). В течение следующего периода облучения (период Б), происходит преобразование трещин в центральной зоне в крупную пористость. В конце периода Б происходит контакт внешней

поверхности топливной таблетки с внутренней поверхностью оболочки, радиус топливных таблеток увеличивается от исходного значения a_0 до величины $a=a_0+\delta_0$ (рисунок 1.12). В последний период облучения (период С) топливо продолжает работать в плотном контакте с оболочкой. В этот период происходит снижение температуры топлива [3].

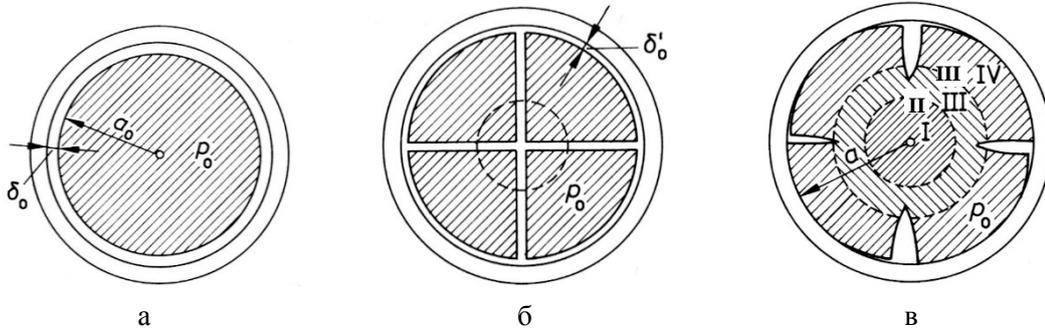


Рисунок 1.12 – Схематическое изображение состояния поперечного сечения ТВЭЛ:

а - до облучения, б - в период облучения А, в - в период облучения Б

(a_0, P_0, δ_0 - радиус топливной таблетки, пористость топлива, ширина зазора между топливом и оболочкой в исходном состоянии, соответственно; δ'_0 - ширина зазора между топливом и оболочкой в период облучения А; a - радиус топливной таблетки в период облучения Б; I, II, III - структурные зоны вдоль радиуса топливной таблетки) [3]

Если рабочая температура топлива более $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$, к концу второго периода в результате перестройки структуры согласно литературным данным будет сформировано три кольцевые зоны вдоль радиуса топливной таблетки (рисунки 1.12 в, 1.13) [39]. В центральной области топливной таблетки (зона I), где температура и выход газообразных продуктов деления достигают максимальных значений, наблюдается формирование крупных газовых пор, размер которых может быть равен размеру зерен. Зерна в этой области имеют вытянутую форму и располагаются вдоль радиуса таблетки в соответствии с градиентом температуры. В этой зоне наблюдается высокий выход газообразных продуктов деления из топливной матрицы (рисунок 1.13). Для второй зоны характерны крупные равноосные зерна и равномерная газовая пористость. Микроструктура в краевой области (зона III), где выход газообразных продуктов деления и набухание минимальны, подобна микроструктуре топлива до облучения, но в данной области можно наблюдать большое число трещин.

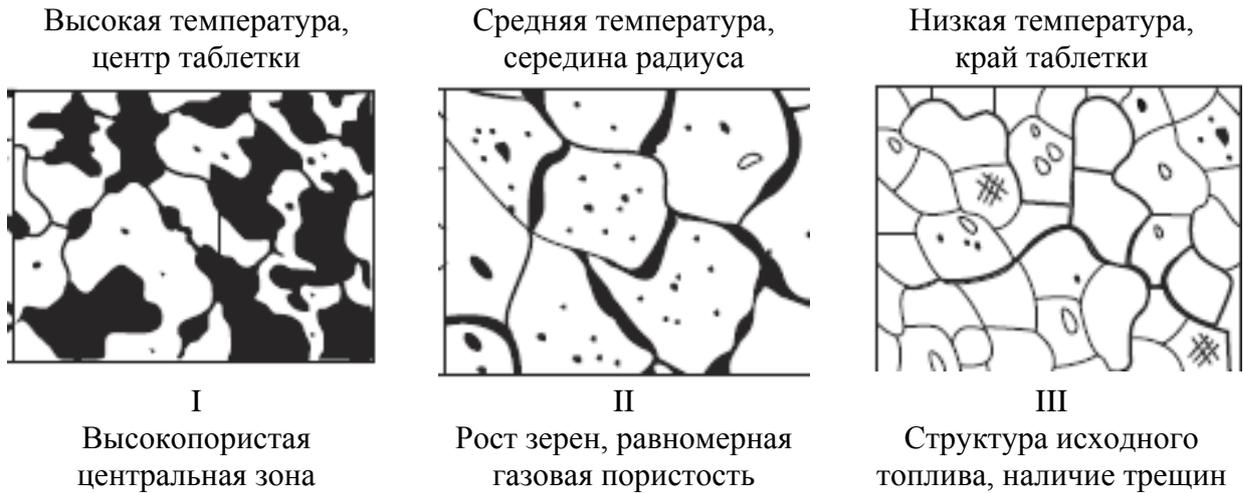


Рисунок 1.13 - Схематическое изображение структурных зон уран-плутониевого нитридного топлива после облучения вдоль радиуса топливной таблетки [39]

В работе [21] была проведена оценка температурного диапазона формирования структурных зон на примере UPuN топлива, облученного до максимального выгорания 4 % т.а. По мнению автора, I зона сформировалась при температуре выше 1400 °С, для III зоны преобладали температуры ниже 1150 °С, промежуточная температура в диапазоне от 1130 до 1230 °С соответствовала II зоне.

Нитридное топливо при рабочих температурах совместимо с жидкими металлами, которые могут использоваться в качестве контактного слоя между топливными таблетками и оболочкой твэла. Применение жидкометаллического контактного слоя позволяет существенно снизить температуру топлива и градиент температуры вдоль радиуса топливного сердечника. При использовании натриевого подслоя в течение всего периода облучения температура топлива не превышает 1100 °С (при линейной мощности до 1100 Вт/см и диаметре топливного сердечника 8,1 мм). Существенных изменений микроструктуры вдоль радиуса топливного сердечника UPuN, облученного в составе твэлов с натриевым подслоем, не наблюдалось, поэтому при описании микроструктурных изменений топлива не было необходимости делить историю облучения на периоды, а объем топливной таблетки на зоны [3]. Особенности изменения микроструктуры уран-плутониевого нитридного топлива в составе твэлов со свинцовым заполнением зазора в литературе не представлены.

1.5 Распухание за счет твердых продуктов деления

Концепция «твердого» распухания основывается на том факте, что вместо одного разделившегося атома образуется в среднем два новых, и доля твердых продуктов деления в общем спектре продуктов деления составляет около 75 %. Вопросы о происходящих при этом физических процессах и количественной оценке объемных изменений связаны с объяснением того, каким образом располагаются продукты деления в облученном топливе. В зависимости от размеров атомов и химических свойств элементов продукты деления могут находиться в состоянии твёрдого раствора в кристаллической решетке $UPuN$ (растворенные), изменяя объем элементарной ячейки $UPuN$ и увеличивая число элементарных ячеек, или образовывать самостоятельные фазы в топливе (нерастворенные) [3, 5, 45-47].

На изменение объема элементарной ячейки кристаллической решетки топлива в процессе облучения в общем случае оказывают воздействие радиационные дефекты (атомы внедрения, вакансии, их скопления), изменение стехиометрии топлива, растворение продуктов деления. При «высокотемпературном» облучении нитридного топлива (выше 1200 °С) происходит отжиг радиационных дефектов, и изменение объема элементарной ячейки в этом случае определяется только изменением стехиометрии и растворением продуктов деления.

Объем элементарной ячейки можно вычислить, зная ее параметр. Влияние различных факторов на изменение параметра кристаллической решетки оксидного топлива освещено в литературе достаточно широко. Так, например, известно, что смещение коэффициента стехиометрии в сторону больших значений, а также накопление растворенных продуктов деления в процессе облучения оксидного топлива приводит к уменьшению параметра кристаллической решетки. Образование же радиационных дефектов, напротив, приводит к увеличению параметра кристаллической решетки с ростом выгорания [48]. Информация об изменении параметра кристаллической решетки в ходе облучения уран-плутониевого нитридного топлива обрывочна, отсутствуют как теоретические, так и экспериментальные данные, описывающие механизм изменения параметра кристаллической решетки нитридного топлива в зависимости от температурных условий облучения, достигнутого выгорания, накопления радиационных дефектов.

В работах [27, 48] было показано, что параметр кристаллической решетки (ПКР) UN и $UPuN$ с ростом выгорания существенно не изменяется. Например, в работе [27] значение ПКР находилось в диапазоне от 0,4892 до 0,4896 нм при выгорании от 1,9 до 15,7 % т.а. Несущественное изменение ПКР в работах объяснялось тем, что увеличение параметра за счет растворения атомов редкоземельных элементов и иттрия в кристаллической решетке моонитрида компенсируется его уменьшением за счет растворения атомов циркония (атомные

радиусы продуктов деления представлены в таблице 1.3). Как было показано в таблице 1.2 на величину параметра КР нитридного топлива в исходном состоянии оказывают влияние содержание примесей кислорода и углерода. В облученном топливе возможно формирование дополнительных фаз с участием кислорода, углерода и продуктов деления (п. 1.2.3), которые при растворении в твердом растворе матрицы будут оказывать дополнительное влияние на изменение ПКР [32].

Твердотельное распухание топлива можно определить по следующей формуле:

$$\Delta V = \sum_{i \in p} x_i v_i + (\sum_{i \in p} x_i v_{UN} - V), \quad v_i = M_i \rho_i^{-1}, \quad (1.4)$$

где V – исходный молярный объем топлива;

v_{UN} – молярный объем UN ;

x_i, v_i – мольная доля и молярный объем компонента i ;

M_i, ρ_i – молярная масса и плотность компонента i [50].

Параметр решетки в работе [50] принят неизменяющимся с ростом выгорания, поэтому компонентам твердого раствора приписывался тот же молярный объем, что и для UN , при этом полагалось, что $v_{UN} = v_{PuN}$. Первое слагаемое в формуле 1.4 обусловлено изменением объема твердой фазы топлива вследствие образования вторичных конденсированных фаз из нерастворившихся продуктов деления, а второе слагаемое связано с изменением объема твердого раствора $UPuN$ за счет растворения твердых продуктов деления в матрице топлива.

На рисунке 1.14 представлено относительное увеличение объема топлива при различных температурах в случае равновесных расчетов при постоянном давлении равном $p = 1$ атм. При увеличении температуры твердотельное распухание топлива уменьшается вследствие того, что часть продуктов деления выходит из твердого раствора. При низкой температуре ($T = 1000$ К), удельное распухание составляло порядка 0,4 %/% выгорания [50]. При температуре 1400 К удельное распухание за счет изменения объема твердой фазы по результатам расчетов составляло около 0,1 %/% выгорания. По оценкам других исследователей [6, 24, 26, 37] это значение составляло от 0,5 до 0,7 %/% выгорания в зависимости от условий облучения.

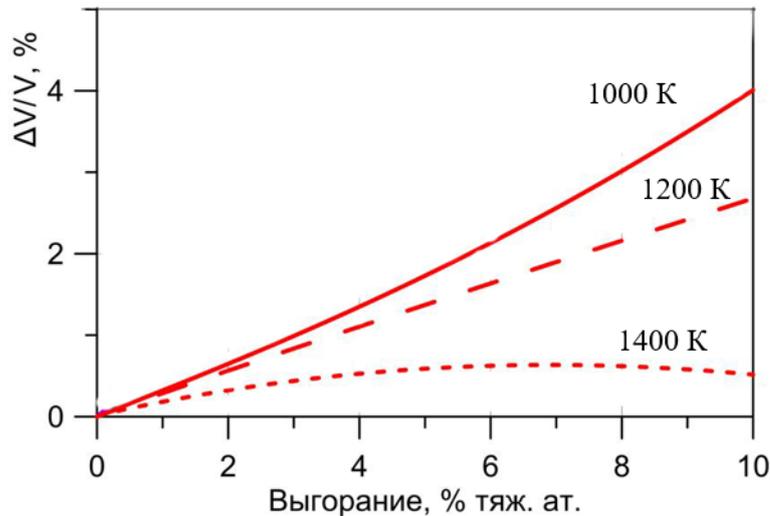


Рисунок 1.14 – Относительное изменение объема топлива за счет твердых продуктов деления при разных температурах [50]

1.6 Распухание за счет газообразных продуктов деления. Газовыделение

Основной причиной «газового» распухания является образование газонаполненных пор или пузырей и связанное с этим увеличение объема топлива, т.к. плотность газа в пузырьках меньше плотности топливного материала. В оксидном топливе реакторов на быстрых нейтронах вследствие высокой температуры выход газообразных продуктов деления из топлива в свободный объем твэла составляет 80-90 % от образовавшегося количества. Нитридное топливо характеризует более высокая степень удержания ГПД и химически активных продуктов деления (I, Cs, Te и Se) по сравнению с оксидным топливом, что в основном связано с меньшей рабочей температурой нитридного топлива.

Атомы нейтральных газов (Xe, Kr, He), образующиеся в топливе в результате ядерных реакций, имеют ничтожно малую растворимость, поэтому им энергетически выгодно образовывать с вакансиями устойчивые комплексы, что приводит к стабилизации вакансий и процессу их конденсации. Вакансии в материале возникают термическим путем или под воздействием потоков быстрых частиц. Число вакансий, рождаемых в процессе облучения, зависит от типа и энергии быстрых частиц и свойств облучаемого материала. По мере накопления газа в закрытых порах развивается давление, которое сдерживается материалом топливного сердечника, деформируя его [45].

Мелкие газонаполненные поры размером от 0,1 до 0,3 нм могут находиться внутри зерен, их вклад в распухание невелик из-за их малого объема. Основной вклад в распухание топлива вносят крупные располагающиеся на границах зерен пузыри, размеры которых увеличиваются с выгоранием и могут достигать размеров зерен (несколько микрометров).

Увеличение числа межзеренных пузырей на границах зерен приводит к их слиянию и образованию системы взаимосвязанных каналов. Наиболее устойчивыми являются каналы, образующиеся на ребрах зерен, соединяясь, они создают пространственную сеть, выходящую на наружную поверхность, через которую газообразные и летучие продукты деления выходят в свободный объем твэла, что приводит к снижению скорости «газового» распухания [45].

Если сравнивать распределение пористости (рисунок 1.15 *a*) и содержание ксенона (рисунок 1.15 *б*) вдоль радиуса топливной таблетки можно увидеть, что концентрация ксенона уменьшается, а пористость возрастает в центральной области. Указанное явление связано с тем, что в направлении центра топливных таблеток с ростом температуры подвижность атомов ГПД увеличилась, быстрее происходит объединение пор и выход ГПД через открытые каналы.

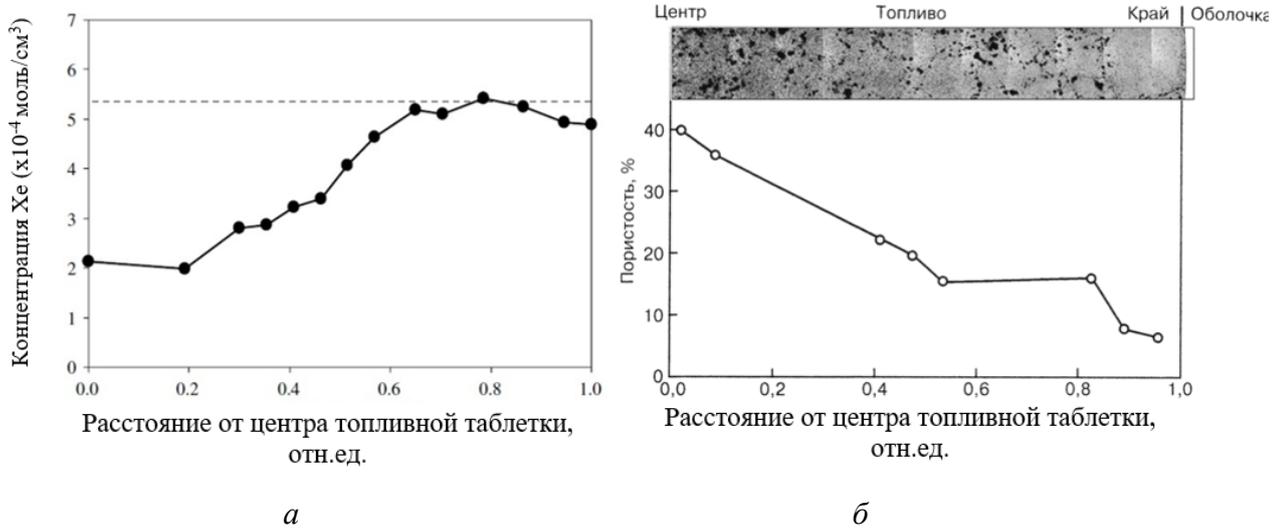


Рисунок 1.15 – Распределение пористости (*a*) и содержание ксенона (*б*) вдоль радиуса топливной таблетки ($U_{0,8}Pu_{0,2}N$) после облучения до максимального выгорания 4,3 % т.а. (----- – концентрация ксенона, соответствующая накопленному количеству) [41]

Как правило, доля вышедшего ксенона из центральной области (I) топливной таблетки составляет более 50% , а из краевой (III) – менее 15 %. Пунктирная линия на рисунке 1.15 показывает количество ксенона, накопленное за время облучения [41].

Существенное влияние на выход газообразных продуктов деления из топливного сердечника в свободный объем твэла оказывает величина исходной (технологической) пористости. В том случае, когда значение пористости превышает 15 %, газовыделение начинает увеличиваться. Это связано с тем, что при пористости более 15 % в топливе имеется достаточное количество сообщающихся пор, образующих каналы, через которые газ уходит из топлива, тогда как при пористости менее 15 % образующиеся ГПД скапливаются в закрытых порах и удерживаются в них [5, 41].

1.7 Основные выводы главы 1 и выбор направлений исследования

1. Поведение уран-плутониевого нитридного топлива в процессе облучения в реакторе на быстрых нейтронах имеет ряд особенностей по сравнению с более изученным оксидным топливом: при одинаковых геометрических параметрах и линейной мощности твэлов благодаря высокой теплопроводности, увеличивающейся с ростом температуры, нитридное топливо характеризуется менее высокой температурой эксплуатации, меньшими изменениями микроструктуры и меньшей диффузионной подвижностью продуктов деления.

2. Состояние продуктов деления и структурно-фазовые превращения определяют свойства уран-плутониевого нитридного топлива в процессе облучения, важнейшее из которых – радиационное распухание. Информация об элементном и фазовом составе облученного нитридного топлива получена преимущественно с помощью термодимических расчетов. Результаты послереакторных исследований структурно-фазового состояния и элементного состава уран-плутониевого нитридного топлива, необходимые для подтверждения модельных расчетов и обоснования работоспособности топлива до проектных значений выгорания, ограничены в связи со сложностью проведения реакторных испытаний и противоречивы, что связано с многочисленностью комбинаций веществ с участием продуктов деления, а также влиянием на поведение продуктов деления множества факторов, основные из которых температура, структура и состав топлива, уровень выгорания.

3. Представленные в литературе экспериментальные данные о скорости радиационного распухания нитридного топлива имеют существенный разброс, поскольку под влиянием различных факторов возможно изменение как величины, так и механизма распухания топлива.

4. Информация об изменении параметра кристаллической решетки в ходе облучения уран-плутониевого нитридного топлива обрывочна, отсутствуют как теоретические, так и экспериментальные данные, описывающие закономерности изменения параметра кристаллической решетки нитридного топлива в зависимости от температурных условий облучения, достигнутого выгорания, содержания примесей, стехиометрии.

Анализ проблемы изменения структурно-фазового состояния и распухания уран-плутониевого нитридного топлива в зависимости от температурных условий облучения и достигнутого выгорания позволяет выделить основные задачи исследования.

1. Получить экспериментальные данные о распределении продуктов деления, микроструктуре, фазовом составе и изменении объема уран-плутониевого нитридного топлива для выявления физической природы, величины и скорости распухания в результате низкотемпературного облучения в твэлах со свинцовым заполнением.

2. Исследовать влияние уровня выгорания при низкотемпературном облучении на особенности состояния топлива – перераспределение продуктов деления, изменение микроструктуры и скорости распухания.

3. Получить экспериментальные данные о влиянии температуры на перераспределение продуктов деления, изменения микроструктуры и фазового состава топлива для анализа особенностей его распухания в условиях повышенных температур в составе твэлов с гелиевым заполнением.

4. Определить скорость свободного и сдерживаемого оболочкой распухания уран-плутониевого нитридного топлива на разных этапах облучения в составе твэлов с гелиевым заполнением, определить изменения объёма твёрдой фазы и пористости.

Глава 2. Характеристика материалов, условий облучения и методов послереакторных исследований

Для выявления механизмов и закономерностей распухания уран-плутониевого нитридного топлива под действием облучения в реакторе на быстрых нейтронах были исследованы два типа экспериментальных твэлов, различающиеся составом вещества в зазоре между топливом и оболочкой (гелий и свинец) и исходными характеристиками топливных композиций. Вследствие разной теплопроводности заполняющего твэл материала температурные условия облучения уран-плутониевых нитридных топливных композиций имели существенные различия, что дало возможность облучения топлива в широком температурном интервале и позволило выявить зависящие от температуры эффекты.

2.1 Характеристика топлива, твэлов и условий облучения

Экспериментальные данные получены при исследовании твэлов с уран-плутониевым нитридным топливом, изготовленным методом прямого синтеза из металлов. Комплексное исследование структуры, фазового и элементного состава необлученного нитридного топлива, проведенное на этапе его изготовления в АО «ВНИИНМ», показало следующее:

- топливные композиции представляли собой гомогенный твердый раствор (рисунок 2.1) нитридов урана и плутония с равномерно распределенными порами размером от 3 до 30 мкм;
- средний размер зерна составлял 20-30 мкм;
- в топливных таблетках не обнаружено трещин, являющихся следствием внутренних напряжений;
- содержание примесей кислорода меньше 0,1 %, углерода меньше 0,15 %, содержание других примесных элементов (Ca, Mg, Al, Fe, Ni, Cr) менее 0,001 % ;
- распределение плутония по продольному и поперечному сечениям равномерно, отклонение от среднего значения не превышает $\pm 0,5$ % абс;
- при определении фазового состава топливных композиций обнаружена единственная фаза (U,Pu)N с ГЦК кристаллической решеткой, значения параметра решетки равно $0,49001 \pm 0,0001$ нм для $U_{0,4}Pu_{0,6}N$ и $0,4892 \pm 0,0001$ нм для $U_{0,82}Pu_{0,18}N$.

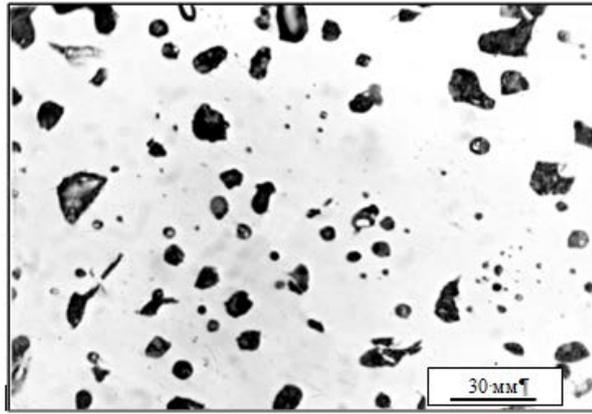


Рисунок 2.1 – Микроструктура нитридного топлива до облучения

Сборно-разборная конструкция тепловыделяющих сборок, облученных в реакторе БОР-60, позволяла выгружать отдельные твэлы со СНУП топливом для проведения послереакторных исследований при достижении определенного уровня выгорания и продолжать облучение оставшихся твэлов. В данной работе исследованы два типа твэлов с различным заполнением зазора между топливом и оболочкой (гелий или свинец).

При гелиевом заполнении зазора топливо-оболочка в экспериментальных твэлах – макетах твэлов БН-600, температура в центре топливного сердечника на начальной стадии облучения по расчетным оценкам достигала максимального значения 1760 °С (рисунок 2.2 а). В процессе облучения по мере уменьшения зазора между топливом и оболочкой происходило увеличение контактной проводимости зазора и снижение максимальной рабочей температуры топливного сердечника в центре таблетки до 1150 °С.

В качестве теплопередающего подслоя, заполняющего пространство между топливом и оболочкой, в экспериментальных твэлах реактора БОР-60 – макетах твэлов реактора БРЕСТ, использовался свинец. Максимальная температура топлива в твэлах со свинцовым подслоем в центре топливного сердечника по расчетным оценкам не превышала 870 °С (рисунок 2.2 б).

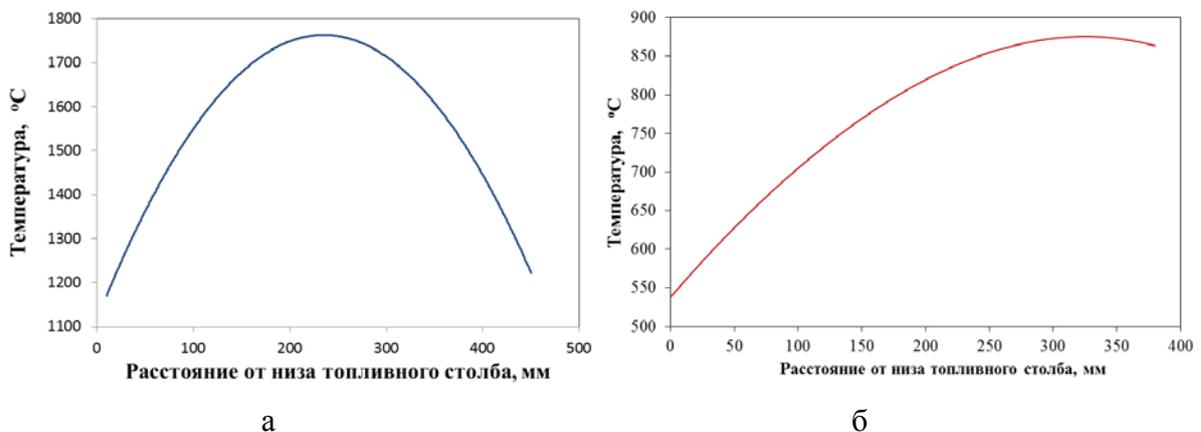


Рисунок 2.2 – Расчетное аксиальное распределение максимальной температуры топливного сердечника в твэлах с гелиевым (а) и свинцовым (б) подслоем

Максимальное расчетное значение выгорания после двух этапов облучения твэлов с гелиевым подслоем составило 12,1 % т.а. Облучение твэлов со свинцовым подслоем происходило в течение трех этапов до максимального расчетного выгорания 5,5 % т.а. Распределение выгорания по высоте твэлов в конце облучения представлено на рисунке 2.3.

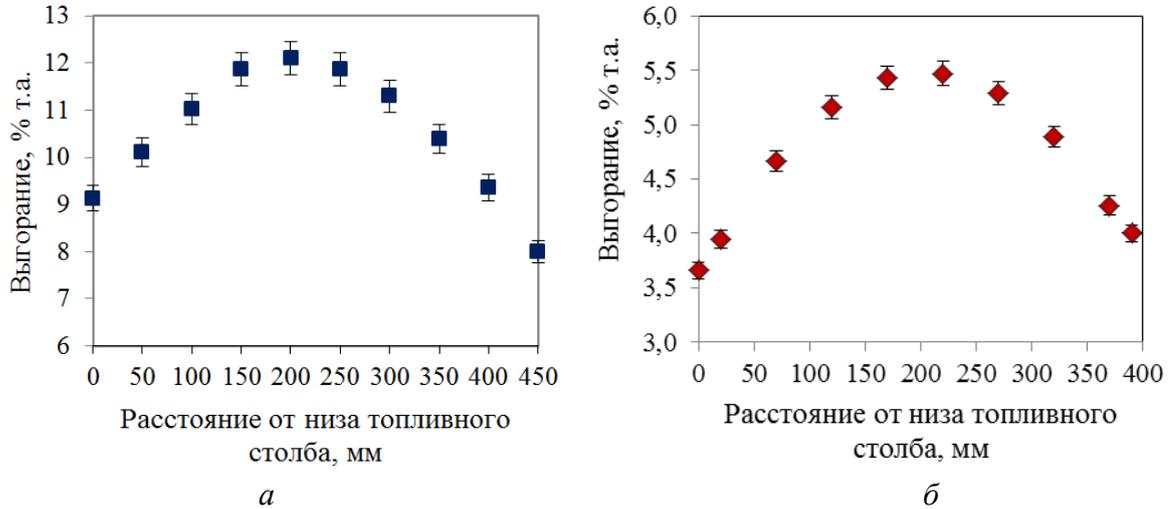


Рисунок 2.3 – Расчетное аксиальное распределение выгорания топлива в твэле с гелиевым (а) и свинцовым (б) заполнением

Основные характеристики и условия облучения твэлов с уран-плутониевым нитридным топливом представлены в таблице 2.1.

Таблица 2.1 – Основные характеристики и параметры облучения твэлов с уран-плутониевым нитридным топливом

Наименование параметра	Характеристика параметра	
	гелий	свинец
Теплопередающий подслоем	гелий	свинец
Состав топливного сердечника	$U_{0,4}Pu_{0,6}N$	$U_{0,82}Pu_{0,18}N$
Материал оболочки твэла	сталь ЧС-68	сталь ЭП-823
Плотность топлива, г/см ³	12,16±0,05	13,08±0,07
Пористость, %	15,1±0,4	8,5±0,5
Диаметр топливной таблетки, мм	5,88±0,03	7,85±0,05
Номинальный диаметр твэла, мм	6,9	9,4
Номинальная толщина оболочки, мм	0,4	0,5
Длина топливного сердечника, мм	450±3	390±4
Расчётное максимальное выгорание, % т.а.	7,0 ¹⁾	2,8 ¹⁾
	12,1 ²⁾	4,0 ²⁾
		5,5 ³⁾
Массовая доля примесей в топливе, %:		
	углерод	< 0,15
кислород	< 0,10	
Расчётная максимальная линейная тепловая мощность твэла (начало/конец облучения), Вт/см	545/350	435/424
Расчётная максимальная температура топлива (начало/конец облучения), °С	1760/1150	870/784

^{1), 2), 3)} - значение в первом, втором и третьем этапе облучения, соответственно

Дополнительно в работе представлены результаты определения распухания СНУП топлива, полученные в рамках реализации программы по обоснованию работоспособности плотного топлива для реакторов на быстрых нейтронах [2], которые позволили провести сравнительный анализ и подтвердить обнаруженные закономерности на начальной стадии облучения до выгорания 5 % т.а. Топливные композиции $U_{0,88}Pu_{0,12}N$, изготовленные методом карботермического восстановления, облучались в реакторе БОР-60 в период с 2013 по 2018 гг. в составе сборно-разборных облучательных устройств (ОУ) в экспериментальных твэлах с газовым и жидкометаллическим подслоем – макетах твэлов реактора БРЕСТ ОД-300. Макеты отличались от полномасштабных твэлов меньшими величинами длины, объема газосборника и высоты топливного столба. Основные характеристики и условия облучения указанных экспериментальных твэлов представлены в таблице 2.2. Расчетные аксиальные распределения выгорания топлива в твэлах показаны на рисунке 2.4.

Таблица 2.2 – Основные параметры облучения и характеристики твэлов с уран-плутониевым нитридным топливом, облученных в составе ОУ-2 и ОУ-4

Наименование параметра	Характеристика параметра	
	ОУ-2	ОУ-4
Обозначение облучательного устройства	ОУ-2	ОУ-4
Теплопередающий подслои в твэле	гелий	свинец
Состав топливного сердечника	$U_{0,88}Pu_{0,12}N$	
Высота топливного сердечника, мм	386	389
Материал оболочки твэла	16X12МВСФБР-III (ЭП823-III)	
Номинальный диаметр оболочки твэла, мм	9,4	
Номинальная толщина оболочки твэла, мм	0,5	
Диаметр топливных таблеток, мм	8,07±0,02	7,88 ± 0,02
Плотность топлива, г/см ³	12,18	13,16
Пористость, %	15	8
Массовая доля примесей в топливе, %:		
углерод	0,09	0,11
кислород	0,04	0,08
Расчетная максимальная линейная тепловая мощность твэла, кВт/м	32,0	32,9
Расчетное максимальное выгорание топлива, % т. а.	4,8	3,9
Расчетная максимальная температура топлива, °С	1145	734

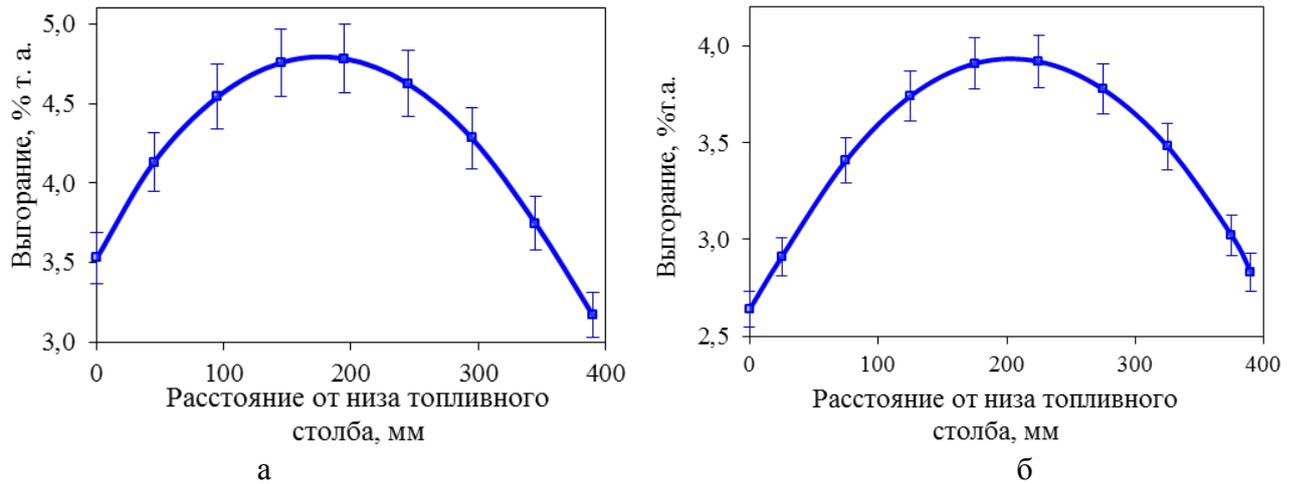


Рисунок 2.4 – Расчетное аксиальное распределение выгорания топлива в твэле с гелиевым (а) и свинцовым (б) заполнением, облученных в составе ОУ-2 и ОУ-4

2.2 Методы исследования облученных топливных композиций

Для оценки величины и выявления механизмов радиационного распухания уран-плутониевого нитридного топлива проведено комплексное исследование изменений макро- и микроструктуры, элементного и фазового состава, плотности и объема топлива в зависимости от выгорания, рабочей температуры и исходных характеристик топливных композиций. В таблице 2.3 представлены основные виды исследований, проведенных в работе, и их назначение.

Таблица 2.3 – Основные виды проведенных исследований

Вид исследований	Назначение исследований
Гамма-сканирование твэлов	Получение распределения продуктов деления по длине твэлов для определения длины и целостности топливного сердечника, аксиального распределения выгорания топлива, выбора координат для вырезки образцов. Для анализа распухания топлива использовались данные об аксиальном распределении продуктов деления топлива ^{106}Ru , ^{95}Zr и ^{137}Cs . Распределения ^{106}Ru и ^{95}Zr могут дать информацию о длине топливного сердечника, аксиальном распределении делящихся компонентов. Представление о поведении летучих продуктов деления дает аксиальное распределение ^{137}Cs .
Профилометрия	Получение данных об изменении диаметра твэла по высоте для определения координат механического взаимодействия топлива с оболочкой и выбора координат для вырезки образцов

Продолжение таблицы 2.3

Вид исследований	Назначение исследований
Прокол твэлов с определением количества и состава внутритвэльного газа.	Определение свободного объёма твэлов, давления под оболочками твэлов и состава газовой фазы для оценки выхода газообразных продуктов деления из топлива в свободный объём твэла
Металлографические исследования топлива и оболочек с помощью оптической микроскопии.	Получение изображений микроструктуры топлива в различных сечениях по высоте твэлов, анализ изменения микроструктурных характеристик топлива в процессе эксплуатации.
Планиметрические измерения на поперечных шлифах с помощью программы обработки изображений Видео-Тест Структура 5.2 .	Определение диаметра топливной таблетки по фотографиям полных поперечных сечений твэлов. Получение экспериментальных данных для расчета изменения объема топливного сердечника, выявления особенностей свободного и сдерживаемого оболочкой распухания. Определение порогового выгорания топлива до начала механического взаимодействия с оболочкой в зависимости от конструкции твэла и параметров облучения.
Исследование элементного состава и структурно-фазового состояния топлива и оболочек методами сканирующей электронной микроскопии и электронно-зондового микроанализа в различных сечениях по высоте активной части твэлов с разным локальным выгоранием и температурой топлива. Анализ пористости топлива с помощью программы Видео-Тест Структура 5.2.	Получение распределения урана, плутония и продуктов деления по сечению и по радиусу топливных таблеток. Выявление закономерностей поведения различных по химической природе групп продуктов деления. Получение распределения пористости вдоль радиуса топливных таблеток. Анализ влияния параметров облучения (температура, выгорание) на вид сформировавшейся пористости в корреляции с данными по выходу газа из топлива под оболочку. Определение пористости топлива после облучения, оценка вклада увеличения объема пор в общее распухание топливных композиций.
Рентгеноструктурный анализ топлива в различных сечениях твэлов с разным выгоранием и температурой.	Получение данных о кристаллической структуре СНУП топлива для подтверждения фазовой стабильности либо выявления фазовой нестабильности СНУП топлива. Определение влияния условий облучения на изменение параметра кристаллической решётки UPuN.
Гидростатическое взвешивание образцов топлива из различных сечений твэлов с разным локальным выгоранием и температурой облучения.	Получение информации о плотности топлива для оценки распухания топлива.

2.2.1 Методы исследования структурно-фазового состояния и элементного состава топлива

Распределение продуктов деления по высоте топливного столба было исследовано методом гамма-сканирования. Метод гамма-сканирования основан на получении спектра собственного излучения изделия и анализе распределения продуктов деления и активации по высоте элемента с помощью вычислений площадей пиков полного поглощения (ППП) соответствующих энергий. Статистическая погрешность измерений не превышала $\pm 3\%$ [54].

Для получения данных о герметичности твэлов, прогнозирования степени газовой выделенности с ростом выгорания выполняли определение объема и состава газовой фазы под оболочкой твэла. Измерение давления газа, выделившегося при проколе оболочки твэла лазерным лучом в предварительно вакуумированную емкость известного объема, проводили для определения объема газа под оболочкой твэла. Путем подачи гелия и определения изменения давления газа в калиброванной емкости при присоединении к ней предварительно вакуумированного узла герметизации с находящимся в нем проколотым твэлом проводили измерение свободного объема в твэле. По результатам измерений определяли объем вышедшего газа и объем пустот в твэле. Погрешность определения объема газа составляла $6,8 \text{ см}^3$ в диапазоне $150\text{--}1150 \text{ см}^3$. Погрешность определения свободного объема составляла $\pm 0,6 \text{ см}^3$. Погрешность измерения давления газа составляла не более 9% . Состав газа под оболочкой твэлов определяли масс-спектрометрическим методом. По суммарному количеству Кг и Хе под оболочкой твэла и расчетным данным по их наработке определяли относительный выход газа из топлива [55,56].

Исследования структуры топливных материалов проводили на внутрикамерном оборудовании, включающем шлифовальные станки, пульта электрохимического травления, металлографические микроскопы УМСД-2, МИМ-15, МДРЗК, сканирующий электронный микроскоп Philips XL 30 ESEM-TMP. Образцы, представляющие собой фрагменты облученных твэлов, фиксировали в специализированных обоймах самотвердеющими материалами, такими как сплав Вуда (Bi-50,0%; Sn-12,5%; Cd-12,5%; Pb-25%) и эпоксидная смола, после чего производилась шлифовка и полировка поверхности образцов. Для шлифовки образцов использовали водостойкие абразивные шкурки и охлаждение водой. Для полировки образцов использовали алмазные пасты и различные типы тканей (сукно, бархат, шелк и др.) [57].

Получение изображений макроструктуры твэла в плоскости шлифа осуществляли на оптическом микроскопе УМСД-2. В зависимости от типа исследований расположение образца в обойме было различным (рисунок 2.5). Исследование структуры и размерных характеристик твэла методами оптической и сканирующей электронной микроскопии проводили на поперечных шлифах (рисунок 2.5 а, г). Для проведения электронно-зондового микроанализа из-

за высокой чувствительности приборов необходимо было максимально снизить радиоактивность образца, поэтому образец, представляющий собой фрагмент твэла высотой не более 5 мм, заливали в обойму под небольшим наклоном и шлифовали до половины сечения твэла (рисунок 2.5 б, д). При проведении рентгеноструктурных исследований для повышения интенсивности дифракционных максимумов необходимо было увеличить площадь, занимаемую топливом на поверхности шлифа, поэтому образцы заливали в металлографическую обойму продольно и шлифовали до центральной плоскости топливного сердечника (рисунок 2.5 в, е).

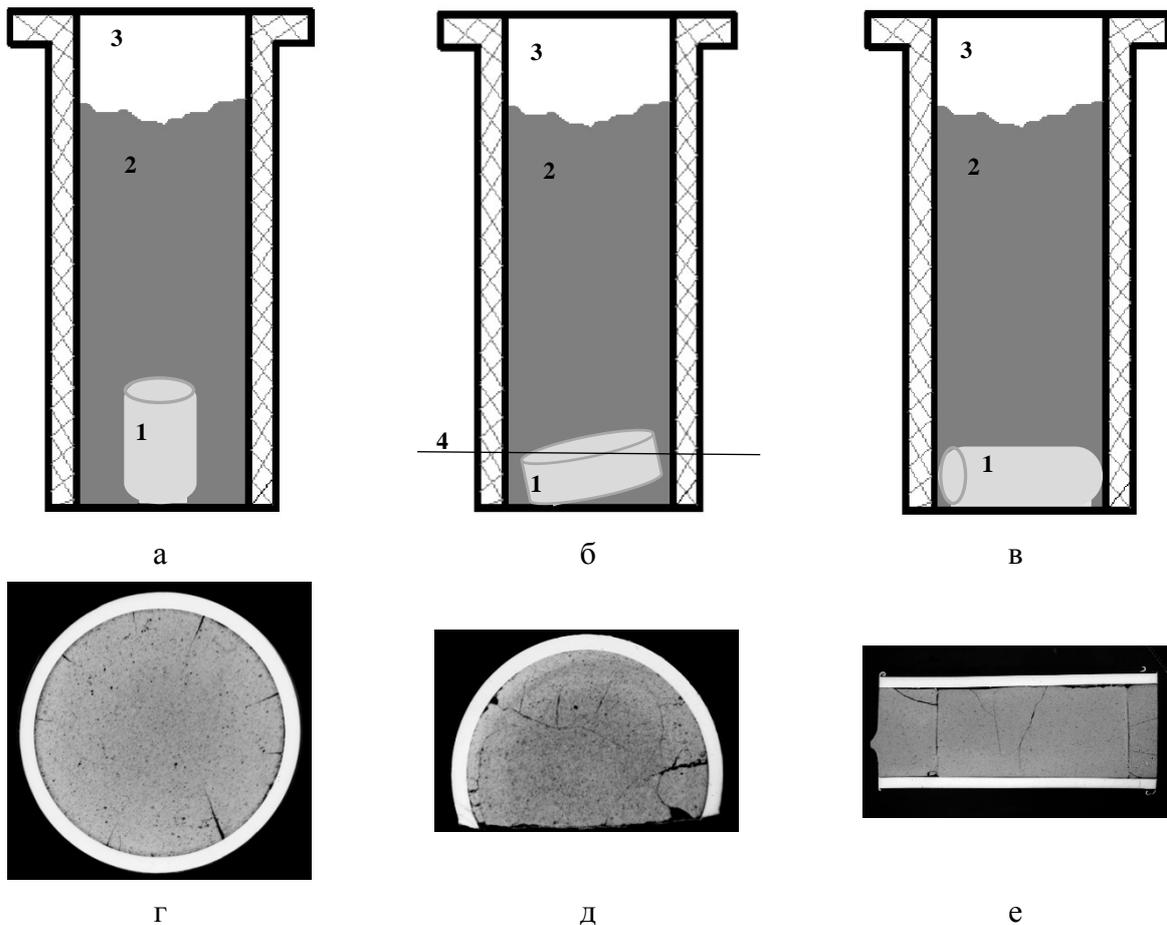


Рисунок 2.5 – Ориентация образца в обойме при подготовке шлифов для металлографических исследований (а), электронно-зондового микроанализа (б), рентгеноструктурного анализа (в) и типичный пример получаемых изображений на УМСД (г, д, е): 1 – образец, 2 – сплав Вуда, 3 – металлографическая обойма, 4 – линия сошлифовывания

Исследование микроструктуры топлива на поверхности шлифа проводили при различных увеличениях. По изображениям, снятым с относительно малыми увеличениями (до 100 крат), анализировали общий характер распределения пористости, однородность топливного материала, фиксировали трещины и металлические включения существенных размеров. При

большем увеличении проводили исследования характерных участков вдоль радиуса топливного сердечника.

Более глубокие и детальные исследования микроструктуры топлива на шлифах и изломах топливных таблеток проводили методом сканирующей электронной микроскопии [58]. Для проведения фрактографического исследования микроструктуры топлива на изломах локальное разрушение образцов достигалось процарапыванием борозды вдоль радиуса топливной таблетки иглой с твердым наконечником (карбид вольфрама).

При обработке и анализе изображений, полученных на металлографическом и сканирующем электронном микроскопе, методом количественной металлографии проводили измерение диаметра топливного сердечника, определение пористости топлива и размера зерен [57, 59].

Распределение продуктов деления, компонентов топливной композиции, локальное определение качественного состава и массовой доли химических элементов в облученном топливе получены методом электронно-зондового рентгеноспектрального микроанализа с использованием сканирующего электронного микроскопа XL 30 ESEM-TMP со спектрометром Inca Wave 700 и автоматизированного дистанционно управляемого прибора MAP-4 [60]. Количественная регистрация характеристического рентгеновского излучения, генерируемого в локальной области взаимодействия электронного зонда с поверхностью исследуемого образца, положена в основу метода электронно-зондового рентгеноспектрального микроанализа. Определяя длину волны и сопоставляя с табличными значениями, получен качественный элементный состав исследуемого объекта. Количественную информацию о составе объекта получили путем сопоставления интенсивности линий анализируемых элементов на исследуемом образце и образцах сравнения.

Для определения параметра кристаллической решетки и фазового состава облученного топлива проведен рентгеноструктурный анализ с помощью дистанционного дифрактометра ДАРД-5 методом пошагового сканирования. При помощи пакета программ X-RAY методом аппроксимации определены положения и интенсивность рефлексов на рентгенограммах. Для коррекции углов отражения на поверхность образцов наносили алмазный порошок в виде суспензии в спирте. Точность отсчета углов дифракции в данном методе составляла $0,005^\circ$ [48].

2.2.2 Методы определения распухания топлива

Существуют два основных способа экспериментального определения распухания. Первый способ основан на определении изменения объема топливного сердечника:

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \frac{V - V_0}{V_0} \cdot 100\%, \quad (2.1)$$

где V_0, V – объем топливного сердечника до и после облучения, соответственно.

Поскольку топливный сердечник имел цилиндрическую форму, выражение для распухания можно представить в следующем виде:

$$\frac{V - V_0}{V_0} = \frac{d^2 l}{d_0^2 l_0} - 1, \quad (2.2)$$

где d_0, d – диаметр топливного сердечника до и после облучения, соответственно, мм;

l_0, l – длина топливного сердечника до и после облучения, соответственно, мм [6].

Для определения диаметра топливного сердечника были использованы данные об изменении диаметра твэла и ширины зазора между топливом и оболочкой. Измерения диаметра твэла проводили после снятия дистанционирующей проволоки и химической очистки поверхности оболочки с помощью полуавтоматического профилометра в соответствии с методикой [62]. Измерения выполнены в 4-х ориентациях через 45° с шагом измерений 1 мм по всей длине твэлов за исключением не измеряемых зон на концах твэлов протяженностью ~ 30 мм. Методическая погрешность измерений не превышала 7,0 мкм.

Кроме того, измерение геометрических параметров макроструктуры твэла выполняли путем компьютерной обработки изображений поперечных сечений твэлов методом стереометрической (количественной) металлографии. Измеряемая величина в данном методе – количество пикселей, содержащихся на изображении изучаемого объекта. Для получения численного значения измеряемого параметра проводили операцию калибровки – установления масштабного коэффициента (размера пикселя как единицы измерения) по известному значению линейного размера калибра. В качестве эталона задавался диаметр калибровочного кольца, размещенного на металлографическом шлифе вместе с исследуемым образцом [57]. Операция калибровки проводилась отдельно для каждого сечения твэла. Поскольку изменение геометрических параметров топливной таблетки в случае наличия в ней трещин (особенно в случае смещения и выкрашивания отдельных фрагментов) не очевидно, определение диаметра топливных таблеток осуществлялось при помощи системы анализа изображений Видео-Тест Структура 5.2 двумя взаимодополняющими способами. По первому способу в предположении, что поперечное сечение таблетки имеет форму круга, измерялся диаметр (d) окружности по трем точкам, нанесенным на дуге крупных фрагментов таблетки. Если фрагментов было

несколько, то за диаметр таблетки (d) принималось среднее значение. По второму способу определялась площадь топливной таблетки или суммарная площадь ее фрагментов (в случае их образования) по количеству пикселей на изображении. Полученные значения использовались

для расчета диаметра эквивалентного круга по формуле $d = \sqrt{\frac{4 \sum S}{\pi}}$, где S – площадь фрагментов. Для анализа возможного механического взаимодействия топлива с оболочкой необходимы данные, полученные обоими способами.

На рисунке 2.6, в качестве примера, представлены схемы определения диаметра топливного сердечника. Синим цветом на изображении (рисунок 2.6 б) обозначена площадь таблетки для расчёта эквивалентного диаметра, розовым цветом – зазор и трещина, не включаемые в указанную площадь.

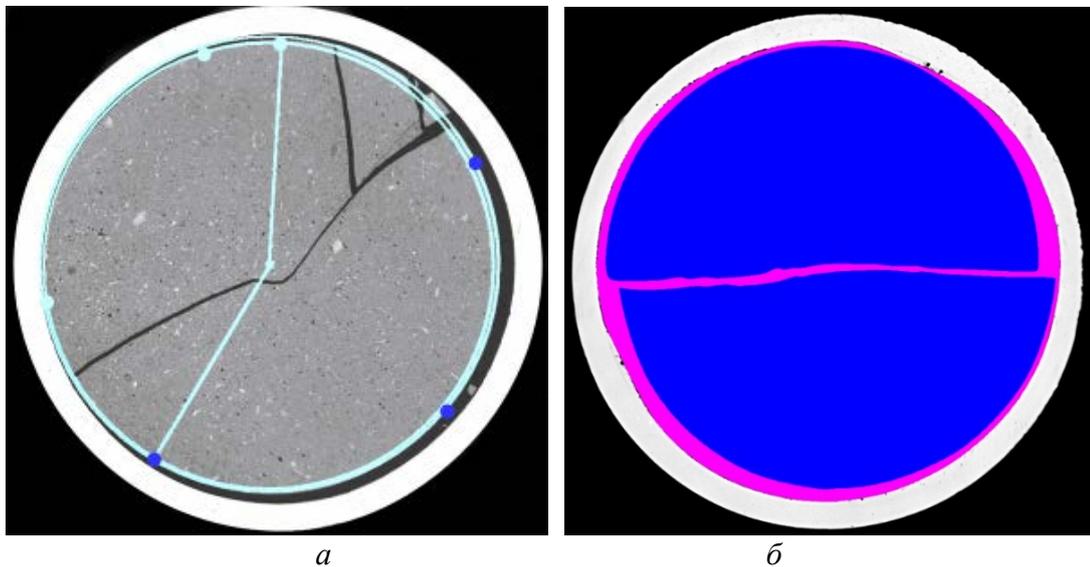


Рисунок 2.6 – Схема измерений диаметра топливной таблетки по трем точкам, нанесенным на дугу окружности (а), и площади фрагментов топливной таблетки (б)

Поскольку при распухании происходило увеличение не только диаметра топливного столба, но и его длины, при расчете изменения объема топлива в конкретном сечении $\frac{\Delta V_i}{V_0}$

учитывался вклад от удлинения в соответствии с формулой:

$$\frac{\Delta V_i}{V_0} = \frac{d_i^2 l_i}{d_0^2 l_0} - 1 = \frac{d_i^2 (l_0 + \Delta l_i)}{d_0^2 l_0} - 1 = \frac{d_i^2 l_0 \left(1 + \frac{\Delta l_i}{l_0}\right)}{d_0^2 l_0} - 1 = \frac{d_i^2 \left(1 + \frac{\Delta l_i}{l_0}\right)}{d_0^2} - 1, \quad (2.3)$$

Если вспомнить, что выгорание распределено по длине твэла неравномерно (рисунки 2.3, 2.4) с максимумом в центральной части твэла, то локальное удлинение топливного сердечника также имеет неравномерный характер (как и увеличение размеров в диаметральном направлении). Учёт неравномерности удлинения топливного сердечника по высоте твэла

осуществляли в предположении, что удлинение пропорционально выгоранию. Таким образом, относительное удлинение для конкретного сечения твэла было представлено в виде:

$$\frac{\Delta l_i}{l_0} = \frac{\Delta l}{l_0} \cdot \frac{B_i}{B_{cp}}, \quad (2.4)$$

где l_0 – длина топливного сердечника до облучения, мм;

Δl – изменение длины топливного сердечника, мм;

B_i, B_{cp} – локальное и среднее выгорание, % т.а.

Поэтому выражение для распухания было преобразовано до следующего вида:

$$\frac{\Delta V_i}{V_0} = \frac{d_i^2 \cdot (1 + \frac{\Delta l}{l_0} \cdot \frac{B_i}{B_{cp}})}{d_0^2} - 1, \quad (2.5)$$

где d_i – значение диаметра топливного сердечника в i - том сечении, мм;

d_0 – значение диаметра таблеток до облучения;

B_i – значение выгорания i - том сечении, % т.а.;

B_{cp} – среднее значение выгорания в твэле, % т.а.;

l_0 – высота топливного сердечника до облучения, мм;

Δl – увеличение высоты топливного сердечника в результате облучения, мм.

Полученную величину из относительных единиц можно перевести в проценты, умножив на 100.

Поскольку объемные изменения материала связаны с изменением его плотности, второй способ экспериментального определения распухания связан с определением изменения плотности топлива. Из известного соотношения между плотностью, массой и объемом легко получить следующее выражение для расчета распухания:

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \frac{V - V_0}{V_0} = \frac{\rho_0 - \rho}{\rho}, \quad (2.6)$$

где ρ_0 и ρ – плотность топливного сердечника до и после облучения, соответственно, г/см³.

Поэтому определение плотности облученных топливных таблеток СНУП топлива является одной из важных задач послереакторных исследований. Наиболее подходящей методикой измерения плотности топливных таблеток является метод гидростатического взвешивания, основанный на определении выталкивающей силы, которая действует на исследуемое твердое тело, погруженное в жидкость известной плотности.

Пространство между топливом и оболочкой твэлов с жидкометаллическим подслоем было заполнено свинцом, который после остывания находился в твердом состоянии и был механически неотделим от топливного сердечника, поэтому определение плотности проводили после удаления свинцового подслоя. Для удаления свинца с поверхности образцов применяли

химическое травление специальным составом, представляющим собой водный раствор уксусной и серной кислоты, подогретый до температуры 60-70 °С.

Взвешивание образцов осуществляли на аналитических весах, адаптированных для определения плотности указанным методом. В качестве вспомогательной жидкости использовали четыреххлористый углерод. Подготовленный образец, представляющий собой освобожденную от оболочки топливную таблетку или ее часть, взвешивали сначала на воздухе, а затем в жидкости, плотность которой известна [63]. Абсолютная ошибка в определении плотности для разных образцов находится в интервале 0,01-0,14 г/см³.

Поскольку геометрический объем топливной таблетки для пористого тела представляет сумму объемов сплошного вещества, объемов закрытых и открытых пор, понятие плотности нельзя толковать однозначно. В этом случае существуют следующие виды определения плотности:

– геометрическая (кажущаяся) плотность, когда масса (результат взвешивания) сухого образца, измеренная на воздухе, делится на его геометрический объем:

$$\rho = \frac{\rho_{жс} m_c}{(m_{пс} - m_{жс})}, \quad (2.7),$$

где $\rho_{жс}$ – плотность рабочей жидкости (CCl₄) при температуре измерения, г/см³;

$m_{пс}$ – результат взвешивания пропитанного образца на воздухе, г;

$m_{жс}$ – результат взвешивания пропитанного образца в жидкости, г;

m_c – результат взвешивания сухого образца на воздухе;

– объемная плотность, когда масса (результат взвешивания) сухого образца делится на сумму объема сплошного материала и объема закрытых пор:

$$\rho = \frac{\rho_{жс} m_c}{(m_c - m_{жс})}, \quad (2.8)$$

где ρ – плотность образца, определенная гидростатическим методом, г/см³;

$\rho_{жс}$ – плотность рабочей жидкости (CCl₄) при температуре измерения, г/см³;

$m_{жс}$ – результат взвешивания пропитанного образца в жидкости, г;

m_c – результат взвешивания сухого образца на воздухе;

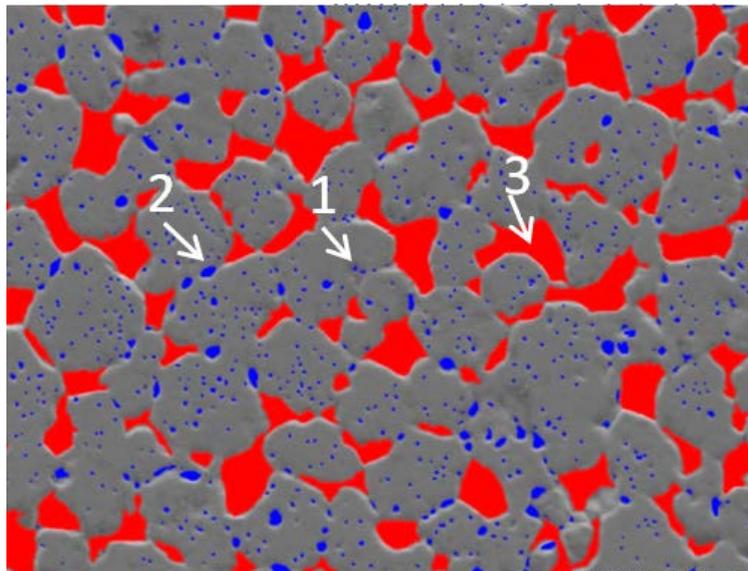
– истинная плотность, когда масса образца делится только на объем сплошного материала, соответствующая значению теоретической плотности материала [64].

При расчете распухания в общем случае оценивается изменение геометрического объема топливных таблеток с учетом как закрытой, так и открытой пористости, поэтому для вычисления распухания следует использовать значения геометрической плотности. Геометрическая плотность отличается от объемной тем, что при её определении проводится

учет вклада в общий объем образца объема открытых пор (с помощью операции пропитки образца рабочей жидкостью). Под открытой пористостью следует понимать связанные поры, или поры, объединенные в цепочки и каналы, которые выходят на поверхность топливной таблетки (рисунок 2.7) и заполняются жидкостью при проведении измерений плотности методом гидростатического взвешивания. В случае, когда вклад открытой пористости в общую пористость материала мал ($m_{\text{пс}} \approx m_c$), для оценки распухания можно использовать результаты измерений объемной плотности образца.

В общем случае, распухание топлива в результате облучения происходило за счет увеличения объема пор $\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_r$ и увеличения объема твердой фазы $\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{\text{ТВ}}$, т.е. распухание можно представить выражением вида:

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_r + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{\text{ТВ}} \quad (2.9)$$



1 – вторичные «газовые» поры, появившиеся в процессе облучения; 2 – цепочки пор по границам зерен (связанная пористость, открытая для движения и выхода ГПД в свободный объем твэла); 3 – технологические поры, образовавшиеся на этапе спекания топливных таблеток

Рисунок 2.7 – Результат выделения пор на изображении микроструктуры облученного топлива

Для расчета распухания топлива за счет увеличения объема пор была определена пористость после облучения вдоль радиуса и проведено ее усреднение по площади поперечного сечения топливного сердечника. Из-за "заваливания" краевых участков пор в процессе подготовки шлифа, а также размывания или подсветки границ пор (рисунок 2.8) на изображениях, полученных во вторичных электронах, идентификацию (выделение) пор проводили в программе Видео-Тест Структура 5.2 в полуавтоматическом режиме – по совокупности данных,

полученных при анализе внешнего вида поры на данном участке и диаграммы распределения уровня яркости по площади изображения (рисунок 2.9). Для проведения количественной оценки пористости топлива на каждом участке микроструктуры вдоль радиуса топливной таблетки были выделены все поры. Общая пористость топлива рассчитана, как отношение суммарной площади пор к площади изображения с относительной погрешностью от 5 до 13 % [59].

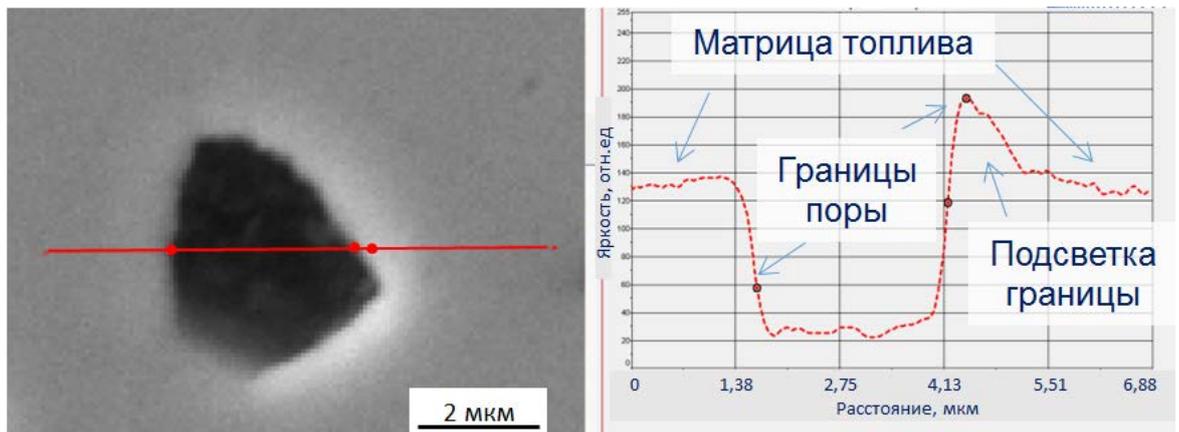


Рисунок 2.8 – Изменение яркости вдоль границы поры и топливной матрицы на изображении, полученном во вторичных электронах

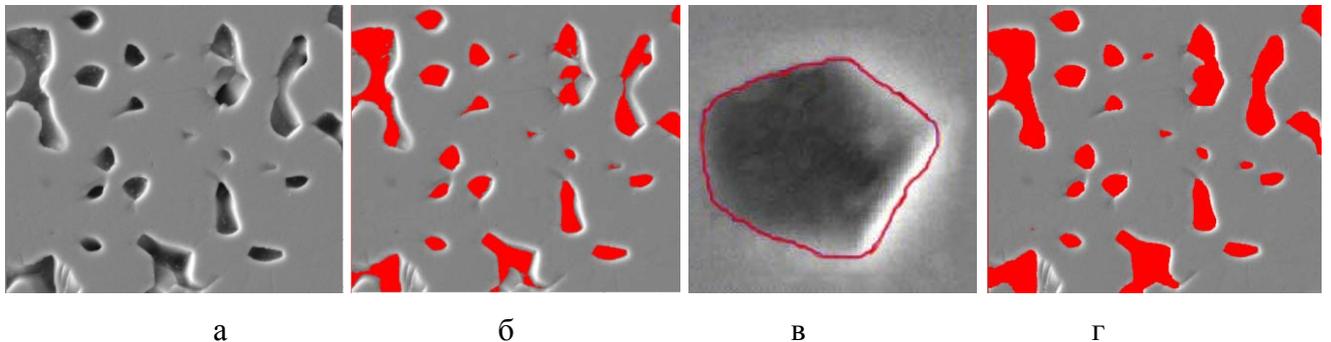


Рисунок 2.9 – Обработка изображений микроструктуры в программе Видео-Тест Структура 5.2 в полуавтоматическом режиме: а – исходное изображение; б – результат выделения пор по уровню яркости; в – результат ручной корректировки границ пор; г – конечный результат выделения всех пор на изображении

Для расчета средней по площади сечения топливной таблетки пористости проведено условное ее деление на некоторое число concentрических окружностей или слоев радиуса r_n (рисунок 2.10). При умножении значений пористости, усредненных для двух соседних положений вдоль радиуса, на площадь слоя, отнесенную ко всей площади топливной таблетки, определена доля пор, приходящаяся на площадь каждого из слоев. Просуммировав все полученные значения, была получена средняя по площади пористость.

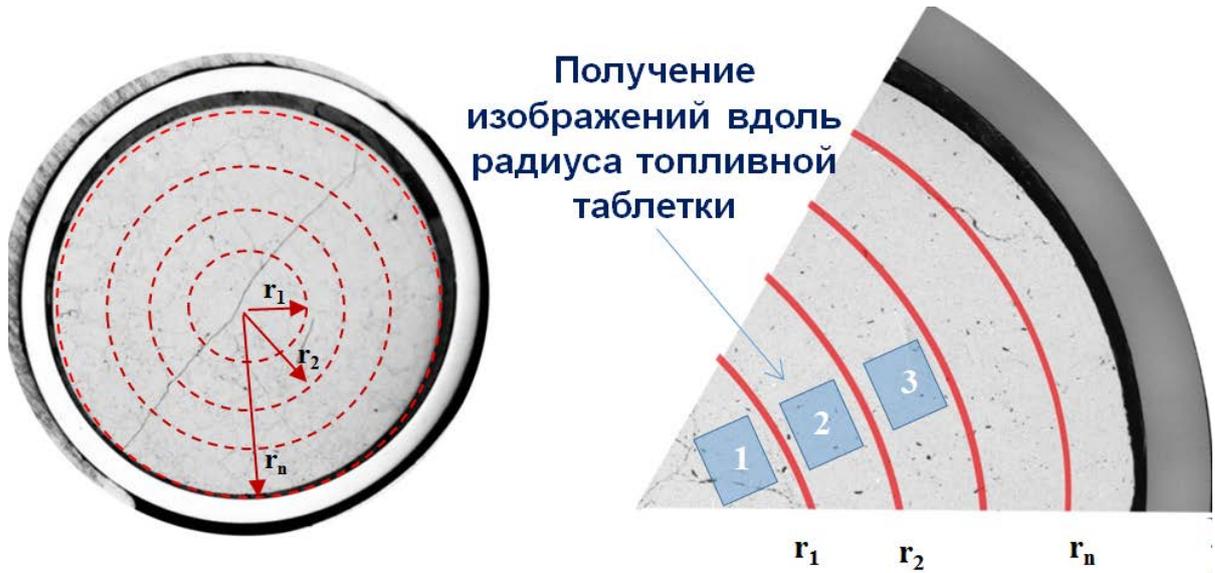


Рисунок 2.10 – Схема условного деления топливной таблетки на concentрические окружности (слои) и расположение получаемых изображений вдоль радиуса (r_i – радиус слоя)

Для оценки вклада пористости в изменение объема топлива, необходимо определить, как изменился объем пор в результате облучения. По определению, пористость – это отношение объема пор к общему объему пористого тела [45]. Поэтому объем пор можно представить выражением вида:

$$V_{\text{п}} = \Pi \cdot V, \quad (2.10)$$

где $V_{\text{п}}$ – объем пор в материале, отн.ед;

Π – значение пористости материала, отн.ед;

V – общий объем материала, отн.ед.

Выражение для распухания за счет увеличения пористости представляет собой отношение изменения объема пор к общему объему топлива до облучения:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_r = \frac{V_{\text{п}} - V_{\text{п}0}}{V_0} = \frac{\Pi \cdot V - \Pi_0 \cdot V_0}{V_0} = \Pi \frac{V}{V_0} - \Pi_0, \quad (2.11)$$

где $V_{\text{п}0}$, $V_{\text{п}}$ – объем пор в топливе соответственно до и после облучения, отн.ед.;

Π_0 и Π – пористость до и после облучения, соответственно, %;

V_0 , V – общий объем топлива соответственно до и после облучения, отн.ед.

Из формулы (2.1) можно выразить объем топлива после облучения через исходный объем и значение общего $\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)$ распухания топлива:

$$V = V_0 \cdot \left(\frac{\Delta V}{V_0} + 1\right), \quad (2.12)$$

А это значит, что вклад в общее распухание топлива «газовой» составляющей (распухание за счет образования и роста газовых пор) можно оценить по формуле:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_r = \Pi \cdot \left(\frac{\Delta V}{V_0} + 1\right) - \Pi_0, \quad (2.13)$$

где $\frac{\Delta V}{V_0}$ – распухание топлива, %;

Π_0 и Π – значение пористости материала соответственно до и после облучения, %.

Разница между значениями общего распухания $\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_r$ и распухания за счет увеличения объема пор $\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{\text{ТВ}}$ представляет собой вклад в распухание за счет изменения объема твердой фазы $\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{\text{ТВ}}$.

2.3 Выводы по главе 2

В работе исследованы экспериментальные твэлы с топливными композициями на основе нитридов урана и плутония – $U_{0,4}Pu_{0,6}N$, $U_{0,82}Pu_{0,18}N$, $U_{0,88}Pu_{0,12}N$. В зависимости от теплопроводности материала, заполняющего пространство между топливом и оболочкой твэла, температурный режим облучения нитридных топливных композиций существенно отличался – максимальная рабочая температура топлива в центре топливного сердечника не превышала 870 °С для твэлов со свинцовым подслоем и достигала 1760 °С – для твэлов с гелиевым подслоем.

Определены и обоснованы методы послереакторных исследований изменений структуры, элементного и фазового состава, плотности и объема топлива в зависимости от выгорания, рабочей температуры и исходных характеристик топливных композиций, которые позволят определить величину радиационного распухания, температурные интервалы реализации различных механизмов распухания и провести расчеты их вкладов в объемные изменения топливных таблеток.

Глава 3. Особенности структурно-фазового состояния уран-плутониевого нитридного топлива после низкотемпературного облучения в реакторе БОР-60

Твэлы с жидкометаллическим (свинцовым) заполнением пространства между топливом и оболочкой были облучены в реакторе БОР-60 до максимального выгорания 5,5 % т.а. и максимальной рабочей температуры в центре топливного сердечника 870 °С. Топливные композиции представляли собой твердый раствор на основе моонитридов урана и плутония – $U_{0,82}Pu_{0,18}N$, $U_{0,88}Pu_{0,12}N$ с исходной (технологической) пористостью от 8 до 8,5 %. При относительно низкой рабочей температуре топлива, обеспечиваемой жидкометаллическим подслоем, большая часть продуктов деления, образовавшихся в результате облучения, равномерно распределена в матрице топлива. Выход части газообразных и твердых продуктов деления из твердого раствора происходит в результате атермических процессов.

3.1. Микроструктура нитридного топлива после облучения

Свойства облученных топливных материалов во многом связаны с особенностями их строения до и после облучения. Общее представление об изменении макро- и микроструктуры топлива в зависимости от выгорания и температуры облучения, определяемых положением вдоль радиуса топливной таблетки и координатой по высоте активной части твэла, было получено при проведении металлографических исследований образцов поперечных сечений, вырезанных из нижней, центральной и верхней части топливных сердечников с исходной пористостью 7-8 % после достижения промежуточных (2,8 и 4 % т.а.) и максимального (5,5 % т.а.) выгорания в составе твэлов со свинцовым подслоем. Во всех сечениях исследованных твэлов таблетки уран-плутониевого нитридного топлива имели трещины в радиальном и в произвольном направлении с образованием фрагментов разной величины (рисунок 3.1).

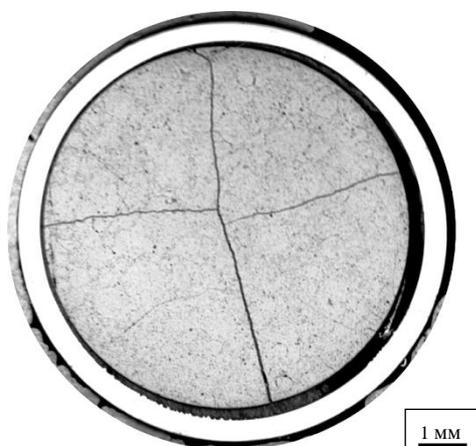


Рисунок 3.1 – Внешний вид поперечного сечения твэла с уран-плутониевым нитридным топливом после облучения до выгорания 4 % т.а.

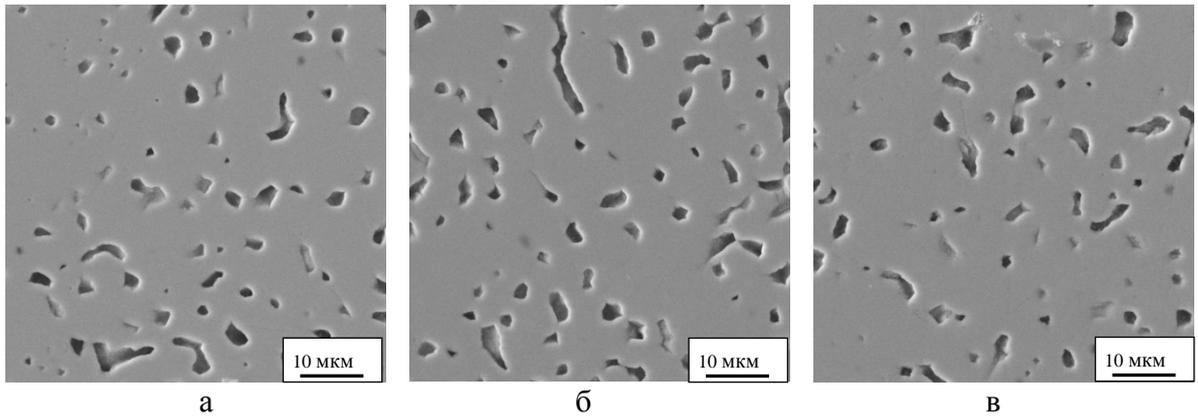


Рисунок 3.3 – Изображения микроструктуры топлива вдоль радиуса топливной таблетки после облучения до выгорания 3,9 % т.а. в составе ОУ-4: а – в центре, б – на середине радиуса, в – на краю [66]

После облучения до максимального выгорания 5,5 % т.а. в микроструктуре уран-плутониевого нитридного топлива обнаружены участки с повышенной концентрацией мелких пор (рисунок 3.4 а), а также включения вторых фаз (светло-серого цвета на рисунке 3.4 б), размером от 1 до 5 мкм. Последнее можно объяснить увеличением выгорания и накоплением продуктов деления, выделившихся из твёрдого раствора матрицы и сформировавших включения самостоятельных фаз в топливе.

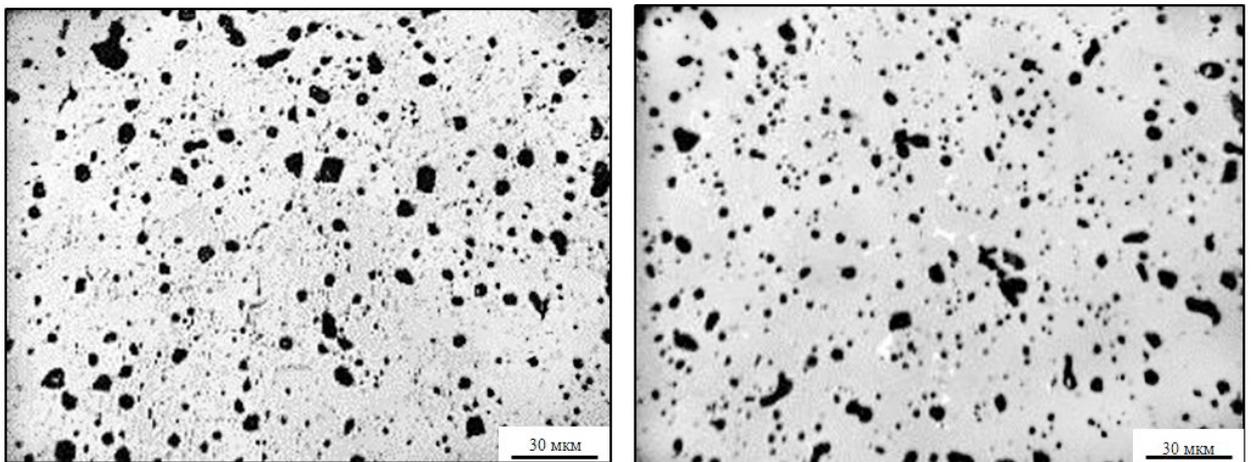
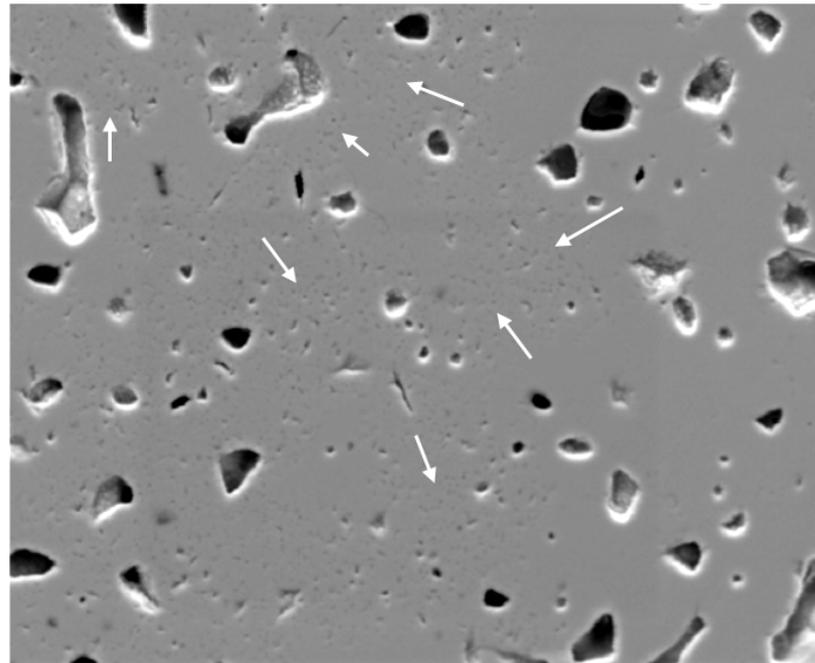


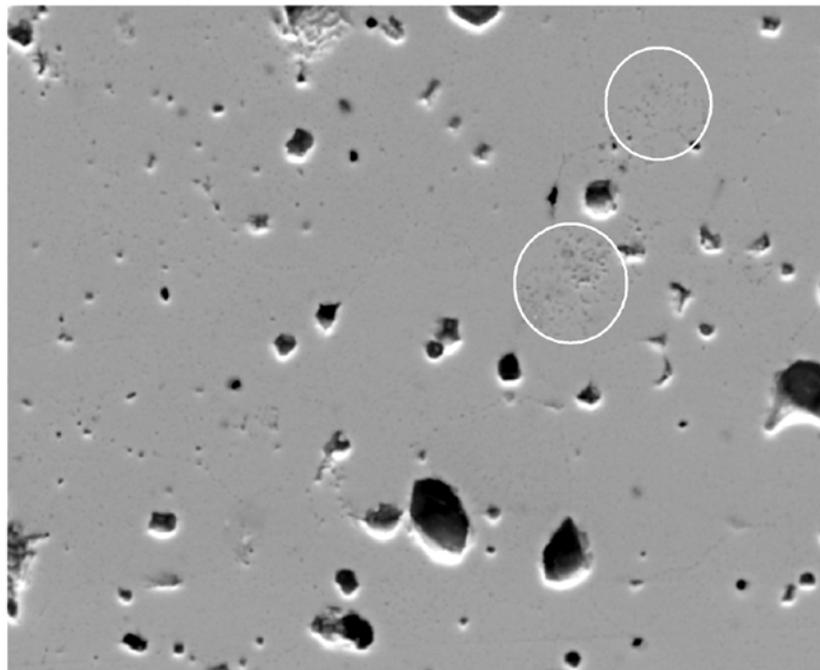
Рисунок 3.4 – Микроструктура уран-плутониевого нитридного топлива после облучения до выгорания 5,5 % т.а.

Для понимания причин и характера микроструктурных изменений, связанных с образованием и перераспределением пор в матрице топлива, методом сканирующей электронной микроскопии проведены более детальные исследования микроструктуры на шлифах и изломах топливной таблетки (рисунки 3.5, 3.6). Исследование микроструктуры топлива на шлифах показало, что в дополнение к технологическим порам размером от 1 до 10 мкм в структуре топлива после облучения до максимального выгорания 5,5 % т.а. сформировались скопления мелких пор размером около 1 мкм и менее. Области с повышенной

концентрацией мелких (субмикронных) пор были обнаружены по всему сечению образца (рисунок 3.5).



а



б

Рисунок 3.5 – Характер пористости топлива в краевой (а) и центральной (б) области топливной таблетки при выгорании 5,5 % т.а. (кругами и стрелками на изображениях отмечены участки с субмикронными порами) [65]

Для получения дополнительных экспериментальных данных, свидетельствующих об изменении структуры нитридного топлива при низкотемпературном облучении, проведены электронно-микроскопические исследования на изломах топливных таблеток. Обнаружено, что

в структуре уран-плутониевого нитридного топлива произошло деление исходных зерен с типичным размером около 20 мкм на субзерна размером менее 1 мкм. Формирование такой мелкозеренной структуры сопровождалось образованием субмикронных пор, зафиксированных ранее на поверхности шлифа. На рисунке 3.6 представлены изображения микроструктуры топлива на изломах в различных частях топливной таблетки. Для описания процесса измельчения и перестройки зерен в ходе облучения ядерного топлива в литературе используется термин «реструктуризация», который будет использован и в настоящей работе. Реструктурированные участки топлива у поверхности топливной таблетки, представляющие собой совокупность субзерен и субмикронных пор, имели характерный линейный размер несколько десятков микрометров. Размер реструктурированных участков уменьшался по мере удаления от края таблетки (в сторону увеличения температуры), причем в центральной области таблетки они примыкали, как правило, к границам первичных зерен (рисунок 3.6 а).

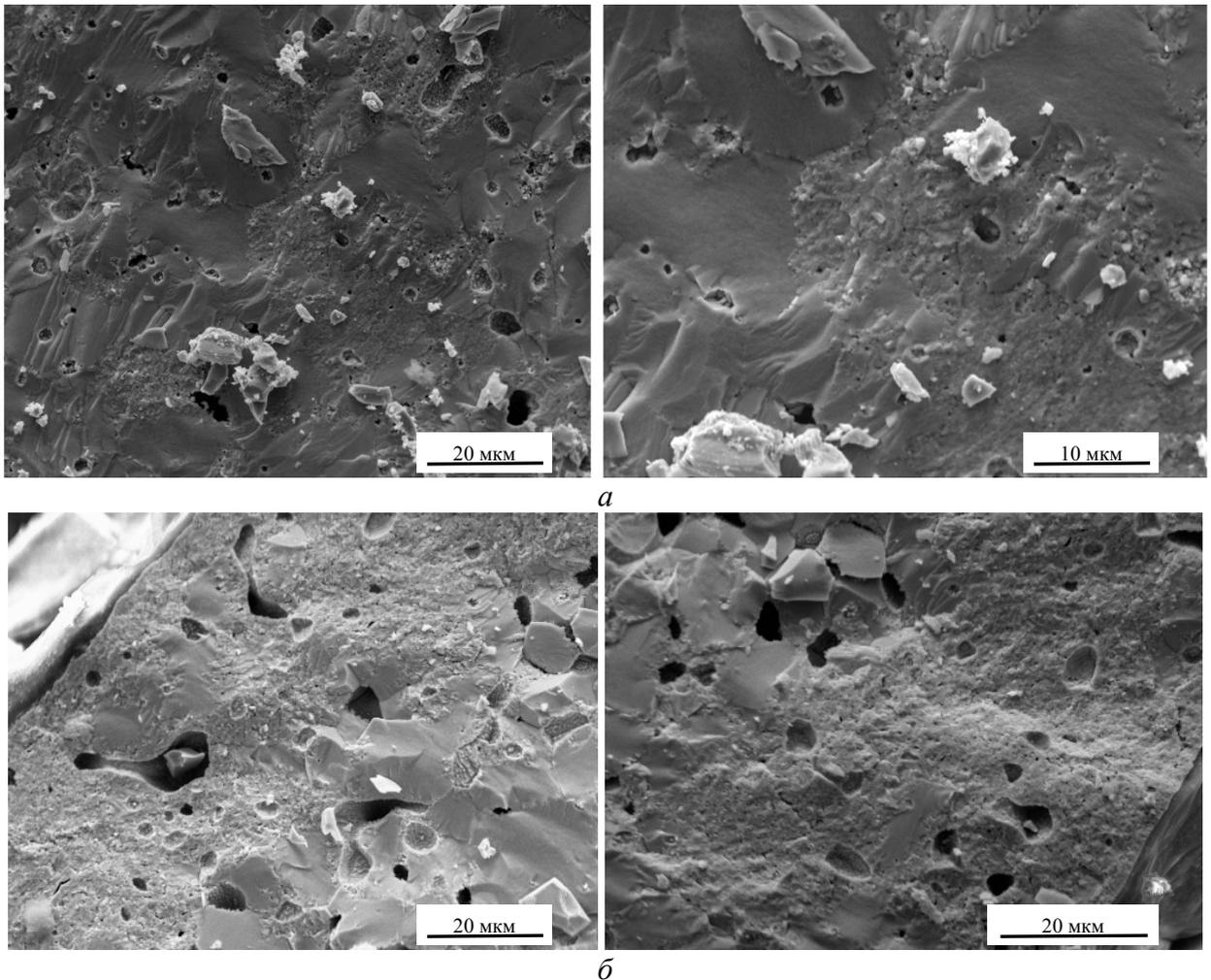


Рисунок 3.6 – Микроструктура реструктурированных областей на изломах в центральной (а) и краевой (б) зоне топливной таблетки

Для того чтобы сопоставить внешний вид пор на плоскости и в объёме материала получены изображения, на которых есть фрагменты микроструктуры поверхности шлифа и

излома топливной таблетки. На рисунке 3.7 можно видеть, что субмикронные поры, зафиксированные на поверхности шлифа с помощью оптического и сканирующего электронного микроскопов, входят в состав реструктурированной топливной матрицы, обнаруженной на изломе.

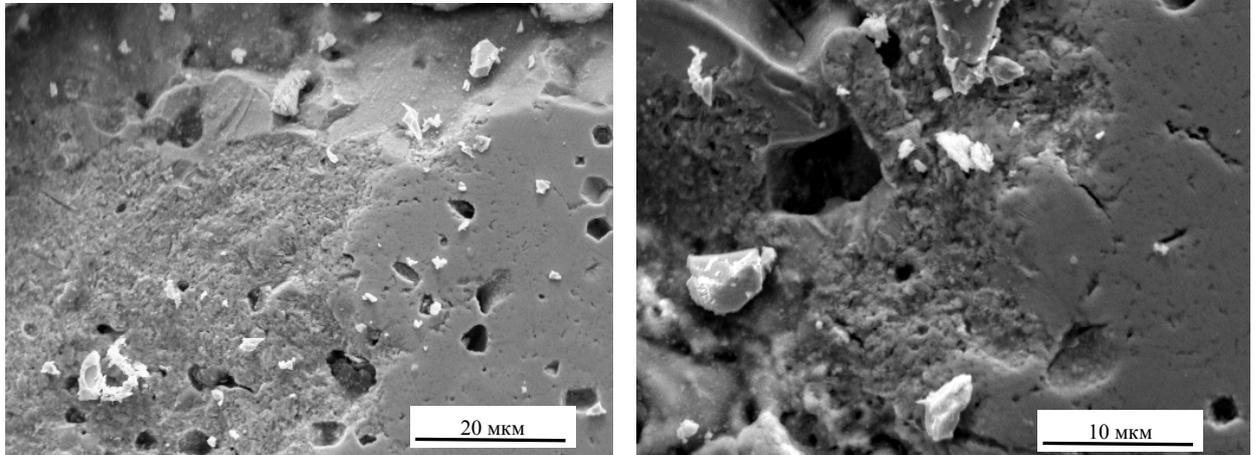


Рисунок 3.7 – Пример микроstructures топлива у края топливной таблетки при различном увеличении

В структуре топлива наряду с зернами и фрагментами зерен, в которых произошла реструктуризация, имеются исходные зерна и фрагменты исходных зерен без признаков реструктуризации (рисунок 3.8 а) или с признаками начала реструктуризации (рисунок 3.8 б). Это подтверждает гетерогенный характер процесса, а также его начальную стадию при данном выгорании.

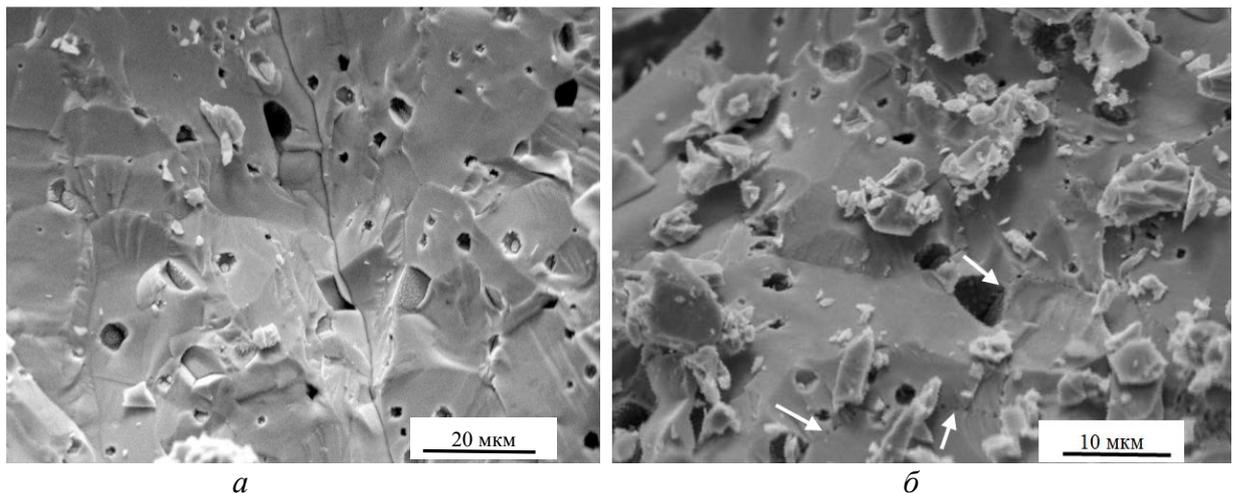
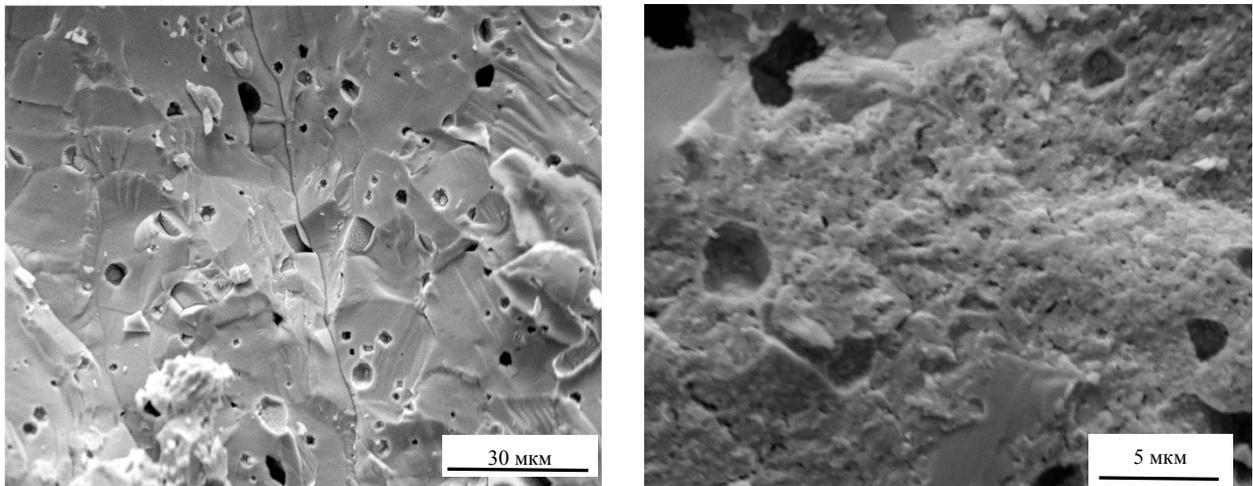


Рисунок 3.8 – Состояние микроstructures топлива на изломе: *а* – без признаков реструктуризации, *б* – с возможными признаками начала реструктуризации (стрелками показаны отдельные цепочки пор по границам зерен)

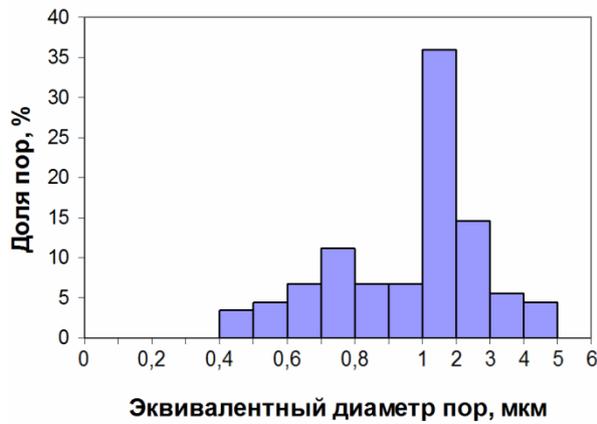
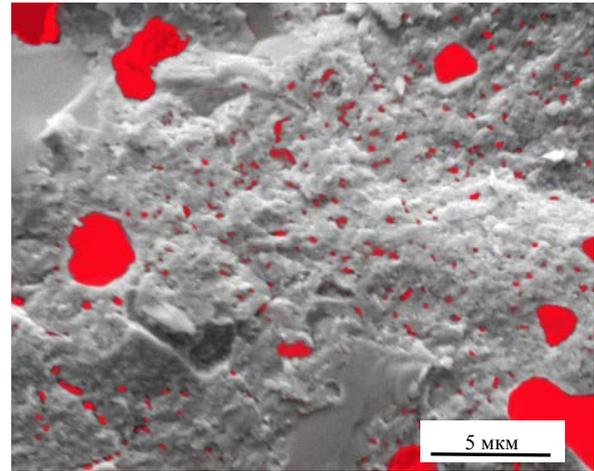
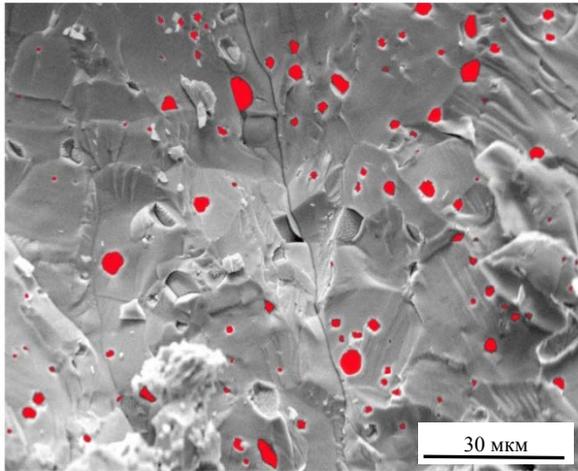
Численные значения, характеризующие процесс формирования пор при низкотемпературном облучении нитридного топлива, получены при проведении количественного анализа микроструктуры на реструктурированных участках топливной таблетки и участках без признаков реструктуризации. В качестве анализируемой величины был выбран эквивалентный диаметр поры, т.е. диаметр объекта круглой формы, площадь которого равна площади выделенной на изображении поры.

На рисунке 3.9 (а) представлен внешний вид двух участков на изломе топливной таблетки – без микроструктурных изменений (слева) и с реструктурированной топливной матрицей (справа). После выделения и определения диаметра пор с помощью программы ВидеоТест Структура 5.2 (рисунок 3.9 б) были построены гистограммы распределения пор по размерам (рисунок 3.9 в). Результаты, представленные на гистограммах, демонстрируют долю пор с определенным значением эквивалентного диаметра на исследуемом участке. Очевидное отличие в характере распределения пор по размерам в двух рассмотренных областях заключается в следующем: диаметр пор на участке без признаков реструктуризации изменяется от 0,4 до 5 мкм, тогда как основная доля пор на участке реструктурированной топливной матрицы имеет эквивалентный диаметр менее 0,4 мкм.

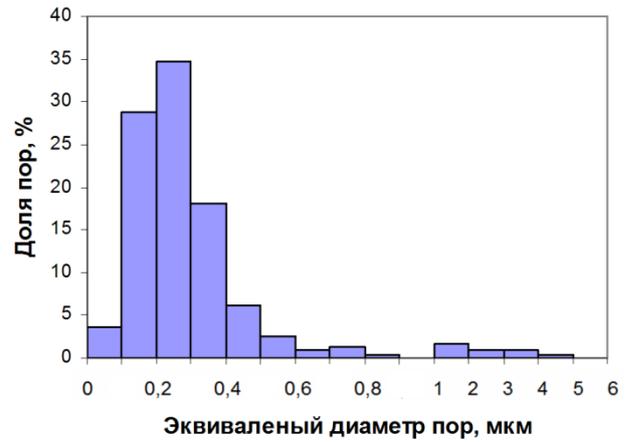


a

Рисунок 3.9 – Изображение микроструктуры топлива (а), результат выделения пор на изображении (б) и распределение пор по размерам (в) на изломе топливной таблетки без признаков реструктуризации (слева) и в реструктурированной области (справа)



б



в

Рисунок 3.9, лист 2

Крупные технологические поры находились в окружении реструктурированной матрицы, а на поверхности таких пор обнаружены субмикронные зерна (рисунок 3.10). При проведении количественного анализа микроструктуры поверхности крупной технологической поры была проведена оценка размеров субзерен (рисунок 3.11). Размер субзерен находится в интервале от 0,3 до 0,8 мкм.

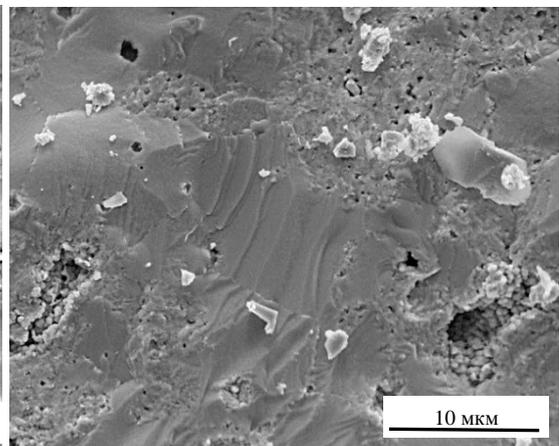
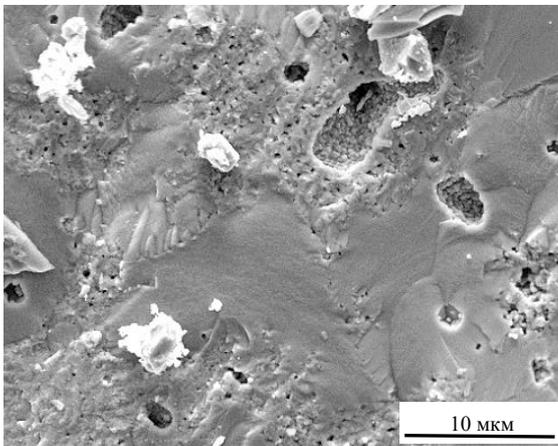


Рисунок 3.10 - Микроструктура топлива на изломе – изолированные поры, окруженные реструктурированной матрицей [65]

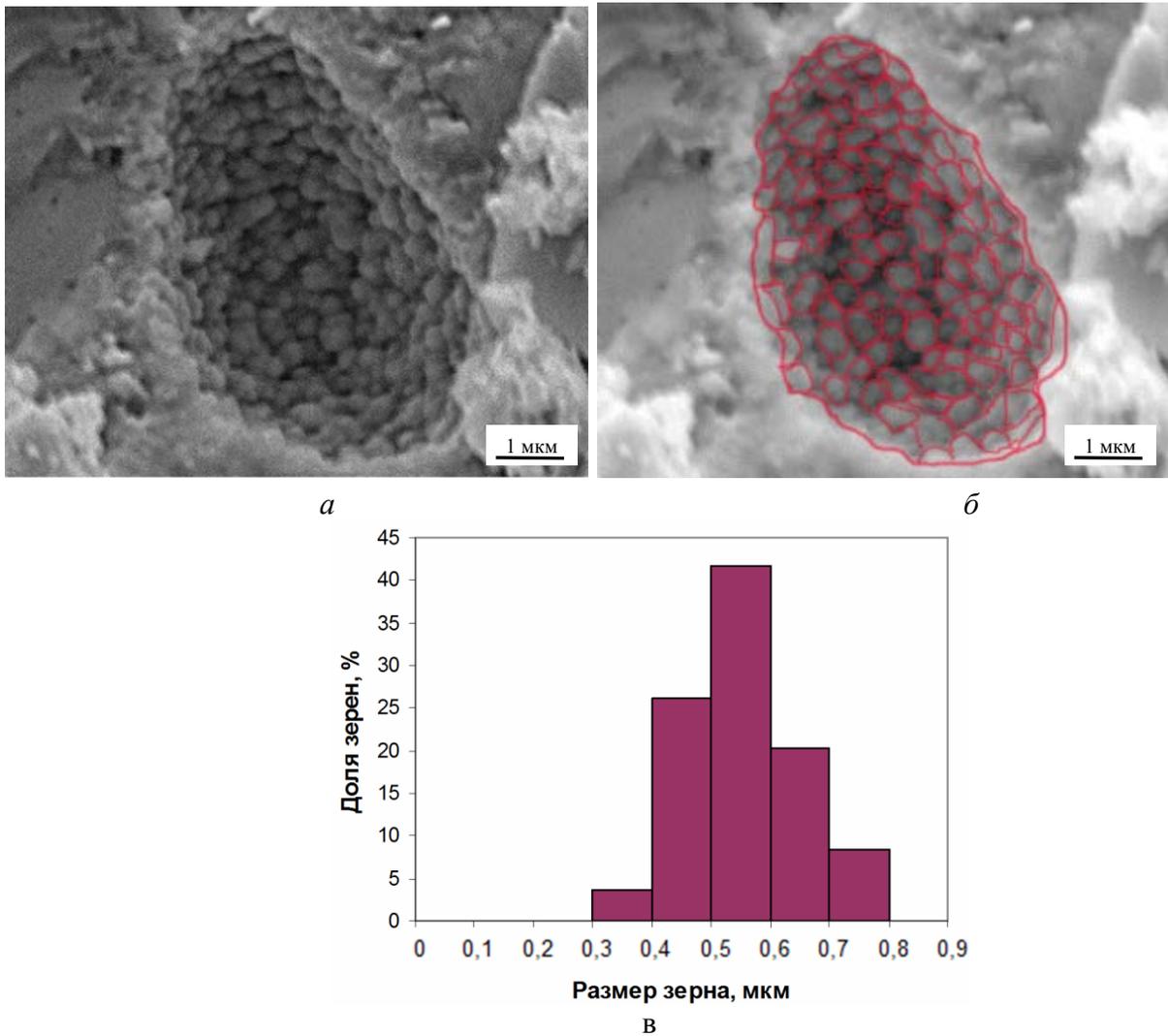


Рисунок 3.11 – Изображение микроструктуры поверхности технологической поры (а), результат выделения субзерен на изображении (б) и гистограмма распределения субзерен по размерам (в) [65]

При проведении исследований микроструктуры топлива не обнаружено газовых пор, формирование которых обусловлено выходом газообразных продуктов деления из матрицы топлива в результате термически активируемых диффузионных процессов. Кроме того, не наблюдалось открытой (связанной) пористости, обуславливающей выход газообразных продуктов деления из топлива в свободный объём твэла. Эти наблюдения коррелируют с экспериментальными данными по количеству и составу газовой фазы под оболочкой твэлов, полученными методом прокола и масс-спектрометрического анализа, в соответствии с которыми выход газообразных продуктов деления составлял менее одного процента от образовавшегося количества.

Для объяснения особенностей микроструктуры, обнаруженных на шлифах и изломах таблеток СНУП топлива после облучения до максимального выгорания 5,5 % т.а., были проведено исследование элементного состава топливной композиции.

3.2. Результаты исследований элементного состава топливной композиции

В результате деления атомов урана и плутония образовывалось большое количество новых химических элементов, состояние которых в топливной матрице было обусловлено их химическими свойствами и температурными условиями облучения, а накопленное их количество – степень выгорания топлива. По данным гамма-сканирования не наблюдали миграцию продуктов деления по длине твэлов с жидкометаллическим подслоем (рисунок 3.12).

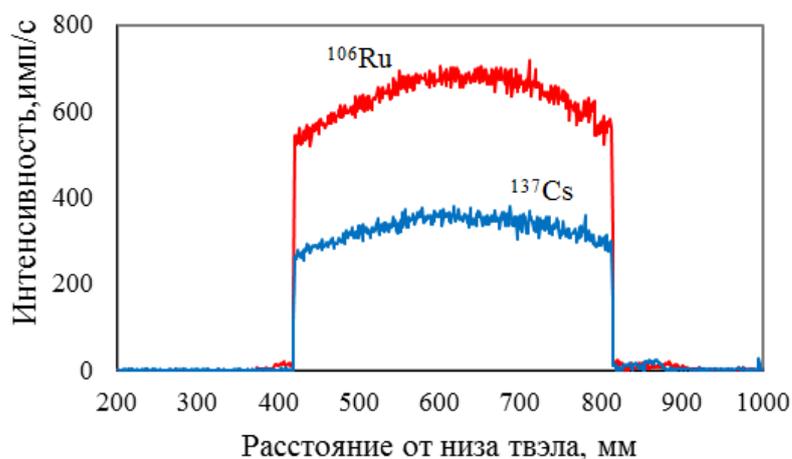


Рисунок 3.12 – Типичное распределение интенсивности излучения продуктов деления по длине твэла с жидкометаллическим подслоем

Результаты исследований элементного состава после первых двух этапов облучения (до максимального выгорания 4 % т.а.) свидетельствовали о гомогенном распределении урана и плутония и об отсутствии выхода продуктов деления из топлива. Облученное топливо представляло собой многокомпонентный твердый раствор на основе моноснитрида урана и плутония с растворенными продуктами деления. Измерения количества ксенона и криптона под оболочкой твэлов показали, что относительный выход газообразных продуктов деления из топлива в свободный объем твэла составил 0,1 %.

При изучении топливной композиции, облученной до максимального выгорания 5,5 % т.а., были получены карты распределения продуктов деления и компонентов топлива (рисунок 3.13). Более светлым областям на изображениях соответствовали более высокие концентрации исследуемых элементов. Уран, плутоний, а также продукты деления Zr, Nd, Cs распределены по сечению равномерно. Крупные выделения неправильной формы образует Тс. Рутений и молибден находятся как в твердом растворе, так и в виде включений самостоятельных фаз.

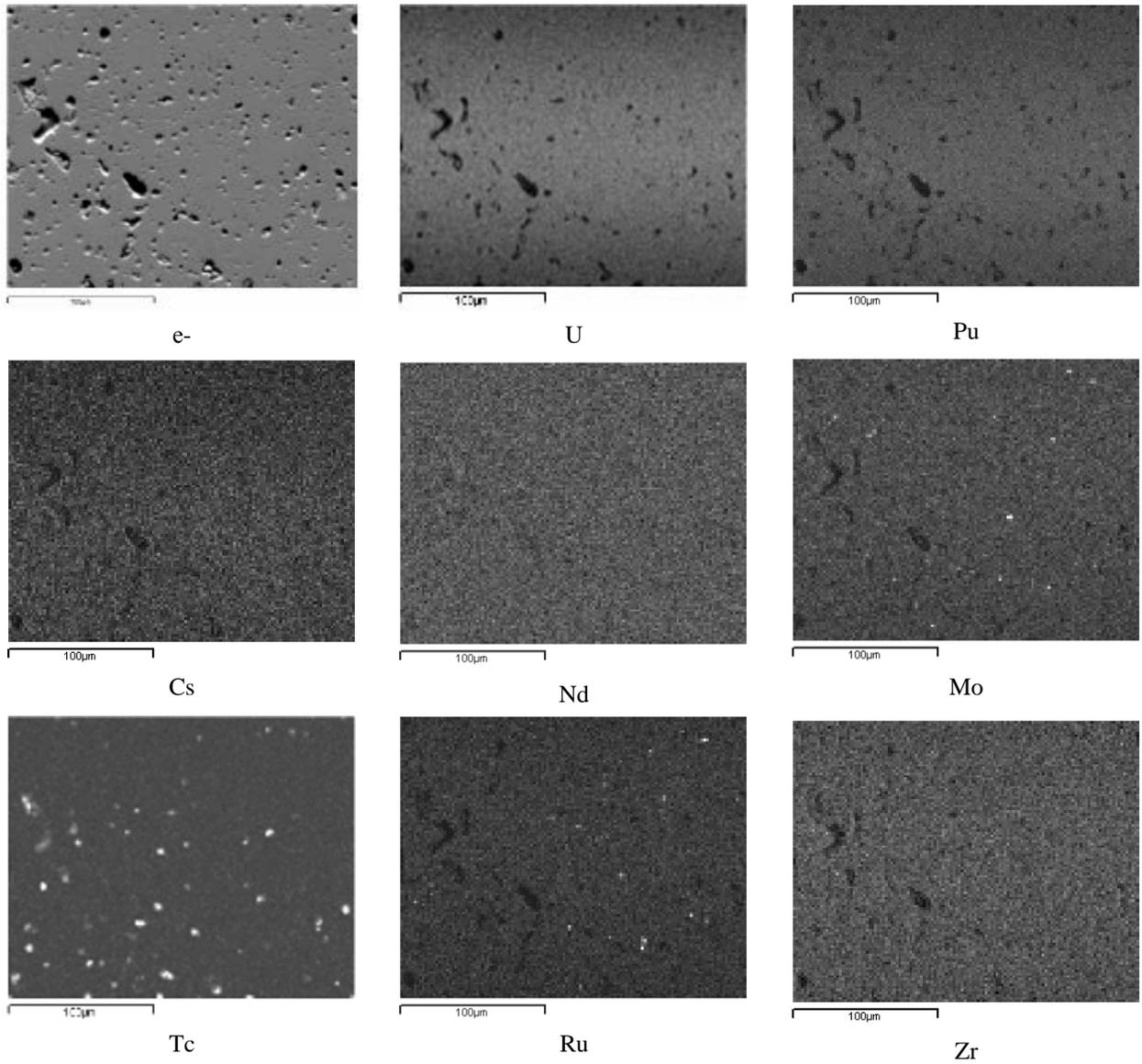


Рисунок 3.13 – Изображение в обратноотраженных электронах и карты распределения элементов в центре топливной таблетки после облучения до выгорания 5,5 % т.а

Методом электронно-зондового рентгеноспектрального микроанализа было исследовано распределение компонентов топлива и продуктов деления вдоль радиуса топливной таблетки. Массовая доля продуктов деления, усредненная по маршруту сканирования и расчетное содержание исследуемых элементов представлены в таблице 3.1.

Таблица 3.1 – Содержание основных продуктов деления в топливной композиции (мас. %)

Элемент	Локальное выгорание 4 % т.а., (расстояние от низа топливного столба 25 мм, 550 °С)		Локальное выгорание 5,5 % т.а., (расстояние от низа топливного столба 220 мм, 850 °С)	
	Среднее (по радиусу) значение	Расчетное количество [68]	Среднее (по радиусу) значение	Расчетное количество [68]
Mo	0,27±0,06	0,3372	0,26±0,05	0,4637
Xe	0,46±0,05	0,4885	0,60±0,05	0,6718
Cs	0,42±0,05	0,4332	0,52±0,04	0,5956
Nd	0,39±0,06	0,3646	0,56±0,05	0,5013

Из таблицы 3.1 видно, что в нижнем сечении твэла (на расстояние 25 мм от низа топливного сердечника) при температуре в центре топливной таблетки 550 °С и выгорании 4 % т.а. содержание исследованных продуктов деления в твердом растворе монокристалла соответствует расчетному количеству. Основное количество ксенона и цезия при выгорании 4 % т.а. находится в матрице топлива. Выход в технологические поры происходил по атермическому механизму и составил 6 % для ксенона и 3 % для цезия. Полученные результаты согласуются с данными по распределению ксенона и цезия в твэле с жидкометаллическим подслоем ОУ-4: выход из твердого раствора ксенона и цезия при достигнутом выгорании 3,9 % т.а. составил 10 и 6 %, соответственно (рисунок 3.14).

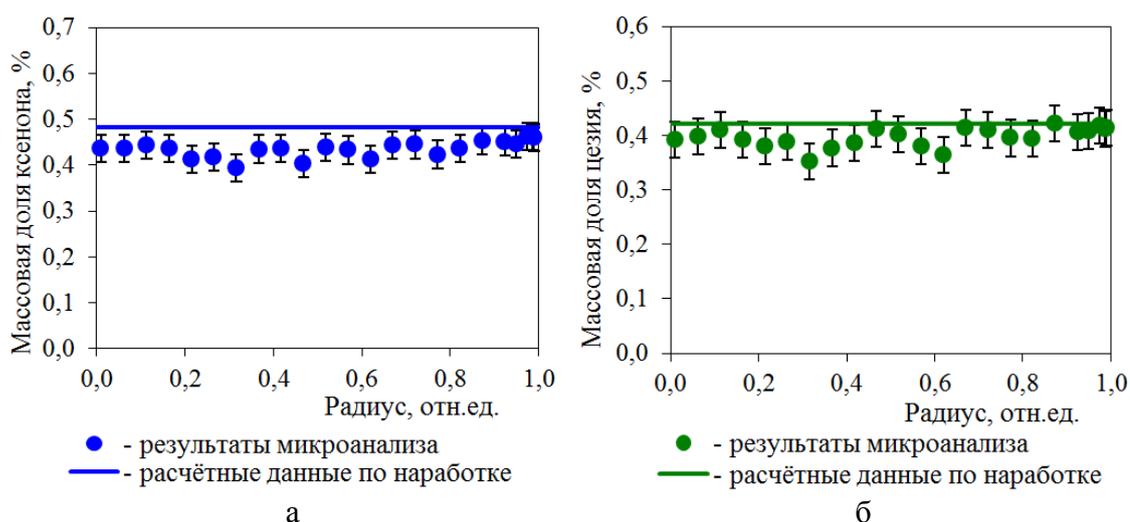


Рисунок 3.14 – Распределения ксенона (а) и цезия (б) вдоль радиуса топливного сердечника после облучения до выгорания 3,9 % т.а. [66]

При более высоких значениях температуры (850 °С) и выгорания (5,5 % т.а.), соответствующих центральной части топливного сердечника (220 мм от низа топливного сердечника), среднее по радиусу топливной таблетки содержание молибдена и цезия ниже

расчетного значения, что указывает на выход этих элементов из твердого раствора мононитрида (таблица 3.1) и подтверждает литературные данные, согласно которым с ростом температуры и выгорания продукты деления с низкой растворимостью в кристаллической решетке уран-плутониевого мононитрида стремятся покинуть матрицу топлива [3, 50]. В условиях низкотемпературного облучения нитридного топлива предел растворимости таких продуктов деления, как молибден, цезий, технеций, рутений наступает при выгорании от 4 до 5 % т.а.

Для объяснения причин формирования субмикронных пор и зерен, обнаруженных на шлифах и изломах топливной таблетки после облучения до выгорания 5,5 % т.а., были проведены дополнительные электронно-зондовые рентгеноспектральные исследования с целью определения содержания ксенона в различных структурных составляющих топлива. При обнаружении пористости, которая по внешнему признаку не являлась технологической, получали электронно-микроскопическое изображение интересующей области шлифа, проводили количественный электронно-зондовый микроанализ по точкам и получали карты распределения ксенона в этой области. Для сравнения было измерено локальное содержание ксенона на участках топлива с неизменной структурой. Полученное значение оказалось близко к расчётным данным по наработке ксенона при облучении (0,6718 % при выгорании 5,5 % т. а.). Расчёт проводили в приближении, что делящимся нуклидом является ^{239}Pu , данные по выходу изотопов ксенона при делении ^{239}Pu на быстрых нейтронах взяли из базы данных [68]. В местах скопления мелких пор на всех исследованных участках содержание ксенона в матрице топлива меньше наработанного за время облучения количества.

В качестве примера на рисунке 3.15 представлены изображения поверхности шлифа с реструктурированными участками топлива у края и в центре топливной таблетки, карты распределения ксенона на исследуемой поверхности и распределение ксенона вдоль линии сканирования. Более темные участки на карте распределения ксенона свидетельствовали о пониженном его содержании. Расположение таких участков идентично расположению областей с обнаруженной мелкой пористостью. Массовая доля ксенона вдоль линии сканирования на участках с неизменной структурой соответствовала накопленному за время облучения количеству (пунктирная линия на изображении 3.15 в) и уменьшалась на участках с характерной пористостью. Это свидетельствовало о выходе ксенона из матрицы топлива в поры, т.е. на участки, где при данных условиях анализа он не мог быть зарегистрирован.

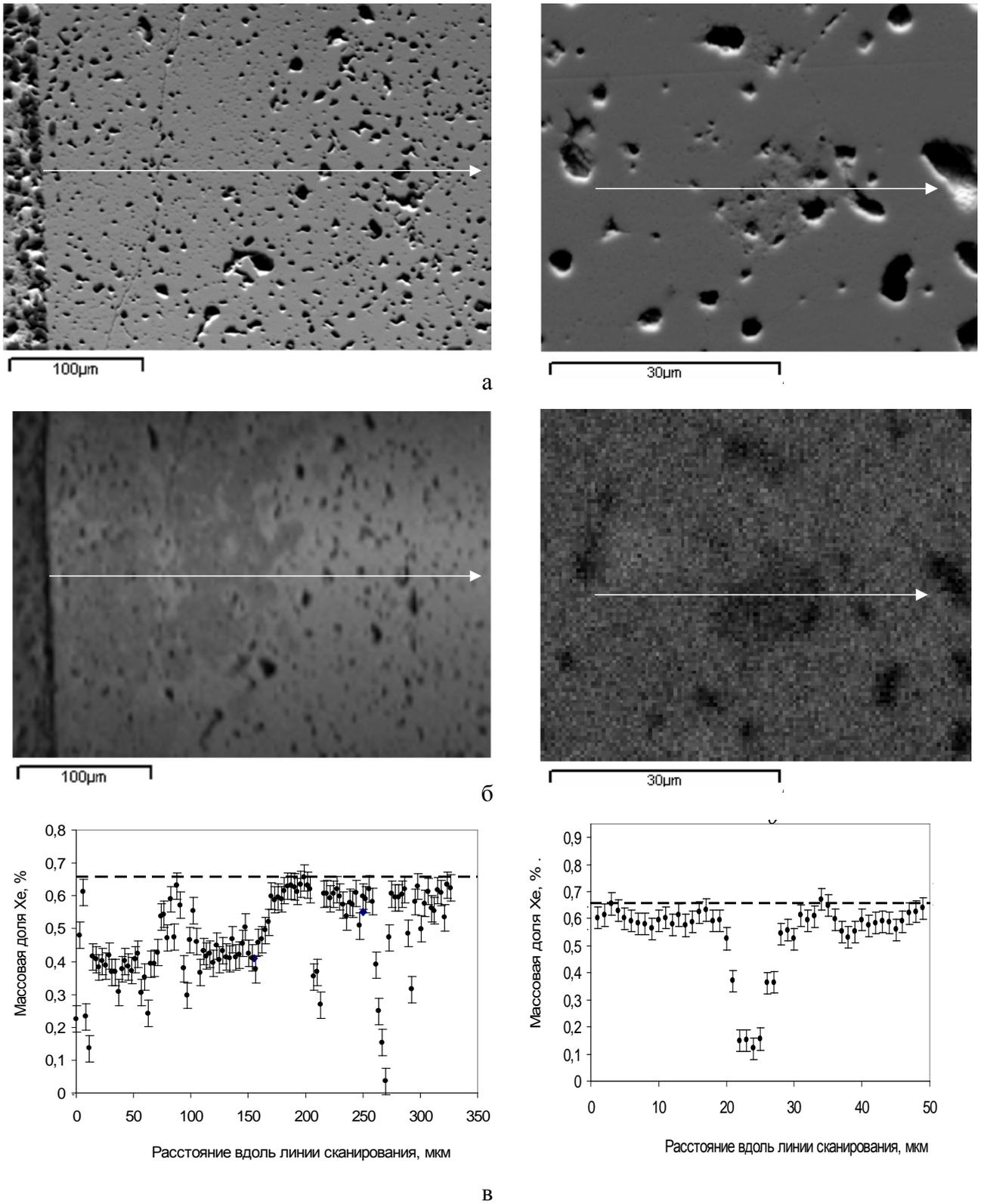


Рисунок 3.15 – Изображение микроструктуры топлива (а) у края (слева) и в центре (справа) топливной таблетки, карты распределения ксенона на этих участках (б) и распределение ксенона вдоль линии сканирования (в) [65]

Карта распределения ксенона на изломе топливной таблетки (рисунок 3.16) также показывает сниженное содержание этого элемента в реструктурированной области.

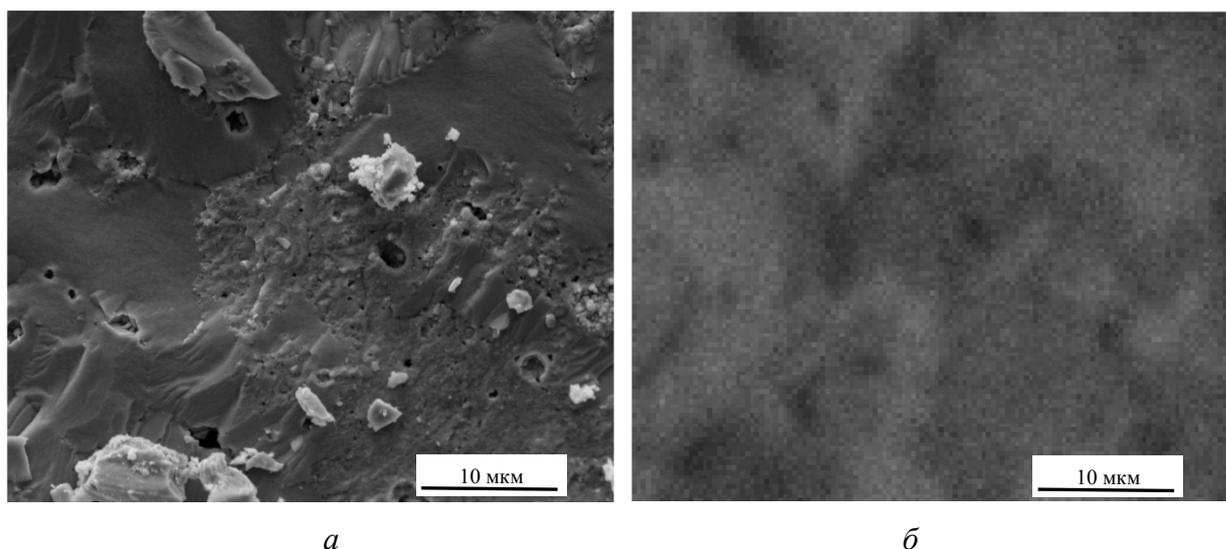


Рисунок 3.16 – Микроструктура топлива на изломе в центре топливной таблетки (а) и карта распределения ксенона в этой области (б)

Таким образом, результаты исследования микроструктуры и элементного анализа уран-плутониевого нитридного топлива, облученного до выгорания 5,5 % т.а, показали, что пониженное содержания ксенона в матрице топлива может быть обусловлено его выходом из топлива в образовавшиеся поры размером менее 1 мкм.

Поскольку рабочая температура уран-плутониевого нитридного топлива, облученного в составе твэлов со свинцовым подслоем, не превышала 870 °С, протекание термически активируемой диффузии ксенона с образованием газонаполненных пор внутри и на границе зерен за время облучения невозможно. Это означает, что имел место другой механизм формирования мелкой пористости, сопровождающийся уменьшением количества ксенона в матрице топлива. Известно, что явление, подобное обнаруженному, наблюдалось в топливе легководных реакторов из диоксида урана при облучении в интервале температуры 400-800 °С и превышении определенного порогового значения выгорания, зависящего от температуры (рисунок 3.17). В низкотемпературной (краевой) зоне топливных таблеток UO_2 происходила реструктуризация топлива, признаками которой являлись [658-70]:

- образование субзерен в пределах исходного зерна;
- уменьшение количества ГПД в матрице реструктурированного топлива;
- образование пористости в реструктурированных участках топлива.

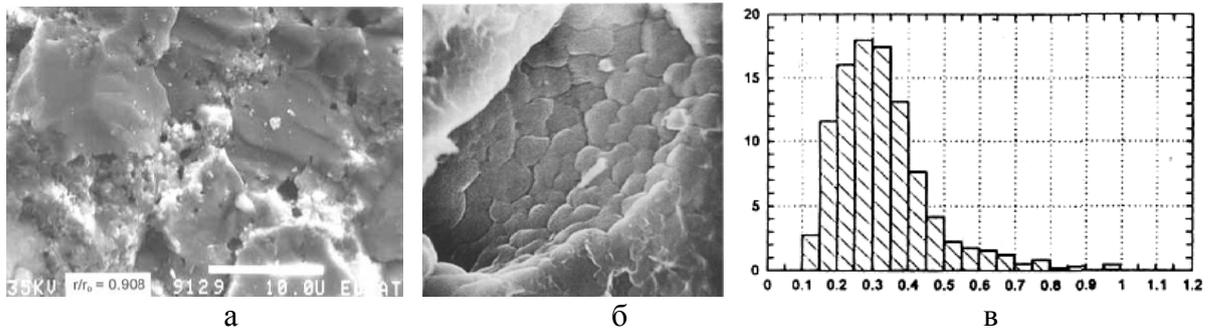


Рисунок 3.17 – Микроструктура топлива на изломе в краевой области топливной таблетки UO_2 (а), структура субзерен на поверхности крупной поры (б) и гистограмма распределения субзерен по размерам (в) [68-70]

Изменение состояния топлива в краевой зоне топливных таблеток UO_2 проходило в несколько фаз. В течение первой (инкубационной) фазы, в кристаллической решетке UO_2 происходит накопление радиационных дефектов, вторичного плутония и продуктов деления, в том числе ксенона. Вторая фаза связана с гетерогенным процессом зарождения реструктурированных микрообластей, их дальнейшим ростом, объединением и формированием полностью реструктурированной зоны, представлявшей собой совокупность газонаполненных пор диаметром около 1 мкм, окруженных новыми мелкими зернами размером 200-400 нм.

Полученные в настоящей работе результаты свидетельствовали о наличии признаков реструктуризации нитридного топлива, облученного при температуре в центре таблетки не превышающей 870 °С до выгорания 5,5 % т.а., подобных признакам реструктуризации оксидного топлива в краевой зоне топливных таблеток в твэлах легководных реакторов.

3.3 Кристаллическая структура топливной композиции после облучения

Рентгеноструктурные исследования проводили после каждого этапа облучения на специально подготовленных образцах из нескольких сечений по высоте твэлов. На полученных рентгенограммах проиндцированы все линии кубической структуры UPuN структурного типа $Fm\bar{3}m$. Форма и ширина линий нитрида свидетельствовали о гомогенном распределении урана и плутония в кристаллической решетке. Кроме того, зафиксированы линии, соответствующие фазе $\text{Fe-}\alpha$, что закономерно, поскольку оболочка твэла – сталь феррито-мартенситного класса (ЭП-823). Изменение температуры и выгорания по высоте твэла существенно не влияло на вид рентгенограмм, положение максимумов было одинаковым для всех сечений. В качестве примера на рисунке 3.18 представлена рентгенограмма образца из центрального сечения твэла после третьего этапа облучения.

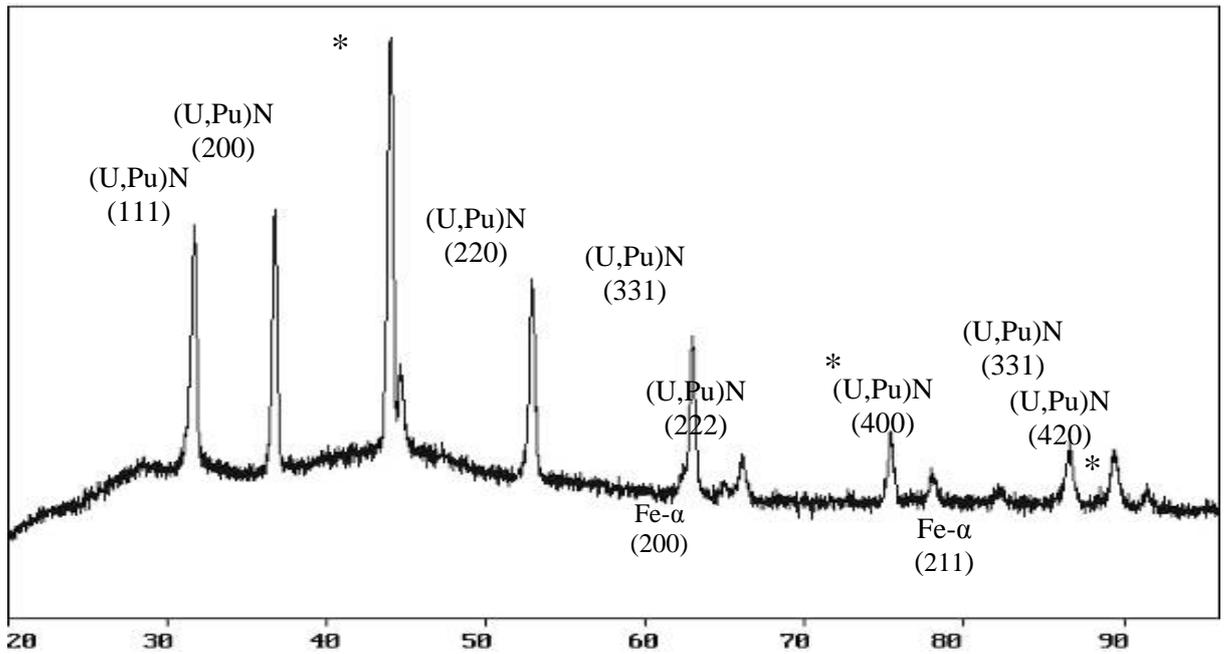


Рисунок 3.18 – Рентгенограмма образца, из центрального сечения твэла с $U_{0,82}Pu_{0,18}N$ топливом после облучения до выгорания 5,5 % т.а. (* – дифракционные максимумы алмаза)

Кристаллическая решетка уран-плутониевого нитридного топлива сохраняла гранцентрированную сингонию, однако происходило изменение параметра кристаллической решетки на протяжении всего времени облучения. Расчетное значение ПКР $U_{0,82}Pu_{0,18}N$, изменение ПКР ($\Delta a/a_0$, где a_0 , a – параметр кристаллической решетки топлива до и после облучения), локальное выгорание и интервал рабочих температур топливного сердечника в зависимости от расположения исследованного сечения по высоте твэла приведены в таблице 3.2.

Таблица 3.2 – Изменение параметра кристаллической решетки $U_{0,82}Pu_{0,18}N$ с ростом выгорания

Локальное выгорание, % т.а.	Максимальная температура ТС, °С	Расстояние от низа ТС, мм	ПКР, нм	Изменение ПКР, %	Скорость изменения ПКР, %/1 % выгорания
2,2	860	250	$0,4896 \pm 0,0001$	$0,080 \pm 0,003$	$0,04 \pm 0,01$
2,7	870	380	$0,4896 \pm 0,0001$	$0,080 \pm 0,003$	$0,03 \pm 0,01$
3,1	870	380	$0,4897 \pm 0,0001$	$0,100 \pm 0,003$	$0,03 \pm 0,01$
3,8	550	30	$0,4900 \pm 0,0001$	$0,160 \pm 0,003$	$0,04 \pm 0,01$
3,9	870	250	$0,4898 \pm 0,0001$	$0,120 \pm 0,003$	$0,03 \pm 0,01$
4,0	870	360	$0,4898 \pm 0,0001$	$0,120 \pm 0,003$	$0,03 \pm 0,01$
4,0	550	30	$0,4900 \pm 0,0001$	$0,160 \pm 0,003$	$0,04 \pm 0,01$
5,5	870	225	$0,4901 \pm 0,0001$	$0,180 \pm 0,003$	$0,03 \pm 0,01$

В исследованном диапазоне выгораний происходило монотонное увеличение ПКР $U_{0,82}Pu_{0,18}N$ от исходного значения $0,4892 \pm 0,0001$ нм для необлученного топлива до $0,4901$ нм для топлива после облучения (при выгорании 5,5 % т.а.). На рисунке 3.19 показано изменение параметра кристаллической решетки $U_{0,82}Pu_{0,18}N$ с ростом выгорания.

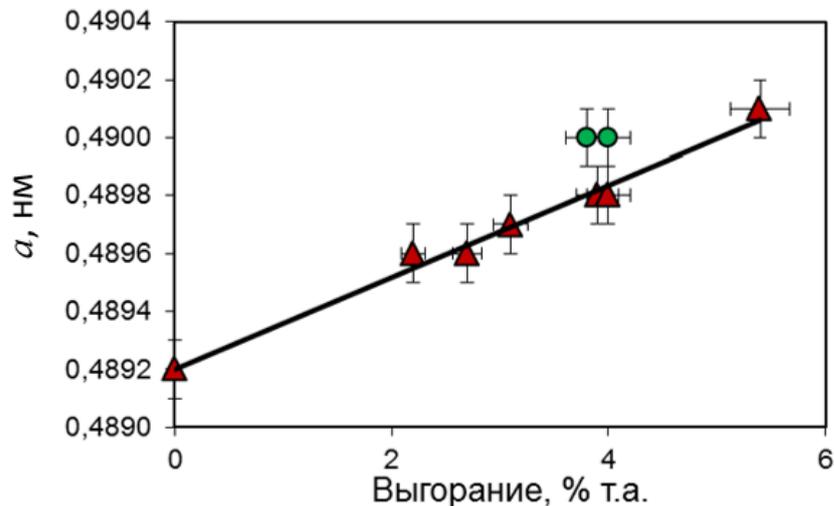


Рисунок 3.19 – Изменение параметра кристаллической решетки $U_{0,82}Pu_{0,18}N$ с ростом выгорания (● – для образцов из нижних сечений твэлов с температурой в центре топливного сердечника 550 °C; ▲ – для образцов из центральных и верхних сечений твэлов с температурой в центре топливного сердечника $860-870$ °C) [71]

Отклонение двух значений ПКР на рисунке 3.19 обусловлено различием рабочей температуры топлива для верхних и нижних сечений твэла (рисунок 2.2 б). Таким образом, при температуре топливного сердечника от 860 до 870 °C (верхняя часть твэла) средняя скорость увеличения ПКР составляла $0,03 \pm 0,01$ %/ % выгорания. Средняя скорость увеличения ПКР при температуре топливного сердечника около 550 °C (нижняя часть твэла) составляла $0,04 \pm 0,01$ %/ % выгорания. Известно, что основными причинами, вызывающими изменения ПКР ядерного топлива, являются изменение химического состава или стехиометрии топлива, растворение продуктов деления в кристаллической решетке топлива, а также накопление радиационных дефектов. В керамическом топливе накопление радиационных дефектов увеличивает значение ПКР (тем больше, чем меньше температура при работе твэла) [48]. Изменение ПКР за счет внедрения атомов ПД в свободные узлы (вакансии) кристаллической решетки топлива может происходить как в большую, так и в меньшую сторону в зависимости от атомного радиуса элемента ПД. В случае, когда освободившиеся в результате деления узлы кристаллической решетки $UPuN$ занимают элементы, атомный радиус которых больше радиуса исходных атомов, происходит увеличение объема элементарной ячейки и, соответственно, ПКР, и наоборот. В таблице 3.1 было показано, что в нижнем сечении твэла при температуре в

центре топливной таблетки $550\text{ }^{\circ}\text{C}$ и выгорании 4 % т.а. образовавшиеся продукты деления находились в твердом растворе матрицы топлива. При увеличении температуры до $870\text{ }^{\circ}\text{C}$ и выгорания – до 5,5 % т.а., происходил выход части ПД и образование самостоятельных конденсированных или газовых фаз. К таким продуктам деления относился, например, цезий, имеющий большой атомный радиус (таблица 1.3), внедрение которого в кристаллическую решетку UPuN , приводило к большому ее искажению и соответствующему вкладу в увеличение ПКР. Выход цезия из твердого раствора, напротив, должен снижать скорость увеличения объема (и параметра) кристаллической решетки матрицы топлива. Этими обстоятельствами объясняется отличие скорости изменения ПКР в разных температурных диапазонах.

3.4 Выводы по главе 3

При исследовании структуры и элементного состава топливной композиции $\text{U}_{0,82}\text{Pu}_{0,18}\text{N}$, облученной при температуре от 550 до $870\text{ }^{\circ}\text{C}$, в зависимости от достигнутого выгорания было обнаружено два характерных типа микроструктуры топлива, коррелирующие с поведением газообразных продуктов деления.

Для первого типа, соответствующего выгоранию топлива до 4 % т.а. включительно, микроструктура облученного топлива не имела существенных отличий от структуры топливной композиции до облучения, продукты деления были распределены в топливной матрице равномерно. Выход газообразных и летучих продуктов деления в технологические поры происходил по атермическому механизму и не превышал 10 % для ксенона и 6 % для цезия. Таким образом, малая диффузионная подвижность продуктов деления и структурная стабильность топливной композиции в условиях низкотемпературного облучения за счет введения жидкометаллического подслоя были подтверждены экспериментально и согласовывались с литературными данными.

Изменение микроструктуры уран-плутониевого нитридного топлива при достижении выгорания 5,5 % т.а. заключалось в формировании субзёренной структуры и образовании пор размером менее 1 мкм, которое сопровождалось перераспределением газообразных продуктов деления и выходом ксенона из твёрдой фазы.

Из-за низкой рабочей температуры топлива образование газонаполненных пор не могло быть следствием термически активируемого процесса диффузии газообразных продуктов деления. Полученные результаты свидетельствуют о наличии признаков реструктуризации нитридного топлива при низкотемпературном облучении в твэлах с жидкометаллическим наполнением, подобных признакам реструктуризации оксидного топлива в краевой зоне таблеток в твэлах легководных реакторов.

Состояние нитридного топлива характеризуется, как частично реструктурированное: наряду с участками топлива, содержащими зоны реструктуризации, существовали области топлива без признаков реструктуризации, что характерно для гетерогенного процесса и свидетельствует о его начальной стадии при данном выгорании.

Исходный тип ГЦК-кристаллической структуры твердого раствора $U_{0,82}Pu_{0,18}N$ после облучения сохранился, но наблюдалось увеличение параметра кристаллической решетки на протяжении всего периода облучения. Скорость увеличения параметра кристаллической решетки нитридного топлива зависела от рабочей температуры топливного сердечника и коррелировала с содержанием продуктов деления в твердом растворе топливе. При температуре $550\text{ }^{\circ}\text{C}$ и выгорании около 4 % т.а. продукты деления находились в твердом растворе матрицы топлива, и средняя скорость увеличения ПКР составляла 0,04 %/% выгорания. С ростом температуры и выгорания до значений $860\text{--}870\text{ }^{\circ}\text{C}$ и 5,5 % т.а., соответственно, происходило снижение средней скорости изменения ПКР до 0,03 %/% выгорания, что было обусловлено выходом части продуктов деления из твердого раствора матрицы топлива, а также отжигом части радиационных дефектов. Таким образом, предел растворимости в кристаллической решётке $UPuN$ при низкотемпературном облучении таких продуктов деления, как цезий, молибден, технеций и рутений наступал при достижении выгорания около 4 % т.а.

Глава 4 Радиационное распухание нитридного топлива в условиях низкотемпературного облучения

В твэлах с жидкометаллическим заполнением зазора между топливом и оболочкой распухание топлива происходит преимущественно за счет увеличения объема твердой фазы, поскольку при относительно низкой рабочей температуре топлива, обеспечиваемой высокой теплопроводностью жидкого металла в зазоре, большая часть образовавшихся продуктов деления находится во внедренном состоянии в матрице топлива.

4.1 Изменение размеров топливного сердечника

Для оценки изменения диаметра топливного сердечника были проведены измерения его значений на изображениях шлифов поперечных сечений из нижней, центральной и верхней части по высоте твэлов после каждого этапа облучения (рисунок 4.1).

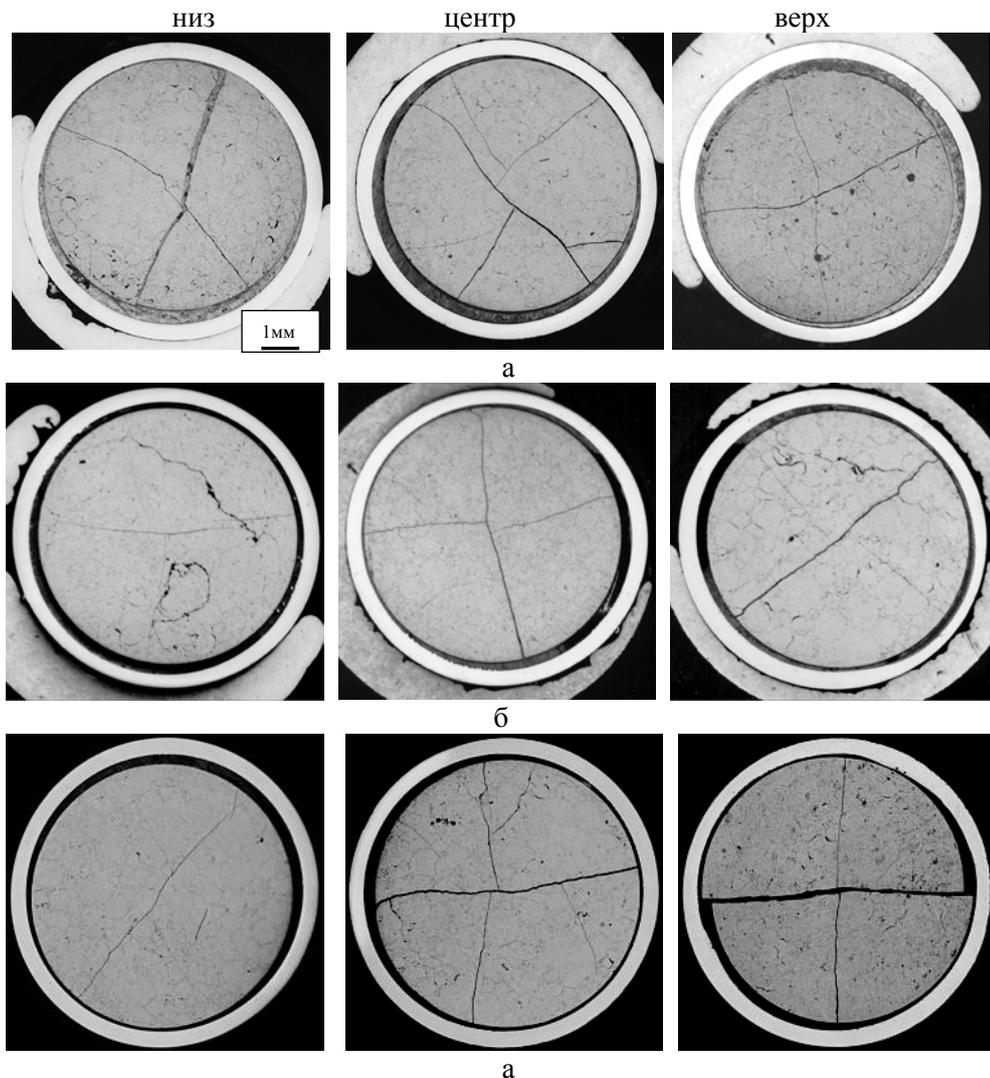


Рисунок 4.1 - Внешний вид поперечных сечений твэлов после облучения до выгорания 2,8 % т.а. (а), 4 % т.а. (б) и 5,5 % т.а. (в)

Полученные в результате измерений данные представлены в таблице 4.1, а также на рисунке 4.2 в виде графика зависимости диаметра таблеток от локального выгорания топлива в определенном сечении твэла. Определение диаметра топливных таблеток осуществляли двумя способами: по трём точкам, нанесённым на дугу крупных фрагментов таблетки в предположении, что поперечное сечение таблетки имеет форму круга, и по площади топливной таблетки (суммарной площади её фрагментов). Погрешность определения диаметра топливного сердечника составляет $\pm 0,04$ мм.

Таблица 4.1 – Диаметр топливного сердечника после облучения

Этап облучения	Максимальное выгорание, % т. а.	Расстояние от низа ТС, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Диаметр ТС, мм	
				Измерение по трём точкам	Измерение по площади топливной таблетки
1	2,8	10	2,0	7,89	7,88
		170	2,8	7,89	7,88
		195	2,8	7,90	7,89
		250	2,7	7,91	7,90
		350	2,1	7,90	7,88
2	4	10	3,1	7,92	7,91
		250	4,0	7,98	7,97
		380	3,3	7,94	7,93
3	5,5	5	3,6	7,97	7,96
		80	4,5	7,98	7,97
		200	5,3	8,03	8,04
		305	4,7	8,03	8,04
		380	3,9	7,93	7,92
		5	3,7	7,95	7,95
		80	4,7	8,02	8,01
		200	5,5	8,03	8,04
		305	4,9	8,1	8,0
		380	4,0	7,91	7,92

На рисунке 4.2 представлено изменение диаметра топливного сердечника в зависимости от локального в сечении твэла выгорания, а также разброс значений диаметра топливных таблеток до облучения в соответствии с их паспортными данными. Полученная экспериментальная зависимость увеличения диаметра топливного сердечника в результате облучения может быть описана функцией $y = a \cdot x^2 + b$, где $a = 0,0072$, $b = 7,85$. Физический смысл параметра b – среднее значение диаметра таблеток до облучения. При сохранении указанной

зависимости с ростом уровня выгорания контакт топлива с оболочкой в макетах ТВЭЛОВ данной конструкции произойдёт при выгорании около 9 % т.а.

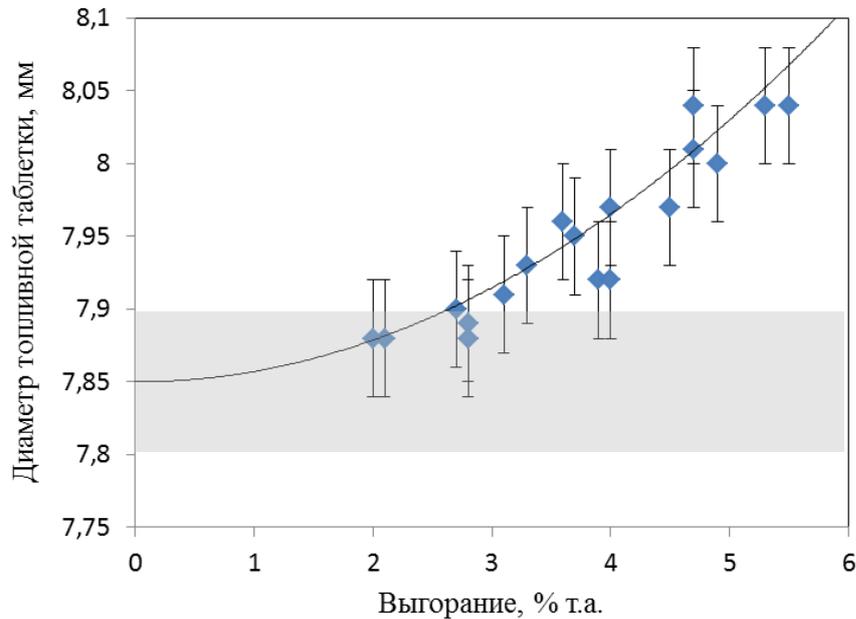


Рисунок 4.2 – Зависимость величины диаметра топливного сердечника от локального в сечении ТВЭЛА выгорания (серая полоса на изображении показывает разброс значений диаметра до облучения) [71]

Поскольку данная оценка скорости сокращения зазора между топливом и оболочкой проведена для ТВЭЛОВ после облучения и выдержки, для подтверждения полученного прогноза в рабочих условиях необходимо дополнительно оценить, как изменялась ширина зазора между топливным сердечником и оболочкой в результате термического расширения. Для этого были определены изменения радиуса топливного сердечника и внутреннего радиуса оболочки (ΔR):

$$\Delta R = \alpha \cdot R_0 \cdot (T - T_0), \quad (4.1),$$

где R_0 – исходный радиус, мм;

α – ТКЛР материала, $^{\circ}\text{C}^{-1}$;

T_0 и T – комнатная и рабочая температура, соответственно, $^{\circ}\text{C}$.

Подставив в формулу 4.1 исходный радиус топливного сердечника – 3,9 мм, значение комнатной температуры 20°C и средней по сечению топливной таблетки рабочей температуры топлива – 790°C , а также соответствующий этой температуре ТКЛР $\text{U}_{0,82}\text{Pu}_{0,18}\text{N}$ – $9 \cdot 10^{-6}^{\circ}\text{C}^{-1}$ (таблица 1.5), получили изменение радиуса топливного сердечника за счет термического расширения, равное 0,027 мм. Изменение радиуса внутренней поверхности оболочки ТВЭЛА составило 0,03 мм (с учетом радиуса до облучения – 4,2 мм, температуры оболочки – 530°C , ТКЛР стали ЭП-823 при рабочей температуре – $14 \cdot 10^{-6}^{\circ}\text{C}^{-1}$ [722]). Таким образом, в процессе облучения нитридного топлива в составе ТВЭЛОВ со свинцовым подслоем происходило увеличение ширины зазора вследствие большего термического расширения материала оболочки

твэла по сравнению с термическим расширением топлива. Однако увеличение зазора между топливом и оболочкой за счет термического расширения в рабочих условиях не превышало 10 мкм, т.е. находилось на уровне погрешности определения размеров топливного сердечника в холодном состоянии. Поэтому прогнозируемое изменение диаметра топливного сердечника при увеличении выгорания справедливо для описания состояния топливного сердечника в рабочих условиях.

Изменение размера топливного сердечника в аксиальном направлении было оценено по данным γ -спектрометрических исследований, которые позволили определить удлинение топливного сердечника после каждого этапа облучения. Было показано, что в результате облучения произошло увеличение длины топливного сердечника до 396 ± 2 мм, 395 ± 2 мм и 401 ± 1 мм после первого, второго и третьего этапов облучения до максимального выгорания 2,8; 4,0 и 5,5 % т.а. соответственно. Длина топливного сердечника до облучения составляла 390 ± 4 мм.

4.2 Изменение плотности топлива в результате облучения

Определение плотности уран-плутониевого нитридного топлива, облученного в составе твэлов со свинцовым подслоем, проводили после третьего этапа облучения в сечениях с максимальным локальным выгоранием.

Образцы представляли собой крупные фрагменты топливных таблеток, предварительно освобождённые от оболочек и очищенные химическим способом от остатков свинцового подслоя. Было выполнено по три измерения плотности пяти фрагментов топливных таблеток, результаты измерений представлены в таблице 4.2.

Полученные данные свидетельствует об уменьшении плотности топливной композиции по сравнению с исходным значением ($13,08\pm 0,07$ г/см³), что связано с увеличением объема топливного сердечника вследствие накопления и перераспределения продуктов деления в процессе облучения. Результаты оценки относительной величины распухания и его скорости будут представлены далее.

Таблица 4.2 – Результаты определения плотности топливных фрагментов, г/см³

Локальное выгорание, % т.а.	№ фрагмента	1 измерение	2 измерение	3 измерение	Среднее значение
5,2	1	11,99	12,00	11,98	12,26 \pm 0,06
	2	12,39	12,40	12,38	
	3	12,39	12,38	12,39	
5,4	1	12,34	12,34	12,34	12,28 \pm 0,14
	2	12,21	12,23	12,23	

4.3 Распухание уран-плутониевого нитридного топлива

Радиационное распухание уран-плутониевого нитридного топлива после низкотемпературного облучения было рассчитано по изменению геометрических характеристик топливного сердечника (таблица 4.3) и его плотности (таблица 4.4). При расчете распухания первым способом учитывали вклад от изменения диаметра и удлинения топливного сердечника в соответствии с формулой 2.5. Распухание топлива по изменению плотности было определено по формуле 2.6.

Таблица 4.3 – Результаты определения распухания по изменению геометрических характеристик топливного сердечника

Этап облучения	Расстояние от низа ТС, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Расчётная максимальная температура топлива, °С	Распухание, %	Средняя скорость распухания, % / % выгорания
1	10	2,0	550	2,1±0,3	1,1±0,2
	170	2,8	790	2,6±0,4	0,9±0,2
	195	2,8	820	2,8±0,5	1,0±0,2
	250	2,7	850	3,0±0,5	1,1±0,2
	350	2,1	865	2,1±0,6	1,0±0,2
2	10	3,1	550	2,7±0,9	0,9±0,2
	250	4,0	850	4,6±0,9	1,2±0,2
	380	3,3	860	3,1±0,6	0,9±0,2
3	5	3,6	545	5,2±0,8	1,4±0,2
	80	4,5	690	6,0±1,0	1,3±0,2
	200	5,3	820	8,3±1,4	1,6±0,3
	305	4,7	870	7,7±1,4	1,6±0,3
	380	3,9	860	4,0±0,7	1,0±0,2
	5	3,7	545	5,0±0,8	1,4±0,2
	80	4,7	690	7,2±1,2	1,5±0,3
	200	5,5	820	8,4±1,4	1,5±0,3
	305	4,9	870	6,9±1,2	1,4±0,2
	380	4,0	860	4,1±0,7	1,0±0,2

Таблица 4.4 – Результаты определения плотности и распухания топлива

Выгорание, % т.а.	Плотность, г/см ³		Расчётная максимальная температура топлива, °С	Распухание, %	Средняя скорость распухания, % / % выгорания
	Исходная	После облучения			
5,2	13,08±0,07	12,26±0,06	820	6,7±0,8	1,3±0,2
5,4		12,28±0,14		6,5±1,3	1,2±0,2

Значения распухания топлива в сечениях с локальным выгоранием от 5,2 до 5,4 % т.а., вычисленные по изменению плотности, согласуются с результатами, полученными по изменению геометрических характеристик топливного сердечника. Далее при обсуждении результатов использовали данные, полученные при оценке геометрических изменений топливного сердечника как более полные и представительные (таблица 4.3).

Анализ полученных данных показал, что в течение первых двух этапов облучения до выгорания 4 % т.а. скорость распухания топлива составляла от 0,9±0,2 до 1,4±0,2 %/% выгорания. С ростом выгорания скорость распухания увеличилась, и при выгорании от 4 до 5,5 % т.а. скорость распухания смешанного нитридного топлива составляла от 1,4±0,2 до 1,6±0,3 %/% выгорания. На рисунке 4.4 представлено изменение средней скорости распухания СНУП топлива после низкотемпературного облучения с ростом выгорания.

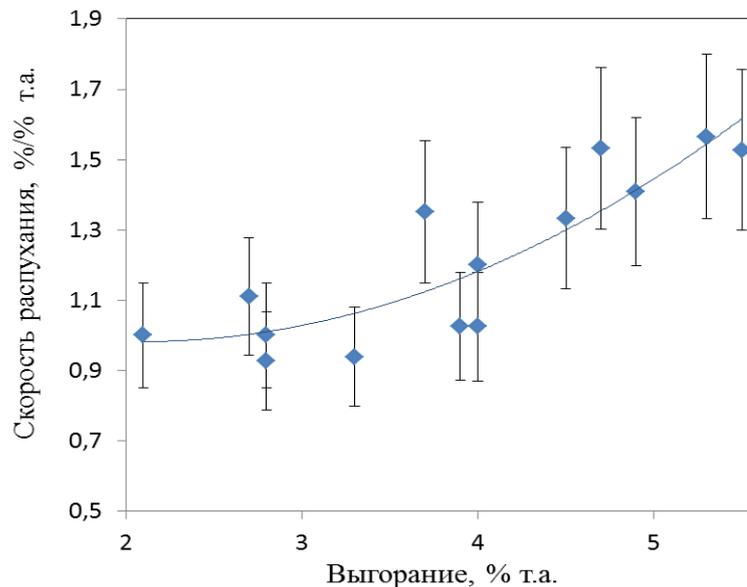


Рисунок 4.4 – Изменение средней скорости распухания топлива с ростом выгорания при температуре в центре топливного сердечника от 600 до 870 °С

Скорость распухания топливной композиции $U_{0,88}Pu_{0,12}N$, облученной в составе твэла со свинцовым подслоем ОУ-4 до максимального выгорания 3,9 % т.а., составила 1,4 %/% выгорания, что согласуется с представленными выше значениями.

4.4. Механизмы радиационного распухания нитридного топлива в условиях низкотемпературного облучения

Для определения механизмов распухания уран-плутониевого нитридного топлива при низкотемпературном облучении следует отметить, что в общем случае распухание топлива обусловлено изменением количества атомов вещества, которое сопровождается увеличением объема твердой фазы вследствие изменения параметра кристаллической решетки и образования вторых фаз («твердое» распухание); образованием и ростом газовых пор вследствие накопления и выделения газообразных продуктов деления («газовое» распухание). Кроме того, объем топливного сердечника может увеличиваться вследствие структурных изменений, проявляющихся в возникновении обширных трещин, которые происходят без участия образующихся осколков деления и обусловлены изменением физико-механических свойств материала топлива («механическое» распухание). Поскольку образование трещин в уран-плутониевом нитридном топливе при низкотемпературном облучении не привело к существенной фрагментации топливных таблеток и контакту топлива с оболочкой твэла, и, кроме того, при проведении планиметрических исследований был исключен вклад трещин в увеличение диаметра топливного сердечника, в дальнейшем речь пойдет о распухании, обусловленном только радиационными явлениями без учета «механической» составляющей.

В соответствии с теоретическими представлениями и на основании описанных в литературе экспериментальных данных (глава 1) состояние нитридного топлива при низкотемпературном облучении ($T/T_{пл} < 0,4$) характеризовалось малой диффузионной подвижностью продуктов деления. Изменение объема СНУП топлива в данной температурной области происходило преимущественно за счет увеличения объема твердой фазы вследствие растворения продуктов деления в кристаллической решётке UPuN.

Проведенные исследования уран-плутониевого нитридного топлива после двух этапов облучения до выгорания 4 % т.а., показали, что в данной области температуры и выгорания:

- структурно-фазовое состояние, кристаллическая структура, элементный состав топлива изменялись в соответствии с известными закономерностями и теоретическими представлениями, характеризовавшими поведение топливных композиций при низкотемпературном облучении [3, 37, 48] – топливо представляло собой легированный продуктами деления твердый раствор UPuN с равномерно-распределенными в нем порами технологического происхождения;

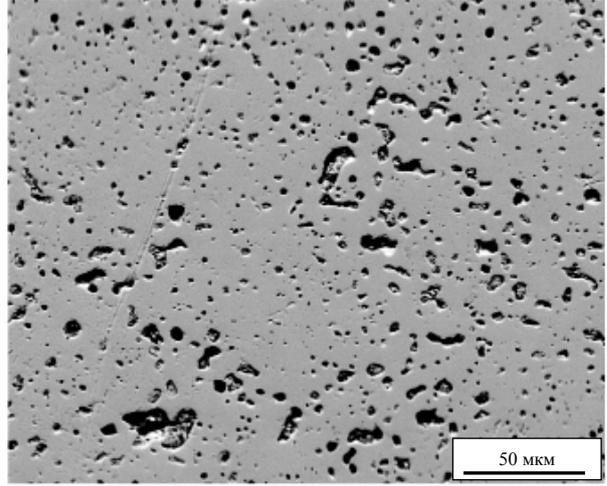
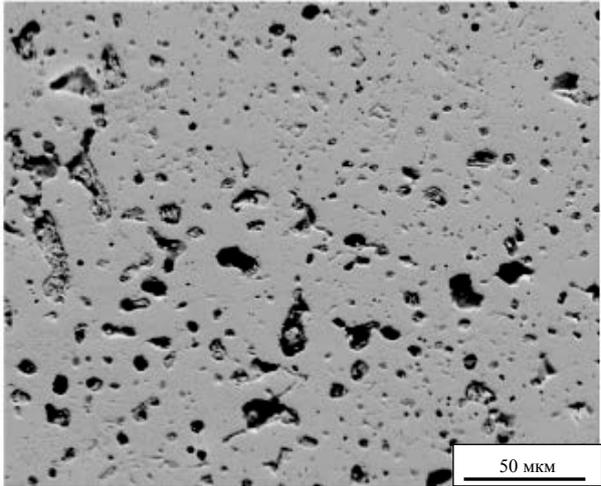
- распухание топливной композиции было обусловлено образованием и накоплением продуктов деления в твердом растворе, скорость распухания принимала значения 0,9-1,4 %/% выгорания;

– изменение состава твёрдого раствора в совокупности с накоплением радиационных дефектов привело к увеличению параметра элементарной кристаллической решетки $UPuN$.

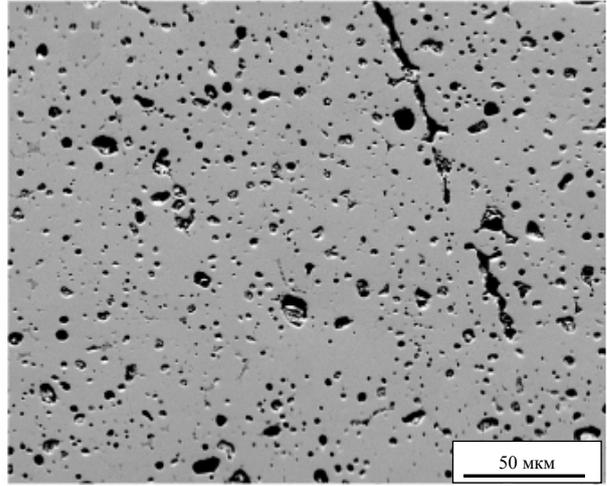
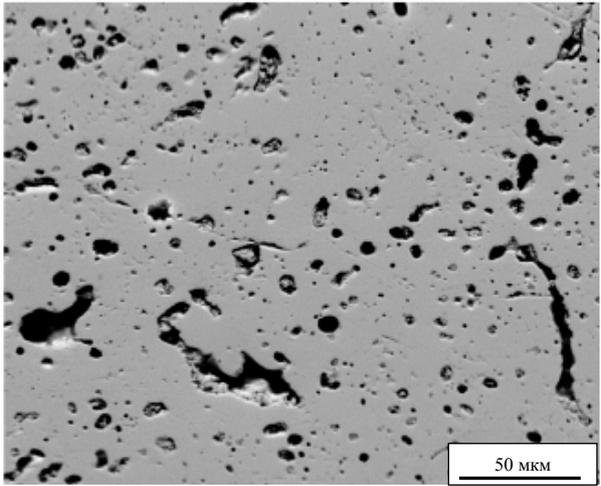
Выгорание выше 5 % т.а. при низкотемпературном облучении уран-плутониевого нитридного топлива послужило толчком к началу процесса реструктуризации топливной композиции, в результате которой произошло формирование мелкокристаллической структуры и образование газонаполненных пор размером менее 1 мкм. Образование газонаполненных пор сопровождалось уменьшением количества ГПД в матрице топлива. Количественные характеристики, полученные при определении распухания топлива после третьего этапа облучения, свидетельствовали об увеличении средней скорости распухания топливной композиции. При достижении максимального выгорания 5,5 % т.а. увеличение объема топливного сердечника в центральном сечении твэла составило $(8,4 \pm 1,4)$ % (таблица 4.3), что соответствовало скорости распухания $(1,5 \pm 0,3)$ %/ % выгорания.

Поскольку причиной изменения скорости распухания нитридного топлива могло быть образования газонаполненных пор, появившихся в ходе реструктуризации, была проведена количественная оценка пористости. В качестве примера на рисунках 3.3 и 4.5 представлены изображения микроструктуры топлива вдоль радиуса топливной таблетки, полученные методом сканирующей электронной микроскопии, а на рисунке 4.6 – результат выделения пор на одном из изображений в программе Видео-Тест Структура 5.2.

ОКОЛО ОБОЛОЧКИ



на середине радиуса



центральная область

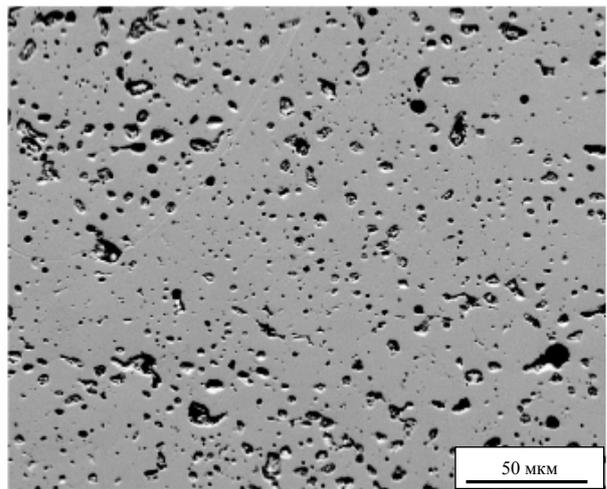
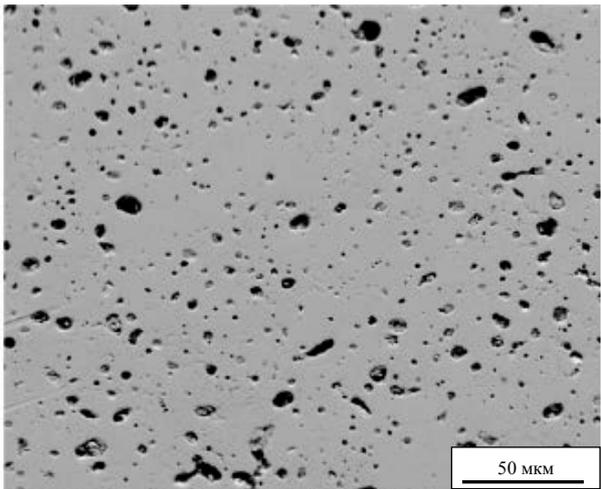


Рисунок 4.5 – Изображения микроструктуры топлива вдоль радиуса топливной таблетки в центральном сечении твэла (локальное выгорание 5,5 % т.а.)

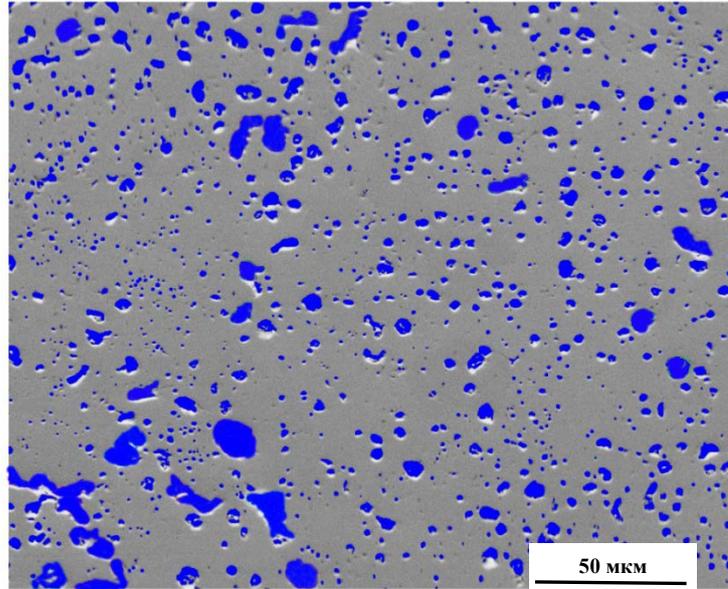


Рисунок 4.6 – Пример выделения пор на изображении микроструктуры топливной таблетки

В таблице 4.5 представлены результаты определения пористости вдоль радиуса топливной таблетки и среднее по площади значение пористости в центральном сечении твэла после облучения до выгорания 5,5 % т.а. Здесь R – радиус таблетки, r – текущий радиус.

Таблица 4.5 – Результаты определения пористости вдоль радиуса топливного сердечника в сечении с локальным выгоранием 5,5 % т.а.

Положение вдоль радиуса (r/R)	0	0,13	0,25	0,38	0,5	0,63	0,75	0,88	1	Среднее значение по площади таблетки	Исходное значение
Пористость, %	11,0	9,8	9,8	10,5	11,1	11,5	10,4	12,4	13,0	$11,3 \pm 1,1$	$8,5 \pm 0,5$

Изменение пористости вдоль радиуса топливной таблетки представлено на рисунке 4.7. Серая полоса на изображении показывает разброс значений пористости топливной композиции до облучения. Распределение пористости вдоль радиуса топливной таблетки не имеет выраженной закономерности – на площади топливной таблетки встречаются участки с повышенным (относительно среднего) значением пористости, формирование которых обусловлено, вероятно, наличием скоплений мелких пор.

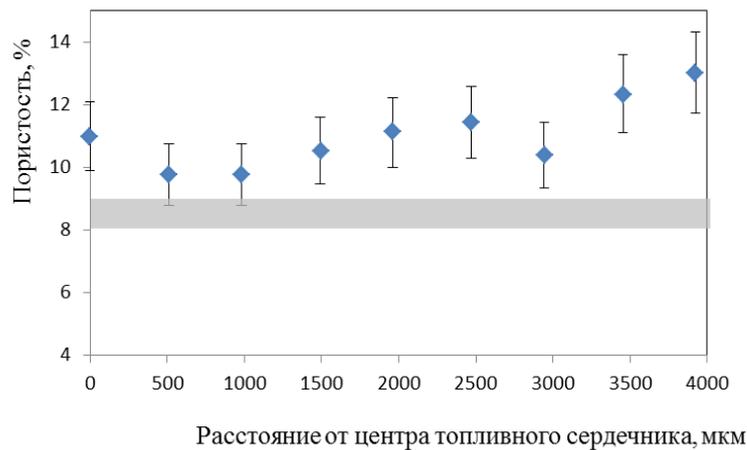


Рисунок 4.7 – Распределение пористости в центральном сечении твэла после облучения до выгорания 5,5 % т.а. (серая полоса – разброс значений пористости до облучения)

Сравнивая полученные значения средней по площади пористости с исходными данными, можно увидеть, что в результате облучения произошло увеличение пористости на 2,8 % абс.

Определение пористости топлива было также проведено при исследовании твэлов со свинцовым подслоем после облучения их в составе ОУ-4 (таблица 2.2) до максимального выгорания 3,9 % т.а. При достигнутом выгорании основное количество образовавшегося ксенона находится в матрице топлива (рисунок 3.14), некоторое количество вышло в технологические поры по атермическому механизму, пористость топлива после облучения (9 %) близка к исходному значению (8 %).

Таким образом, было подтверждено, что формирование в процессе реструктуризации газонаполненных пор привело к увеличению общей пористости топлива, и, как следствие, к увеличению скорости набухания: к величине набухания топлива за счет увеличения объема твердой фазы («твердое» набухание) добавилось набухание, связанное с образованием субмикронных пор («газовое» набухание).

Для определения вклада в набухание газообразных продуктов деления, образующих субмикронные поры, необходимо оценить относительное изменение объема топливной композиции за счет увеличения объема пор. Для этого воспользовались формулой 2.13. В твэле, облученном до выгорания 3,9 % т.а. в составе ОУ-4, вклад в общее набухание топлива за счет увеличения объема пор составил 1,6 %. При достижении выгорания 5,5 % т.а. вклад в набухание за счет увеличения объема пор составил 3,7 %. Для определения «твердого» набухания необходимо вычесть из общей величины набухания значение набухания, обусловленное увеличением объема пор. Полученное таким образом значение «твердого» набухания топлива, связанное с увеличением объема твердой фазы за счет формирования конденсированных фаз из нерастворившихся продуктов деления и увеличения объема

элементарной кристаллической ячейки, при низкотемпературном облучении до максимального выгорания 3,9 и 5,5 % т.а. составляет 3,9 и 4,7 %.

Полученные данные об общей величине и скорости распухания уран-плутониевого нитридного топлива на каждом этапе облучения, а также о вкладе в распухание газообразных и твердых продуктов деления, представлены в таблице 4.6.

Таблица 4.6 – Распухание СНУП топлива после низкотемпературного облучения

Параметр	Значение		
Расчетное локальное выгорание, % т.а.	2,7	3,9	5,5
Распухание топлива, %	2,8±0,5	5,5±0,9	8,4±1,4
Вклад в распухание, %:			
– за счет увеличения объема твердой фазы,	2,8	3,9	4,7
– за счет увеличения объема пор	-	1,6	3,7
Скорость распухания, % / % выгорания	1,0±0,2	1,4±0,2	1,5±0,3
Вклад в скорость распухания, % / % выгорания:			
– за счет увеличения объема твердой фазы,	1,0	1,0	0,8
– за счет увеличения объема пор	-	0,4	0,7

Данные об изменении параметра кристаллической решетки топлива, представленные в таблице 3.2, были использованы для оценки вклада в увеличение объема твердой фазы за счет изменения объема кристаллической решетки UPuN. Поскольку пространственное расположение атомов в кристаллической решетке UPuN таково, что элементарная ячейка имеет форму куба, вычислить объем которого можно возведя ПКР в третью степень, распухание топлива, обусловленное увеличением матрицы топлива за счет изменения объема элементарных ячеек можно вычислить, используя следующее выражение:

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \frac{a^3 - a_0^3}{a_0^3}, \quad (4.3)$$

где a_0 , a – ПКР $U_{0,82}, Pu_{0,18}N$ до и после облучения, соответственно, нм.

Из таблицы 4.7 также можно видеть, что в зависимости от температуры облучения скорость распухания за счет увеличения ПКР принимала значения от 0,09 до 0,13 % / % выгорания.

Таблица 4.7 – Распухание за счет увеличения параметра кристаллической решетки

Локальное выгорание, % т.а.	Максимальная температура топливного сердечника, °С	Распухание за счет увеличения ПКР, %	Скорость распухания за счет увеличения ПКР, % / 1 % т.а.
2,2	860	0,25	0,11
2,7	870	0,25	0,09
3,1	870	0,31	0,10
3,8	550	0,49	0,13
3,9	870	0,37	0,09
4,0	870	0,37	0,09
4,0	550	0,49	0,12
5,5	870	0,55	0,10

На рисунке 4.8 в виде гистограммы показано изменение распухания уран-плутониевого нитридного топлива после низкотемпературного облучения в зависимости от достигнутого выгорания, а также вклад различных механизмов в общее распухание топливной композиции.

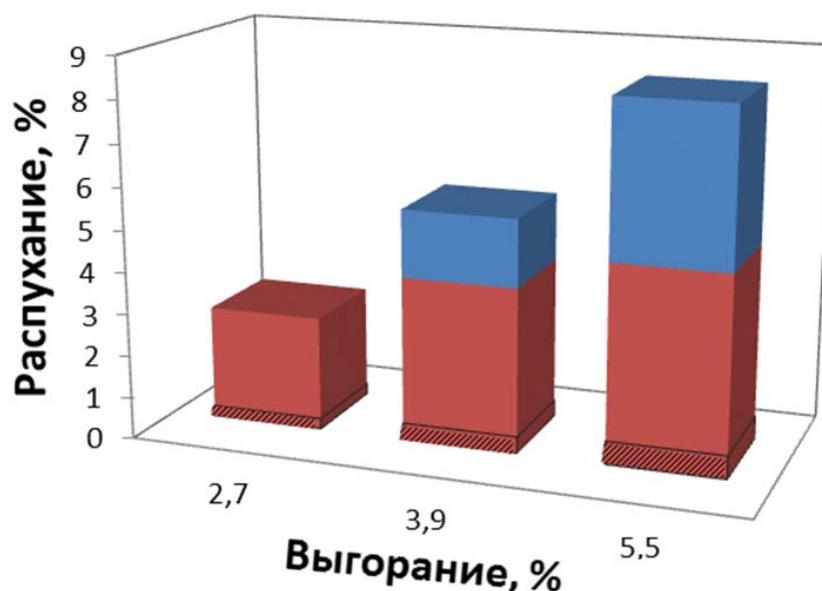


Рисунок 4.8 – Изменение распухания СНУП топлива после низкотемпературного облучения и вклады в распухание: ■ – за счет увеличения объема пор, ■ – за счет увеличения объема твердой фазы (в том числе штриховкой показан вклад за счет увеличения объема элементарной кристаллической ячейки)

4.5 Выводы по главе 4

Распухание уран-плутониевого нитридного топлива, облученного в составе твэлов с жидкометаллическим подслоем при максимальной рабочей температуре 870 °С до выгорания 3,9 % т.а., происходило за счет увеличения объема твердой фазы, накопления и аtermического выхода атомов ГПД в технологические поры. Максимальная скорость распухания на данном этапе облучения составила 1,4 %/% выгорания, 1 % из которых обусловлен увеличением объема твердой фазы и 0,4 % – выходом ГПД в технологические поры.

Явление реструктуризации, наблюдаемое в уран-плутониевом нитридном топливе при максимальной рабочей температуре 870 °С и выгорании 5,5 % т.а. привело к активации дополнительного механизма распухания, связанного с аtermическим выходом газообразных продуктов деления из матрицы топлива и образованием газонаполненных пор. Максимальное значение распухания уран-плутониевого нитридного топлива составило 8,4 % при выгорании 5,5 % т.а., из которых 4,7 % обусловлены изменением объема твердой фазы и 3,7 % – образованием газонаполненных пор. Таким образом, скорость распухания за счет увеличения объемов твердой фазы и пор составляет 0,8 и 0,7 %/% выгорания, соответственно. Дополнительно была проведена оценка скорости распухания за счет увеличения объема элементарной кристаллической ячейки топлива, которая при данных условиях облучения составила около 0,1 %/ % выгорания.

При проведении исследований изменения диаметра топливного сердечника было показано, что при сохранении скорости распухания 1,5 %/% выгорания контакт топлива с оболочкой в макетах твэлов данной конструкции в рабочих условиях произойдет при выгорании около 9 % т.а.

Глава 5 Особенности структурно-фазового состояния уран-плутониевого нитридного топлива после высокотемпературного облучения в реакторе БОР-60

Ниже рассмотрены экспериментальные твэлы с гелиевым заполнением зазора между топливом и оболочкой. Максимальная расчетная температура топлива, представляющего собой твердый раствор на основе моонитридов урана и плутония $U_{0,4}Pu_{0,6}N$, составила 1760 °С, максимально достигнутое выгорание – 12,1 % т.а. Благодаря высокой рабочей температуре топлива диффузионная подвижность продуктов деления в твэлах с гелиевым подслоем значительно выше, чем в твэлах со свинцовым подслоем, что в процессе облучения привело к формированию и росту газовых пор, образованию включений вторых фаз и выходу газообразных продуктов деления в свободный объем твэла.

5.1 Микроструктура нитридного топлива после облучения

Для изучения особенностей структуры топливной композиции $U_{0,4}Pu_{0,6}N$ при различных уровнях температуры и выгорания были вырезаны образцы из низа, центра и верха активной части твэлов с гелиевым заполнением зазора между топливом и оболочкой.

В начальный момент эксплуатации в экспериментальных твэлах с уран-плутониевым нитридным топливом существовал технологический зазор шириной около 110 мкм, заполненный гелием. Увеличение диаметра топливного сердечника твэла в процессе облучения, обусловленное распуханием, приводило к постепенному уменьшению и, в конечном итоге, полному исчезновению технологического зазора. При проведении исследований зазор между топливом и оболочкой не был зафиксирован ни после первого, ни после второго этапа облучения. На рисунке 5.1 в качестве примера представлено сечение твэла после первого этапа облучения с локальным выгоранием 5 % т.а., а также изображение микроструктуры зоны контакта топлива с оболочкой.

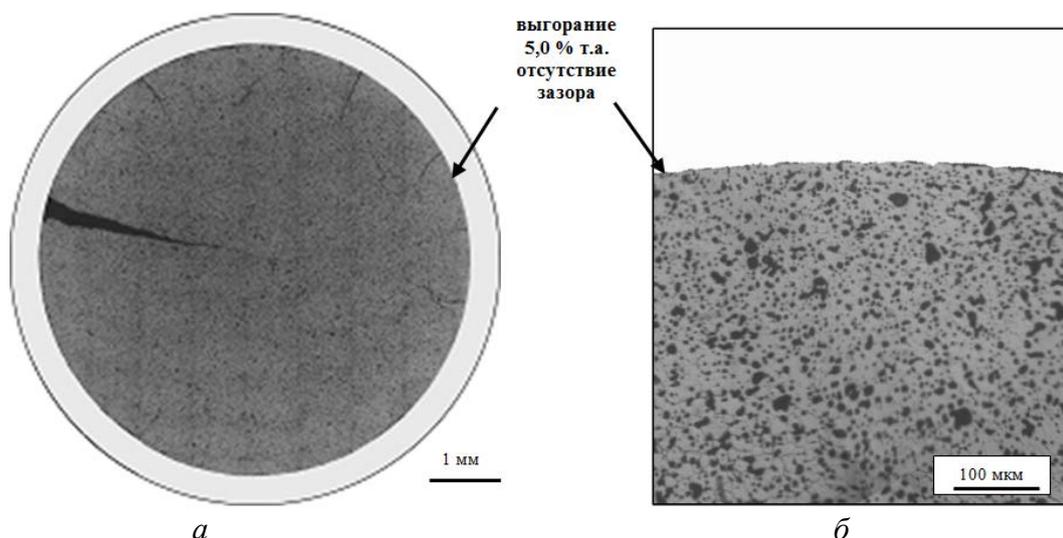


Рисунок 5.1 – Изображения макроструктуры топливного сердечника (а) и зона контакта топлива с оболочкой (б) в верхнем сечении твэла с локальным выгоранием 5 % т.а.

Из особенностей макроструктуры топлива также было отмечено наличие радиальных трещин, степень раскрытия которых увеличивалась от центра к поверхности таблеток, что характерно для нитридного топлива [3, 41]. В полном объеме данные, полученные при исследовании макроструктуры топлива, необходимые для оценки изменения его объема (распухания), представлены в главе 6.

Для оценки изменения ширины зазора в рабочих условиях были проведены дополнительные расчеты изменения линейных размеров топливного сердечника и оболочки твэла. Воспользовавшись формулой (1.3), выразили изменение радиуса (ΔR) топливного сердечника и внутреннего радиуса оболочки через исходный радиус (R_0), ТКЛР материала (α), комнатную температуру ($T_0=20$ °С) и среднюю рабочую температуру (T):

$$\Delta R = \alpha \cdot R_0 \cdot (T - T_0), \quad (5.1)$$

Подставив в формулу 5.1 исходный радиус топливного сердечника – 2,9 мм, среднюю рабочую температуру топлива по сечению топливной таблетки – 1400 °С и соответствующий этой температуре ТКЛР – $10,3 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ (таблица 1.5), получили изменение радиуса топливного сердечника за счет термического расширения, равное 0,04 мм. Изменение внутреннего радиуса оболочки твэла в рабочем режиме также составило 0,04 мм (с учетом радиуса внутренней поверхности оболочки твэла до облучения – 3,05 мм, максимальной температуры оболочки – 600 °С, ТКЛР стали ЧС-68 при рабочей температуре – $20,3 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ [72]). Таким образом, в процессе облучения нитридного топлива в составе твэлов с гелиевым подслоем вследствие термического расширения материалов топлива и оболочки ширина зазора не изменялась, рассчитанные при проведении послереакторных исследований размерные характеристики топливного сердечника и твэла (при комнатной температуре), справедливы и для рабочих

условий облучения. На рисунке 5.2 представлены изображения микроструктуры топливной композиции, характерной для различных положений вдоль радиуса топливных таблеток, после первого и второго этапа облучения в центральных сечениях ТВЭЛОВ.

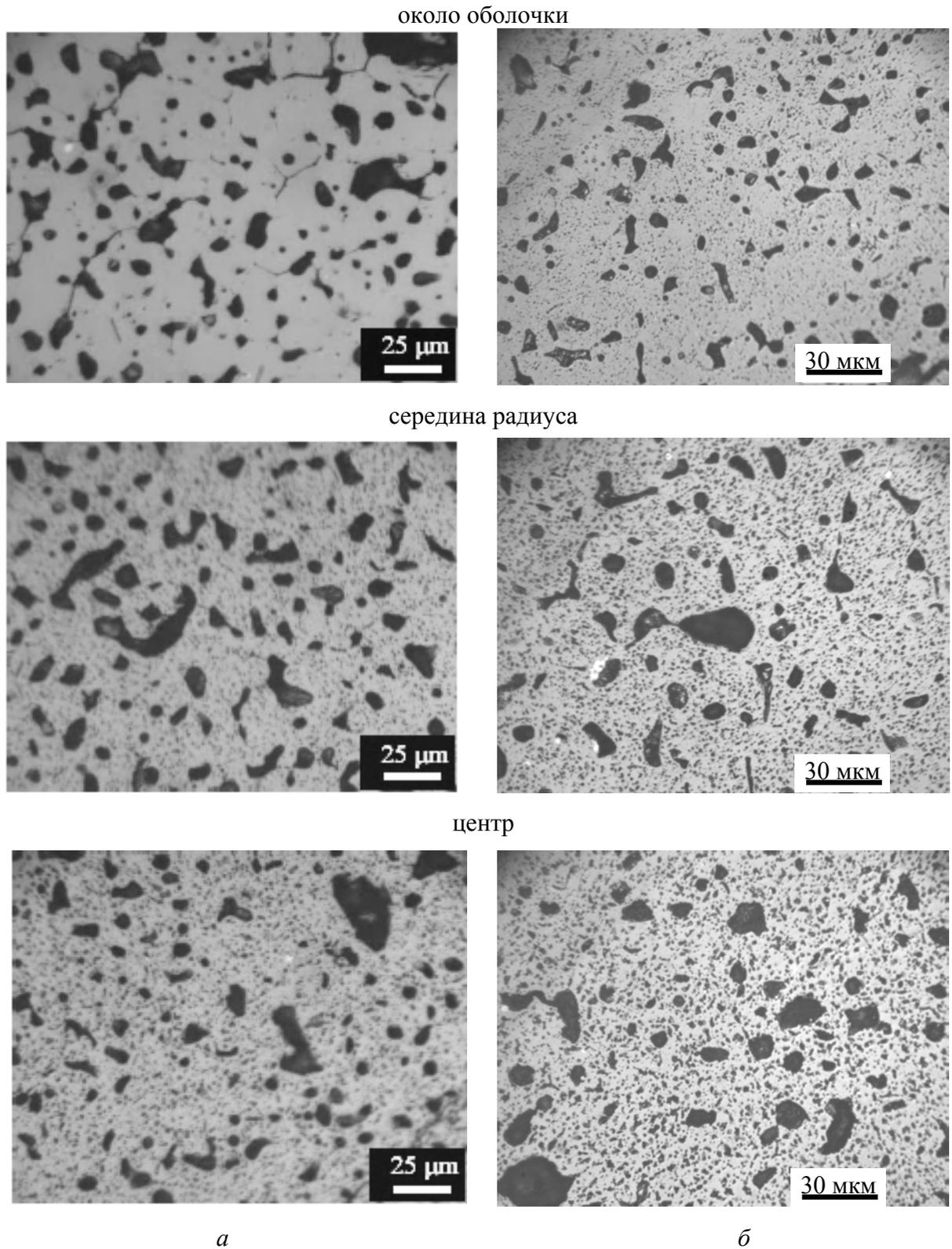
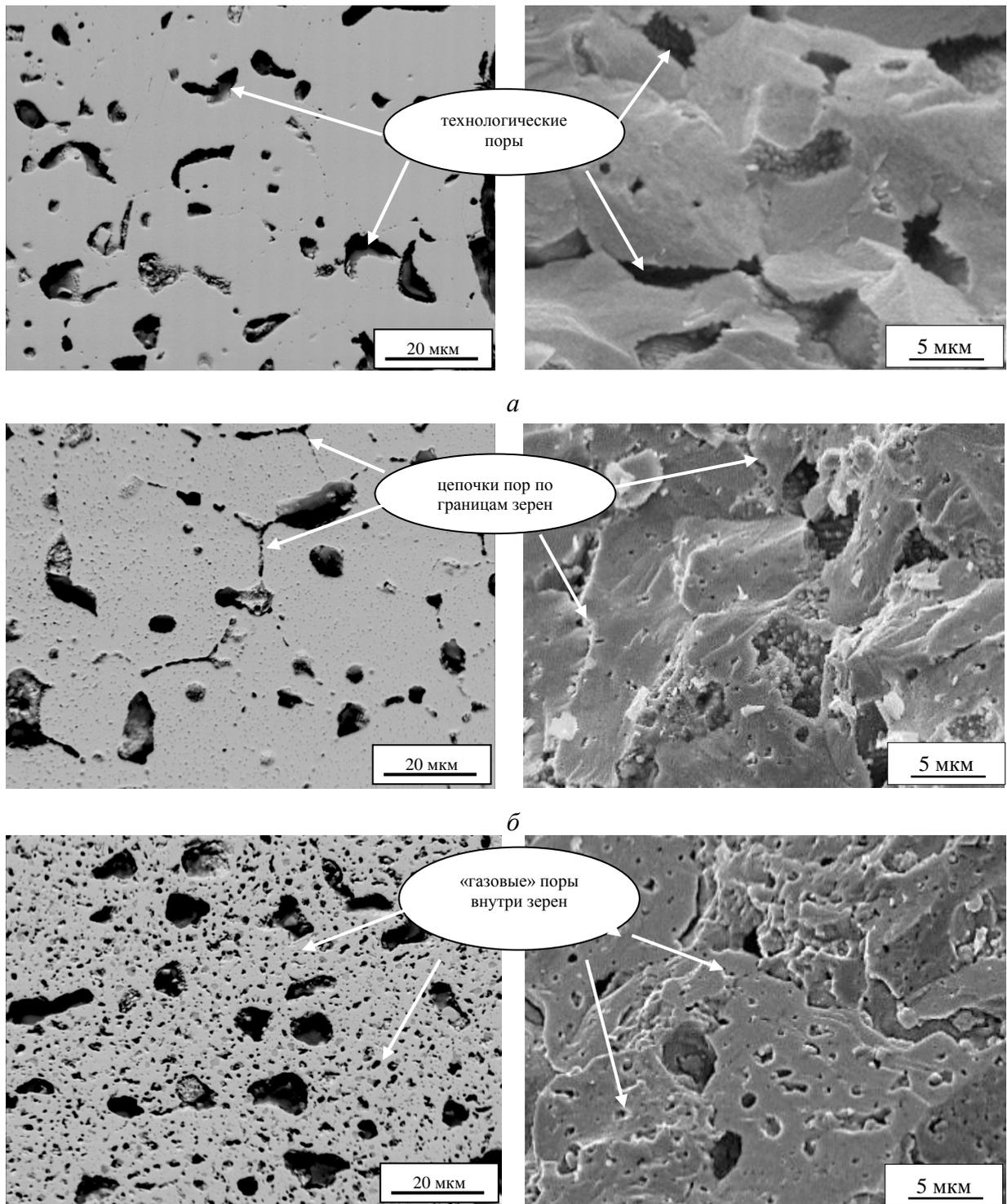


Рисунок 5.2 – Изображения отдельных участков топливной композиции $U_{0,4}Pu_{0,6}N$ вдоль радиуса таблетки после облучения до выгорания 7,0 (*a*) и 12,1 (*б*) % т.а.

В процессе облучения происходило образование газовых пор, количество и размер которых увеличивались от поверхности к центру таблеток, т.е. увеличение пористости происходило в том же направлении, что и рост температуры топлива, что отражало температурную зависимость процесса формирования пор. За счет объединения отдельных газовых и технологических пор в цепочки вдоль границ зерен происходило формирование в топливе системы межзеренных связанных пор, т.е. каналов, открытых для движения и выхода из топливной композиции газообразных продуктов деления. В центральной области топливной таблетки не обнаружено крупных пор, размер которых мог быть сопоставим с размером зерен, т.е. микроструктура топлива в этой области несколько отличалось от теоретических представлений работы [39] (рисунок 1.13 зона I). Микроструктура топлива в средней части и на краю топливной таблетки соответствует теоретическим представлениям (рисунок 1.13 зоны II и III).

При исследовании микроструктуры облученного топлива выявлено наличие светлых включений как в центре, так и на периферии топливных таблеток, которые по визуальным признакам соответствовали металлической фазе, сформированной в результате образования и выхода продуктов деления с низкой растворимостью в кристаллической решетке UPuN.

Более глубокое и детальное исследование микроструктуры вдоль радиуса топливной таблетки уран-плутониевого нитридного топлива после высокотемпературного облучения было выполнено с использованием методов сканирующей электронной микроскопии. Изображения, полученные методом сканирующей электронной микроскопии на шлифах и изломах топливных таблеток, представлены на рисунке 5.3. В результате проведенных исследований было показано, что вблизи поверхности таблетки, в области меньших температур, топливо имело преимущественно гомогенную структуру с равномерно распределенными в нем технологическими порами (рисунок 5.3 а). С повышением температуры при приближении к центру топливной таблетки начинали появляться одиночные газовые поры внутри зерен и цепочки пор вдоль их границ (рисунок 5.3 б). Размер одиночных газовых пор – от одного до нескольких микрометров. В центральной области под влиянием наиболее высоких температур газообразные продукты деления сформировали хорошо различимую внутривзеренную и межзеренную пористость (рисунок 5.3 в). Кроме этого, на электронно-микроскопических изображениях в обратно отраженных электронах при приближении к центральной области топливной таблетки видны включения, состоящие из твердых продуктов деления, не растворившихся в матрице топлива (рисунок 5.4).



в

Рисунок 5.3 – Типичная микроструктура облученного нитридного топлива на шлифе (слева) и изломе (справа) топливной таблетки после облучения до выгорания 12,1 % т.а.: *а* – область таблетки возле оболочки, *б* – область таблетки на середине радиуса, *в* – центральная область таблетки

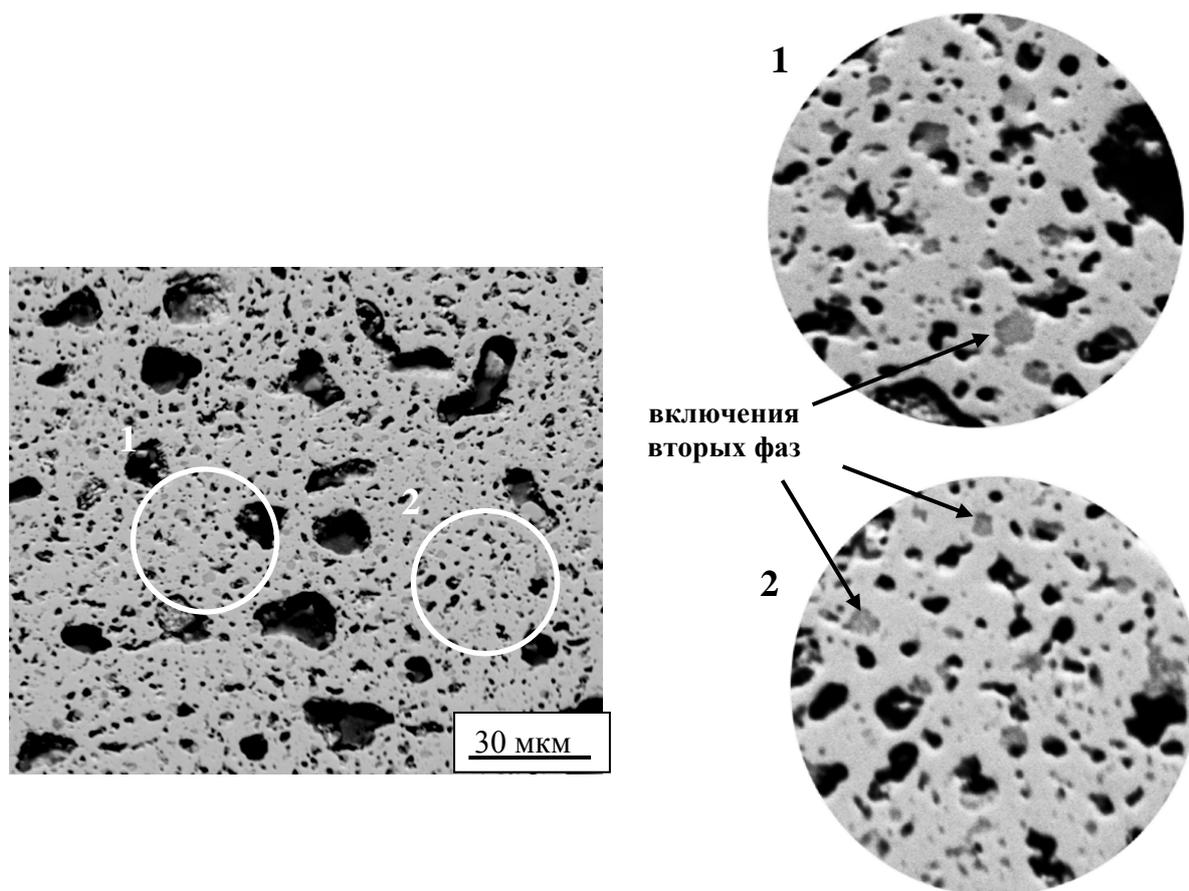


Рисунок 5.4 – Фазы в облученном нитридном топливе, выявленные методом сканирующей электронной микроскопии [71]

5.2 Результаты исследований элементного состава топливной композиции

5.2.1 Распределение газообразных и летучих продуктов деления

Атомы газа, образовавшиеся в результате ядерных реакций, имеют ничтожно малую растворимость, в силу этого для них энергетически выгодно образовывать с вакансиями устойчивые комплексы, что при высокотемпературном облучении привело к формированию в топливе газонаполненных пор. Увеличение числа пор на границах зерен привело к их слиянию и образованию системы взаимосвязанных каналов, наблюдаемой при проведении исследований структуры топлива методами металлографии и сканирующей электронной микроскопии. Соединяясь, каналы пор создавали пространственную сеть, выходящую на наружную поверхность, по которой происходил выход образовавшегося газа в свободный объем твэла. Процесс газовой выделению способствовал снижению вклада «газовой» составляющей в набухание топливных композиций.

Для определения доли газообразных продуктов деления, вышедших из топливного сердечника под оболочку твэлов, сделан расчёт наработки криптона и ксенона в предположении, что единственным делящимся изотопом при облучении был ^{239}Pu . Такое предположение может иметь место из-за малого содержания ^{235}U в топливе и меньшего, чем для ^{239}Pu сечения деления ^{238}U . Кроме того суммарный выход изотопов ксенона и криптона при делении ^{239}Pu и ^{238}U мало отличается. Данные по выходу изотопов криптона и ксенона при делении ^{239}Pu взяты из базы данных [67]. Учитывалось уменьшение криптона вследствие распада ^{85}Kr как при облучении, так и при хранении твэлов.

В таблице 5.1 представлены сводные данные о наработке и выходе газообразных продуктов деления после первого и второго этапа облучения.

Таблица 5.1 – Нарботка и выход газообразных продуктов деления из топлива $\text{U}_{0,4}\text{Pu}_{0,6}\text{N}$ при нормальных условиях

Этап облучения	Максимальное выгорание, % т.а.	Расчетная наработка, см ³		Под оболочкой твэла, см ³		Выход из топлива под оболочку твэла, %	
		Kr	Xe	Kr	Xe	Kr	Xe
1	7,0	13,91	190,85	1,3 ± 0,1	15,8 ± 1,4	9,4 ± 0,9	8,3 ± 0,8
2	12,1	23,88	327,62	4,4 ± 0,1	63,7 ± 2,0	18,4 ± 0,6	19,4 ± 0,6

Таким образом, в результате облучения топливной композиции $\text{U}_{0,4}\text{Pu}_{0,6}\text{N}$ при максимальной температуре в центре 1760 °С произошел выход части газообразных продуктов деления из топлива под оболочку твэла, что согласуется с литературными данными [41] и результатами микроструктурных исследований, а именно – образованием в структуре топлива связанной системы пор, открытой для движения и выхода газа.

Изучение распределения газообразных продуктов деления вдоль радиуса топливной таблетки проведено методом электронно-зондового микроанализа на примере ксенона. На рисунке 5.5 представлено радиальное распределение ксенона в твёрдом растворе $\text{U}_{0,4}\text{Pu}_{0,6}\text{N}$. Среднее по радиусу содержание ксенона $\text{U}_{0,4}\text{Pu}_{0,6}\text{N}$, составляющее $0,52 \pm 0,08$ масс.%, не соответствовало накопленному за время облучения количеству (1,48 масс. %). Таким образом, в центральной части топливного сердечника выход ксенона из твердой фазы составил 65 % от образовавшегося количества. На рисунке 5.5 показано, что содержание ксенона увеличивалось в направлении от центра к краю топливной таблетки, что коррелирует с микроструктурой, представленной на рисунках 5.2 и 5.3, и изменением температуры вдоль радиуса топливной таблетки: с ростом температуры подвижность атомов газообразных продуктов деления увеличивалась, быстрее происходили объединение пор и выход ГПД через открытые каналы пор в свободный объем твэла. Газообразные продукты деления, оставшиеся в топливной

таблетке, находились частично в матрице топлива в виде пузырьков размером менее 0,1 мкм, а частично выходили в закрытые поры диаметром порядка микрометра и более.

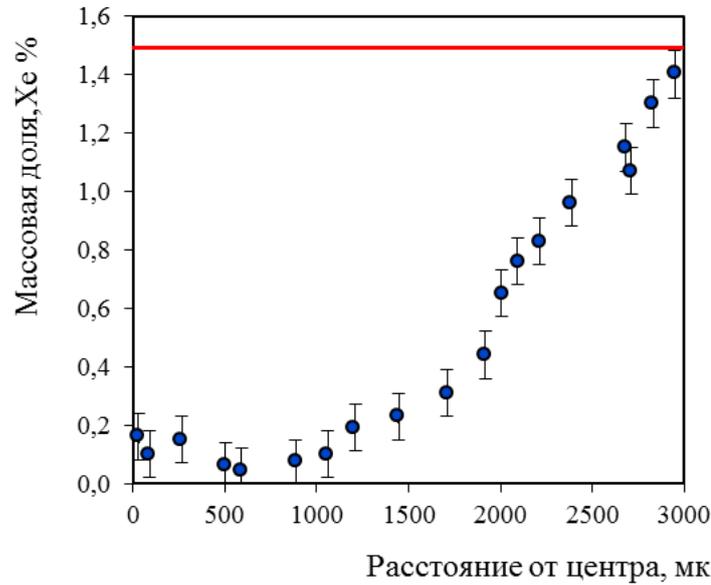


Рисунок 5.5 – Изменение массовой доли ксенона, содержащегося в твёрдом растворе (●) и накопленного при выгорании 12,1 % т.а. (—), вдоль радиуса топливной таблетки

Наблюдалось сходство в поведении газообразных и летучих продуктов деления СНУП топлива после высокотемпературного облучения: цезий в значительной степени находился в газовой фазе, при этом осуществлялась его миграция в холодную зону, в частности, в нижний торцевой экран, что благоприятно для снижения распухания топлива (рисунок 5.6).

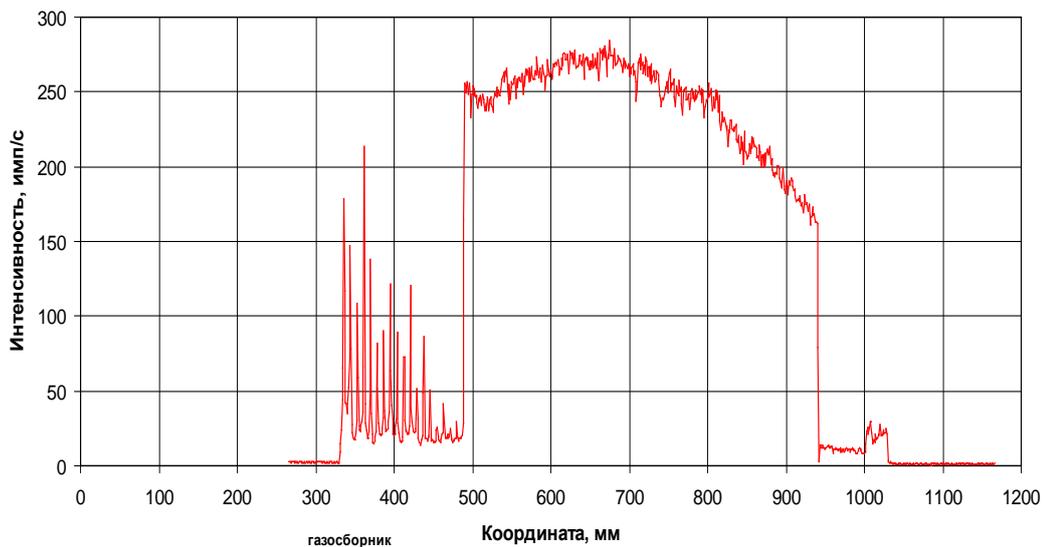


Рисунок 5.6 – Распределение Cs-137 по длине твэла после первого этапа облучения

5.2.2 Распределение твердых продуктов деления и компонентов топлива

Образующиеся в процессе деления тяжелых атомов продукты деления – разные по своим физическим и химическим свойствам элементы, поэтому в зависимости от условий облучения часть из них может находиться в состоянии твёрдого раствора в кристаллической решетке $UPuN$, другие – выделяться в виде самостоятельных фаз, представляющих собой металлические сплавы или химические соединения. Методом гамма-сканирования получено распределение основных радиоактивных продуктов деления нитридного топлива по длине твэла. На рисунке 5.7 представлено типичное распределение Zr-95 и Ru-106.

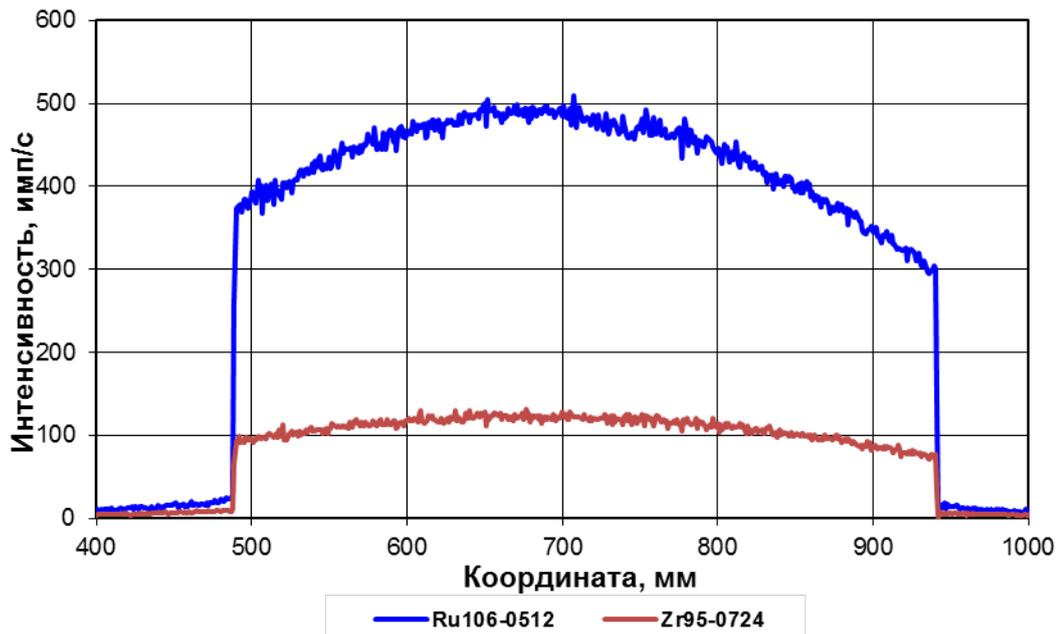


Рисунок 5.7 – Типичное распределение продуктов деления по длине твэла с нитридным топливом после высокотемпературного облучения

Кривая распределения Zr-95 свидетельствует о равномерном исходном распределении плутония в топливных таблетках, а также об одинаковой первоначальной плотности таблеток, отсутствии разрывов топливного столба и аксиального переноса топлива. Соответствие распределения Ru-106 профилю нейтронного потока подтверждает, что в облученном топливе нет крупных металлических включений из продуктов деления.

Для исследования элементного состава основной фазы облученного нитридного топлива – многокомпонентного твердого раствора и особенностей распределения продуктов деления, выделившихся из кристаллической решетки нитрида урана и плутония, были получены карты распределения компонентов топлива и продуктов деления на фрагментах поверхности шлифа облученного топлива (рисунок 5.8). Более светлым областям соответствуют более высокие концентрации исследуемых элементов.

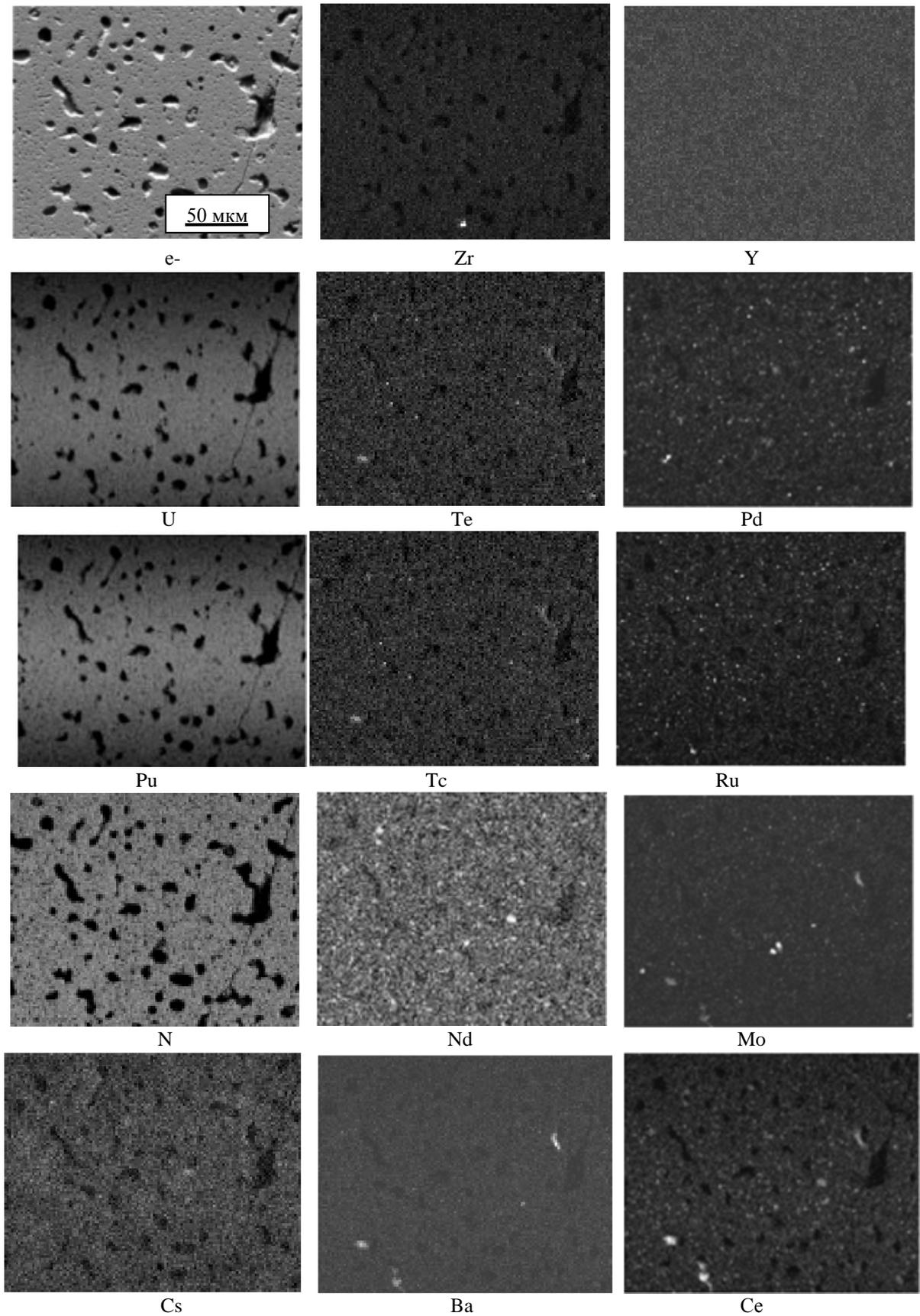


Рисунок 5.8 – Электронно-микроскопическое изображение в отраженных электронах (e^-) и распределение элементов в центральной области топливного сердечника ($U_{0,4}Pu_{0,6}N$) с локальным выгоранием 12,1 % т.а.

Распределение урана, плутония и азота имело равномерный характер, т.е. основные компоненты топлива не подвергались миграции. Из всех продуктов деления цирконий и иттрий наиболее равномерно распределены в матрице топлива. Распределения палладия и молибдена свидетельствовали о том, что эти продукты деления находились в двух разных типах металлических включений. Цезий находился частично в матрице топлива, частично образовывал включения. В соответствии с теоретическими представлениями [26], неодим относится к продуктам деления с неограниченной растворимостью в кристаллической решетке нитрида урана и плутония, однако характер его распределения на рисунке 5.8 свидетельствует о наличии сегрегаций, возможно, выделений самостоятельных фаз, содержащих неодим. Фактическое содержание основных продуктов деления в топливной композиции $U_{0,4}Pu_{0,6}N$, а также расчетное их содержание после облучения до выгорания 12,1 % т.а., представлены в таблице 5.2. В процессе облучения происходила миграция цезия в менее нагретые области как по радиусу топливного сердечника (в направлении от центра к оболочке), так и по высоте твэла (в направлении нижнего торцевого экрана твэла). Выход цезия из твердой фазы в центральной части топливного сердечника составил 62 % от образовавшегося количества.

Таблица 5.2 – Содержание основных продуктов деления в топливной композиции $U_{0,4}Pu_{0,6}N$ после облучения до выгорания 12,1 % т.а. (масс. %)

Топливная композиция	Элемент	Центр топлива	Середина радиуса	Край топлива	Среднее (по радиусу) значение	Расчетное количество [68]
$U_{0,4}Pu_{0,6}N$	Mo	0,8	0,9	0,95	$0,88 \pm 0,05$	1,02
	Pd	0,25	0,3	0,45	$0,33 \pm 0,08$	0,78
	Cs	0,2	0,4	0,9	$0,50 \pm 0,04$	1,31
	Zr	0,69	0,68	0,7	$0,69 \pm 0,05$	0,79

5.3. Кристаллическая структура топливной композиции после облучения

Состояние кристаллической решетки топливных композиций до и после облучения исследовано методом рентгеноструктурного анализа. На рисунке 5.9 в качестве примера приведена рентгенограмма одного из исследованных образцов. Исходный тип ГЦК-кристаллической структуры после облучения сохранился. Кроме основных линий, принадлежащих кристаллической решетке $UPuN$, на полученных рентгенограммах были обнаружены дополнительные линии. Однозначно определить наличие какой-либо фазы, которой могли бы соответствовать обнаруженные линии, не удалось из-за их малой величины и частичного наложения на линии основной фазы. Анализировались все возможные

дополнительные фазы, которые могли образовываться в результате облучения: $(U,Pu)(Pd,Rh,Ru)_3$, $(Ba, Sr)N$, MoN , LnN . Наиболее вероятно присутствие нитридов $(Ba,Sr)N$ и MoN . Рассчитанные значения параметра кристаллической решётки вместе с исходными данными и данными для необлученных нитридов плутония и урана представлены в таблице 5.3.

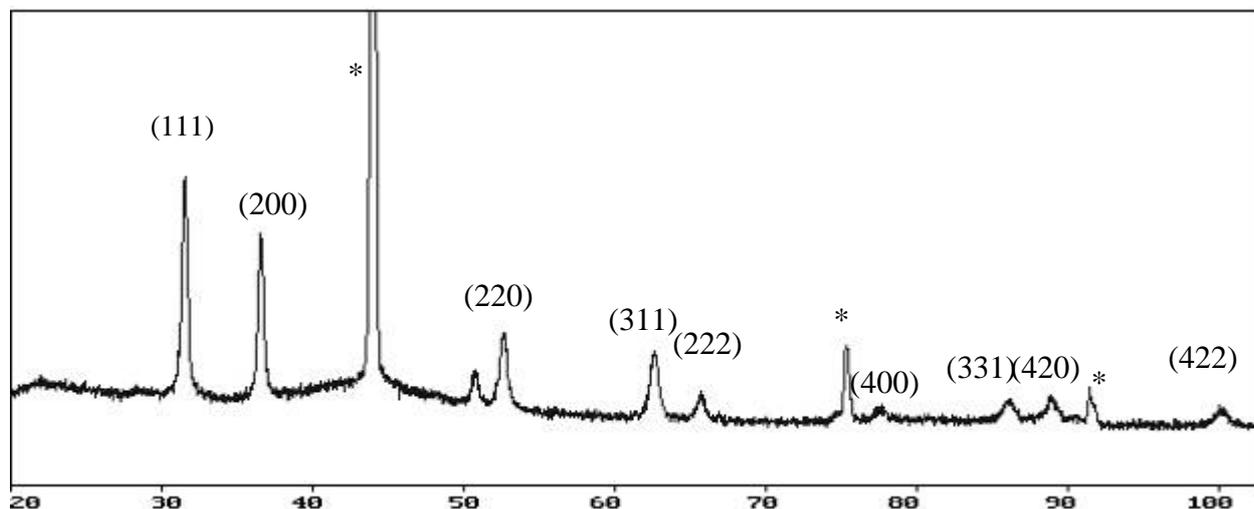


Рисунок 5.9 – Типичный вид рентгенограммы уран-плутониевого нитридного топлива после высокотемпературного облучения, * – дифракционные максимумы алмаза

Таблица 5.3 – Результаты рентгеноструктурного анализа топливной композиции $U_{0,4}Pu_{0,6}N$

Выгорание, % т.а.	Параметр кристаллической решётки, нм
0	$0,49001 \pm 0,00001$
7,0	$0,49098 \pm 0,00004$
12,1	$0,49180 \pm 0,00004$

В процессе облучения происходило увеличение параметра элементарной ячейки фазы $UPuN$ (рисунок 5.10). В общем случае на изменение параметра кристаллической решетки топлива влияли накопление радиационных дефектов, изменение стехиометрии, а также накопление продуктов деления. В зависимости от атомного радиуса продукта деления его растворение могло приводить к увеличению (в случае с Ba , Sr , Cs , La , Ce , Y) или уменьшению (Zr , Nb) параметра кристаллической решетки. Из литературных данных известно, что уран-плутониевый мононитрид имеет узкую область гомогенности, кроме того при высокотемпературном облучении происходил отжиг радиационных дефектов, поэтому увеличение параметра кристаллической решетки нитридного топлива в данном случае связано в основном с накоплением и растворением продуктов деления с большим атомным радиусом, чем радиус атомов – компонентов твердого раствора.

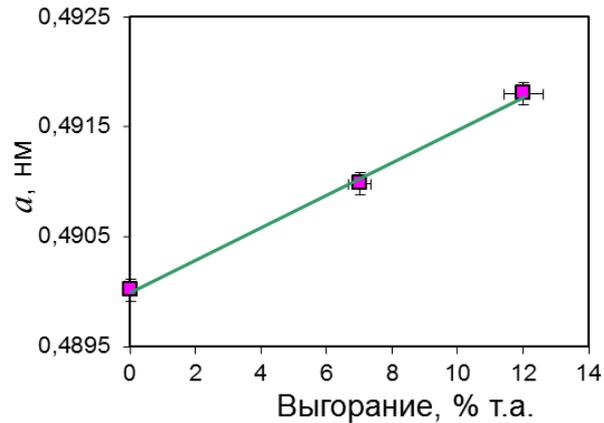


Рисунок 5.10 – Изменение параметра кристаллической решетки $U_{0,4}Pu_{0,6}N$ с ростом выгорания [71]

5.4 Выводы по главе 5

При проведении исследований структуры, элементного и фазового состава топливной композиции $U_{0,4}Pu_{0,6}N$ после высокотемпературного облучения были выявлены следующие закономерности.

Вследствие накопления и выделения из матрицы топлива газообразных продуктов деления в СНУП топливе происходит образование внутрзеренных и межзеренных газовых пор диаметром от одного до нескольких микрометров. Пористость увеличивается в направлении от края к центру топливной таблетки в сторону увеличения температуры. За счет объединения отдельных газовых и технологических пор в цепочки вдоль границ зерен сформировалась система межзеренных связанных пор. Содержание ГПД в матрице топлива не соответствует накопленному при облучении количеству, из-за того, что часть атомов газа выходит в свободный объем твэла, а другая часть находится в образовавшихся порах. Выход ксенона из твердой фазы составляет 65 % от образовавшегося количества.

В структуре топливной композиции встречаются включения, представляющие собой вторые фазы из нерастворившихся продуктов деления. При высокотемпературном облучении самостоятельные фазы сформировали молибден, палладий, барий. Цирконий равномерно распределен в матрице топлива. Неодим и цезий находятся частично в твердом растворе, частично образуют вторые фазы. Выход цезия из твердой фазы в центральной части топливного сердечника составляет 62 % от образовавшегося количества.

Кристаллическая решетка уран-плутониевого нитридного топлива сохраняет гранецентрированную сингонию, но испытывает монотонное увеличение параметра на протяжении всего периода облучения. Изменение параметра кристаллической решетки нитридного топлива связано в основном с накоплением продуктов деления и растворением их в кристаллической решетке $UPuN$.

Глава 6 Радиационное распухание нитридного топлива в условиях высокотемпературного облучения

Вклады в радиационное распухание уран-плутониевого нитридного топлива за счет увеличения объема пор и объема твердой фазы в твэлах с газовым и жидкометаллическим наполнением отличаются, что обусловлено особенностями распределения и фазовым состоянием продуктов деления при разной температуре облучения. Изменение структуры топлива при низкой температуре, обеспечиваемой жидкометаллическим подслоем, связано с атермическими процессами. Большая часть образовавшихся продуктов деления в твэлах с жидкометаллическим подслоем занимает места разделившихся атомов в катионной подрешетке нитрида, поэтому увеличение объема топлива за счет роста твердой фазы вносит более существенный вклад в распухание. При высокой рабочей температуре топлива в твэлах с газовым подслоем происходит выход части летучих и газообразных продуктов деления в свободный объем твэла, формирование новых фаз, существенное увеличение пористости, поэтому распухание топлива в большей степени обусловлено изменением объема пор и в меньшей степени – изменением объема твердой фазы.

6.1 Изменение размеров топливного сердечника

При проведении металлографических исследований макроструктуры твэла наблюдается плотный контакт топлива с оболочкой при локальном в сечении выгорании выше 5 % т.а. На рисунке 6.1 представлены изображения поперечных сечений твэлов после первого и второго этапов облучения, а в таблице 6.1 – сводные данные о ширине зазора между топливом и оболочкой в исследуемых сечениях.

Таблица 6.1 – Сводные данные о ширине зазора между топливом и оболочкой

Этап облучения	Расстояние от низа ТС, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Зазор топливо-оболочка, мкм
1	20	5,8	0
	205	7	0
	430	5	0
2	20	9,3	0
	205	12,1	0
	430	8,8	0

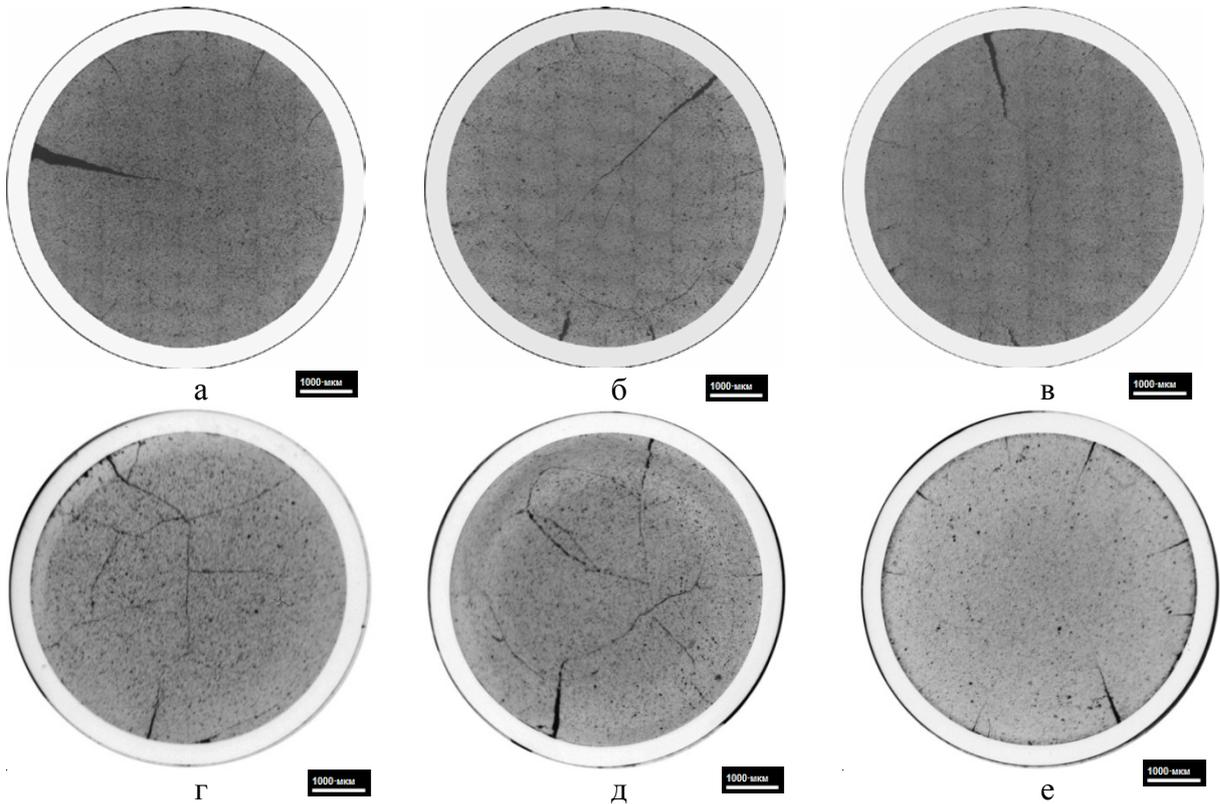


Рисунок 6.1 – Изображения макроструктуры твэлов после облучения до выгорания 7,0 (*а, б, в*) и 12,1 (*г, д, е*) % т.а.: *а, г* – верх; *б, д* – центр; *в, е* – низ активной части

Поскольку повреждающая доза к концу облучения не достигла инкубационного значения для начала процесса радиационного распухания материала оболочки, а давление газовой фазы на оболочку было несущественно, то основная причина увеличения диаметра твэлов – радиационная ползучесть оболочки из-за механических напряжений со стороны увеличивавшегося топливного сердечника. Поэтому плотный контакт топлива с оболочкой позволил для оценки геометрических изменений топливного сердечника в диаметральном направлении использовать данные, полученные методом профилометрии, которые дают представление об изменении внешнего диаметра оболочки по длине твэла. На рисунке 6.2 показаны результаты измерений внешнего диаметра оболочек по длине твэлов после первого и второго этапа облучения, соответственно. Максимальное увеличение диаметра наблюдалось в центральной плоскости активной части твэлов. Диаметр топливного сердечника был вычислен как разность между внешним диаметром твэла (по данным профилометрии) и удвоенной толщиной его оболочки (толщина оболочки твэла составляла 0,4 мм). Результаты определения диаметра топливного сердечника после первого и второго этапа облучения представлены в таблице 6.2. Для получения дополнительных данных об изменении диаметра топливного сердечника твэлов после второго этапа облучения были проведены планиметрические исследования поперечных сечений по фотоизображениям металлографических шлифов (таблица 6.3).

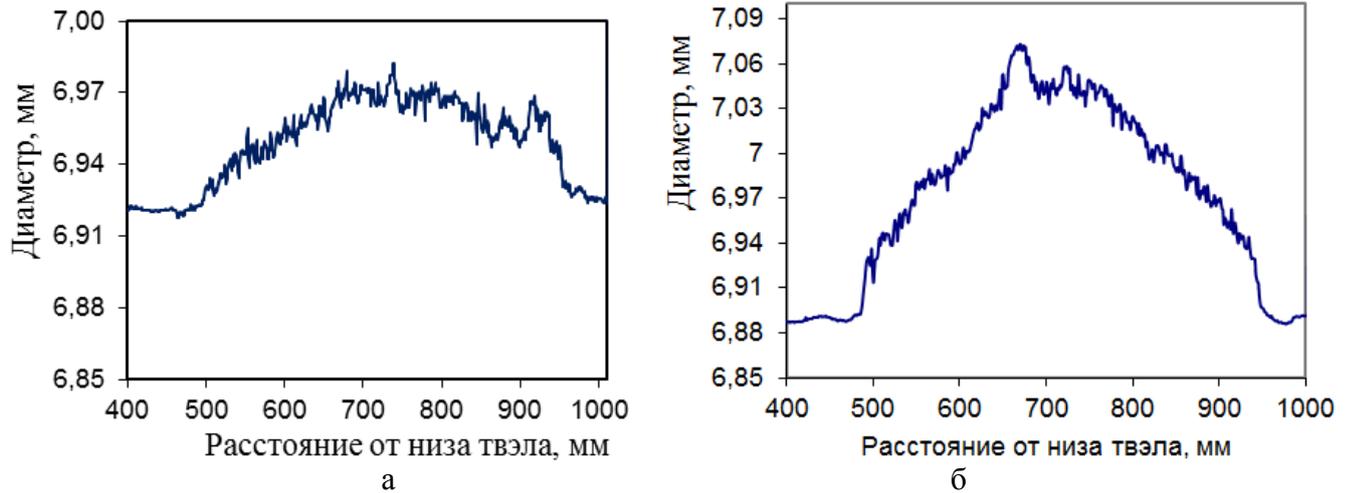


Рисунок 6.2 – Изменение диаметра оболочки по длине твэлов после первого (а) и второго (б) этапа облучения [18]

Таблица 6.2 – Диаметр топливного сердечника после облучения по данным профилометрии

Этап облучения	Расстояние от низа твэла, мм	Расстояние от низа топливного сердечника, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Диаметр ТС, мм
1	515	25	5,6	6,13
	540	50	5,9	6,14
	565	75	6,1	6,14
	590	100	6,5	6,15
	615	125	6,7	6,16
	640	150	6,8	6,16
	665	175	7,0	6,15
	690	200	7,0	6,17
	715	225	7,0	6,17
	740	250	6,8	6,17
	765	275	6,7	6,17
	790	300	6,5	6,17
	815	325	6,3	6,16
	840	350	6,0	6,17
	865	375	5,6	6,17
890	400	5,3	6,16	
915	425	5,0	6,15	

Продолжение таблицы 6.2

Этап облучения	Расстояние от низа твэла, мм	Расстояние от низа топливного сердечника, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Диаметр ТС, мм
2	515	25	9,5	6,13
	540	50	10	6,16
	565	75	10,5	6,18
	590	100	11	6,19
	615	125	11,6	6,2
	640	150	11,9	6,23
	665	175	12	6,26
	690	200	12,1	6,25
	715	225	12,0	6,25
	740	250	11,9	6,25
	765	275	11,6	6,25
	790	300	11,3	6,23
	815	325	10,7	6,22
	840	350	10,4	6,2
	865	375	9,9	6,2
	890	400	9,4	6,17
915	425	8,5	6,15	

Таблица 6.3 – Результаты определения диаметра топливного сердечника после облучения

Расстояние от низа ТС, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Диаметр ТС, мм		
		По площади топливной таблетки	Измерение по трём точкам	По данным профилометрии
100	11,0	6,18±0,04	6,20±0,03	6,19±0,02
250	11,9	6,22±0,04	6,24±0,03	6,25±0,02
275	11,6	6,21±0,04	6,23±0,03	6,25±0,02
350	10,4	6,19±0,04	6,20±0,03	6,20±0,02

Наблюдается хорошая сходимость результатов определения диаметра топливного сердечника, полученных разными методами, что подтверждает возможность использования данных профилометрических исследований для вычисления диаметра топливного сердечника в интересующих сечениях твэла.

Изменение размера топливного сердечника в аксиальном направлении, оценивали по данным гамма-сканирования, результаты которого позволили определить удлинение топливного сердечника после каждого этапа облучения. Топливный сердечник твэлов в

необлученном состоянии имел длину 450 ± 3 мм. Длина топливного сердечника после первого этапа облучения составила 455 ± 1 мм, после второго этапа облучения – 457 ± 1 мм. Оценка размерных изменений в аксиальном направлении проведена с учетом неравномерности удлинения топливного сердечника по высоте (формула 2.4). В таблице 6.4 представлены данные по изменению размеров топливного сердечника в диаметральной и аксиальном направлении. Ошибка определения локального изменения диаметра и удлинения составляет $\pm 0,1$ % и $\pm 0,2$ % соответственно. Во всех исследованных сечениях увеличение размеров топливных таблеток в диаметральной направлении больше, чем в аксиальном.

Таблица 6.4 – Изменение диаметра и высоты топливного сердечника

Этап облучения	Расстояние от низа ТС, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Локальное увеличение диаметра, %	Локальное удлинение, %
1	25	5,6	4,3	1,0
	50	5,9	4,4	1,1
	75	6,1	4,4	1,1
	100	6,5	4,6	1,2
	125	6,7	4,8	1,2
	150	6,8	4,8	1,2
	175	7,0	4,6	1,3
	200	7,0	4,9	1,3
	225	7,0	4,9	1,3
	250	6,8	4,9	1,2
	275	6,7	4,9	1,2
	300	6,5	4,9	1,2
	325	6,3	4,8	1,1
	350	6,0	4,9	1,1
	375	5,6	4,9	1,0
2	400	5,3	4,8	0,9
	425	5,0	4,6	0,9
	25	9,5	4,3	1,4
	50	10	4,8	1,5
	75	10,5	5,1	1,5
	100	11	5,3	1,6
	125	11,6	5,4	1,7
	150	11,9	6,0	1,7
175	12	6,5	1,7	
200	12,1	6,3	1,8	

Продолжение таблицы 6.4

Этап облучения	Расстояние от низа ТС, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Локальное увеличение диаметра, %	Локальное удлинение, %
2	225	12,0	6,3	1,7
	250	11,9	6,3	1,7
	275	11,6	6,3	1,7
	300	11,3	6,0	1,6
	325	10,7	5,8	1,6
	350	10,4	5,4	1,5
	375	9,9	5,4	1,4
	400	9,4	4,9	1,4
	425	8,5	4,6	1,2

6.2 Изменение плотности топлива в результате облучения

Плотность топлива до облучения составляла $12,16 \pm 0,05$ г/см³. Определение объемной плотности топлива проводили на образцах, вырезанных из нескольких сечений твэлов по высоте топливного столба после второго этапа облучения методом гидростатического взвешивания (таблица 6.5).

Таблица 6.5 – Результаты определения плотности топлива

Расстояние от низа топливного сердечника, мм	Локальное выгорание, % т.а.	1 измерение	2 измерение	3 измерение	Среднее значение, г/см ³
20	9,6	11,230	11,205	11,209	11,22±0,02
105	11,3	10,988	10,936	11,025	10,98±0,02
230	12,1	10,761	10,695	10,713	10,72±0,03
255	11,8	10,768	10,696	10,718	10,73±0,02
290	11,4	10,788	10,736	10,751	10,76±0,02
430	8,6	11,238	11,245	11,219	11,23±0,01

Полученные данные свидетельствуют об уменьшении плотности топлива в процессе облучения. Минимальное значение плотности получены в центральном сечении твэла (230 мм от низа топливного столба).

Далее будут представлены результаты оценки относительной величины распухания и его скорости по результатам изменения плотности и размеров топливного сердечника.

6.3 Определение распухания уран-плутониевого нитридного топлива

Для оценки изменения объема уран-плутониевого нитридного топлива после высокотемпературного облучения воспользовались формулами 2.5 и 2.6 (глава 2) и данными, полученными в п.п. 6.1 и 6.2. Результаты определения распухания, вычисленные по изменению геометрических характеристик и плотности топливного сердечника, представлены в таблицах 6.6 и 6.7, соответственно.

Таблица 6.6 - Результаты определения распухания по изменению геометрических характеристик топливного сердечника

Этап облучения	Расстояние от низа ТС, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Расчётная максимальная температура топлива, °С	Распухание, %	Скорость распухания, % / % выгорания
1	25	5,6	1240	9,7	1,7
	50	5,9	1380	10,2	1,7
	75	6,1	1450	10,2	1,7
	100	6,5	1540	10,8	1,7
	125	6,7	1600	11,2	1,7
	150	6,8	1660	11,2	1,6
	175	7,0	1720	11,0	1,6
	200	7,0	1750	11,7	1,7
	225	7,0	1760	11,7	1,7
	250	6,8	1750	11,5	1,7
	275	6,7	1720	11,5	1,7
	300	6,5	1660	11,5	1,8
	325	6,3	1620	11,0	1,7
	350	6,0	1550	11,3	1,9
	375	5,6	1470	11,1	2,0
	400	5,3	1350	10,6	2,0
425	5,0	1310	10,2	2,0	
2	25	9,5	1240	10,0	1,1
	50	10	1380	11,3	1,1
	75	10,5	1450	12,1	1,1
	100	11	1540	12,6	1,1
	125	11,6	1600	13,2	1,1
	150	11,9	1660	14,4	1,2
	175	12	1720	15,5	1,3
	200	12,1	1750	15,3	1,3

Продолжение таблицы 6.6

Этап облучения	Расстояние от низа ТС, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Расчётная максимальная температура топлива, °С	Распухание, %	Скорость распухания, % / % выгорания
2	225	12,0	1760	15,1	1,3
	250	11,9	1750	15,1	1,3
	275	11,6	1720	15,0	1,3
	300	11,3	1660	14,1	1,3
	325	10,7	1620	13,7	1,3
	350	10,4	1550	12,8	1,2
	375	9,9	1470	12,6	1,3
	400	9,4	1350	11,4	1,2
	425	8,5	1310	10,4	1,2

Таблица 6.7 – Результаты определения плотности и распухания топлива

Расстояние от низа ТС, мм	Локальное выгорание, % т.а.	Расчётная максимальная температура топлива, °С	Плотность, г/см ³		Распухание, %	Скорость распухания, % / % выгорания	
			Исходная	После облучения			
20	9,5	1240	12,16± 0,05	11,22±0,02	8,4±0,5	0,87±0,06	
105	11	1540		10,98±0,02	10,7±0,5	0,95±0,04	
230	12	1760		10,72±0,03	13,4±0,5	1,11±0,04	
255	11,9	1750		10,73±0,02	13,3±0,5	1,13±0,04	
290	11,3	1660		10,76±0,02	13,0±0,5	1,14±0,04	
430	8,5	1310			11,53±0,01	8,3±0,5	0,97±0,06

На рисунках 6.3 и 6.4 показано, как меняется значение распухания $U_{0,4Pu_{0,6}N}$ по высоте топливного сердечника после первого и второго этапа облучения, соответственно. Изменение распухания по высоте топливного сердечника коррелирует с распределениями температуры и выгорания (рисунки 2.2 и 2.3). Максимальное увеличение объема топливного сердечника, наблюдалось в центральных сечениях твэлов – на участках, где температура и выгорание достигли максимальных значений. Значения распухания топлива, рассчитанные по изменению геометрических характеристик топливного столба с использованием данных планиметрических и профилометрических измерений, хорошо согласуются между собой. Что касается данных, полученных через изменение плотности топлива в процессе облучения, то следует учесть тот факт, что при определении объемной плотности материала (по формуле 2.8) невозможно учесть

объем открытых связанных пор, которые выходят на поверхность образца, как было подробно описано в главе 2. Поскольку исследуемое топливо после высокотемпературного облучения имело развитую систему пор (рисунки 5.2-5.3), часть которых, образуя цепочки вдоль границ зерен, представляли собой связанные поры, открытые для проникновения жидкости при проведении измерений методом гидростатического взвешивания, то полученные значения плотности, вероятно, были несколько завышены, что в свою очередь привело к меньшим значениям распухания в отличие от значений, полученных другими методами. В дальнейших рассуждениях использовали данные, полученные по изменению геометрического объема топливного сердечника, как более полные и достоверные.

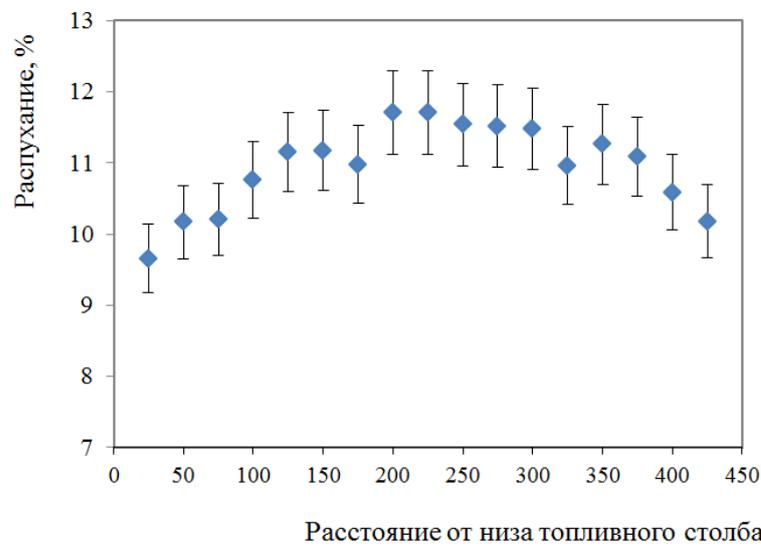


Рисунок 6.3 – Изменение распухания по высоте топливного сердечника после первого этапа облучения до выгорания 7,0 % т.а.

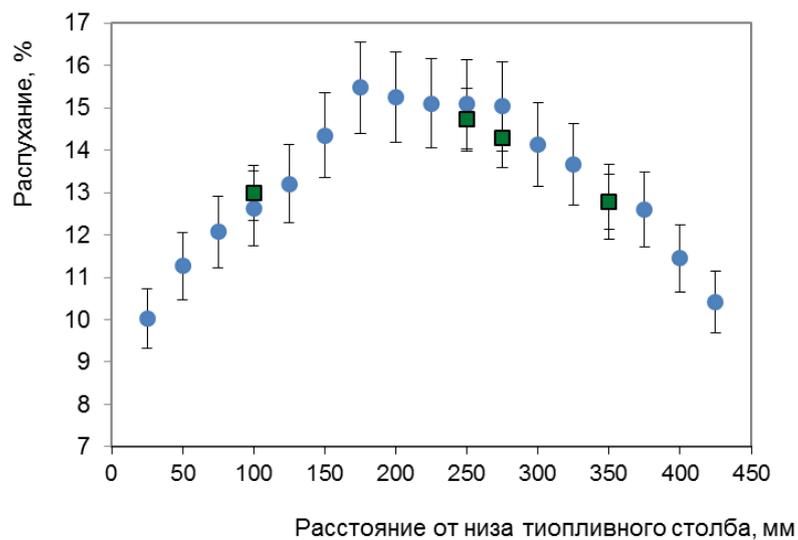


Рисунок 6.4 – Изменение распухания по высоте топливного сердечника после второго этапа облучения до выгорания 12,1 % т.а.: ● – диаметр топливного сердечника рассчитан по данным профилометрии; ■ – диаметр топливного сердечника рассчитан по данным планиметрии

6.5 Оценка скорости распухания топлива в свободном состоянии и в условиях сдерживания со стороны оболочки

Средняя скорость распухания топлива за весь период облучения в сечении с максимальным выгоранием составила 1,3 %/% выгорания, что соответствовало максимальному значению распухания 15,3 % (таблица 6.6).

Скорость распухания была выше на первом этапе облучения, что связано с более высокой рабочей температурой и отсутствием ограничений со стороны оболочки твэла, и согласовывается литературными данными [15]. Поэтому при анализе распухания топливной композиции $U_{0,4}Pu_{0,6}N$, облучённой в твэлах с гелиевым подслоем, необходимо было выделить две стадии:

- 1) стадию свободного распухания до контакта топлива с оболочкой,
- 2) стадию распухания в условиях механического сдерживания со стороны оболочки твэла.

До наступления контакта топлива с оболочкой (на первом этапе облучения) скорость радиационного распухания принимала максимальное значение, поскольку топливные таблетки, находясь в свободном состоянии внутри оболочки твэла, не испытывали внешнего давления и благодаря низкой теплопроводности зазора между топливом и оболочкой, заполненного гелием, рабочая температура в центре топливного сердечника на этой стадии достигала максимального значения (1760 °С).

Продолжение облучения привело к сокращению ширины зазора между топливом и оболочкой твэла вплоть до полного его исчезновения. Постепенное увеличение теплопроводности зазора привело к снижению рабочей температуры топлива, значение которой к концу облучения в центральной части топливного сердечника составило 1150 °С. После установления контакта топлива с оболочкой продолжение распухания топливного сердечника привело к увеличению диаметра твэла. Но в условиях сжимающих напряжений со стороны оболочки произошло снижение скорости распухания топлива (рисунок 6.5).

Анализ результатов профилометрии вместе с результатами измерения зазора между топливом и оболочкой при металлографических исследованиях поперечных сечений твэлов (таблицы 6.1, 6.2), а также данных, представленных на рисунке 6.5, показал, что для данной конструкции твэла и условий облучения контакт топлива с оболочкой происходил при значении локального (в сечении) выгорания около 5 % т. а.

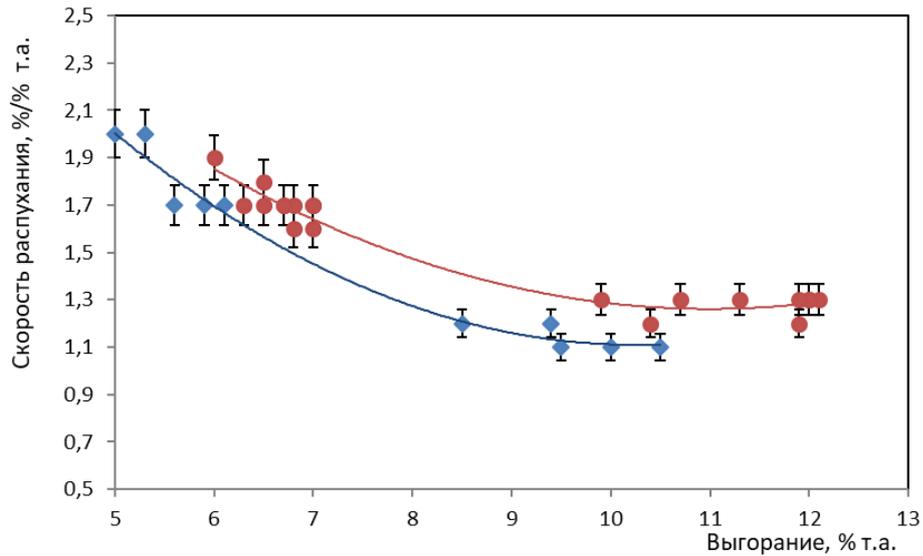


Рисунок 6.5 – Изменение средней скорости распухания топлива с ростом выгорания при различных значениях максимальной температуры в центре топливного сердечника: ● – от 1540 до 1760 °С, ◆ – от 1240 до 1450 °С

Экспериментальная зависимость средней скорости распухания за соответствующий интервал облучения, полученная для центральных сечений по высоте твэла (облученных при температуре от 1540 до 1760 °С) может быть описана функцией $y = ax^2 + bx + c$, где $a = 0,0238$, $b = 0,5225$, $c = 4,1326$. В соответствии с полученной экспериментальной зависимостью средняя скорость «свободного» распухания в центральном сечении твэла на этапе облучения до выгорания 5 % т.а. составляет около 2,1 %/% выгорания, на этапе облучения до выгорания 12 % т.а. около 1,3 %/% выгорания. Значение скорости распухания в условиях сдерживания со стороны оболочки твэла в диапазоне выгораний от 5 до 12,1 % т.а. составило 0,7 %/% выгорания (таблица 6.8).

Таблица 6.8 - Результаты определения распухания топлива при высокотемпературном облучении нитридного топлива в составе твэлов с гелиевым подслоем

Стадия распухания	Диапазон выгорания, % т.а.	Распухание, %	Скорость распухания, %/% выгорания
Свободное распухание	0,0-5,0	10,5	2,1
Сдерживаемое распухание	5,0-12,1	4,8	0,7

Распухание топливной композиции $U_{0,88}Pu_{0,12}N$ в твэле с гелиевым подслоем после облучения в составе ОУ-2 до максимального выгорания 4,8 % т.а. при температуре 1145 °С, составило 7,5 %. Зазор между топливом и оболочкой твэла при данных условиях облучения не исчерпан [73], т.е. скорость распухания, равная 1,6 %/% выгорания, была реализована в свободном состоянии топливного сердечника, без ограничений со стороны оболочки.

6.4 Механизмы радиационного распухания нитридного топлива в условиях высокотемпературного облучения

При исследовании микроструктуры, кристаллической структуры и элементного состава СНУП топлива после высокотемпературного облучения было подтверждено, что увеличение размеров топливного сердечника происходило за счет продуктов деления, находящихся в твердом растворе и в виде вторых фаз, образования и роста всех разновидностей газовых пор, изменения технологической пористости и образования трещин. В частности, с помощью сканирующей электронной микроскопии и электронно-зондового микроанализа было показано, что основные изменения микроструктуры топлива обусловлены образованием пористости и выделений вторых фаз, состоящих из твердых продуктов деления, концентрация которых выше предела растворимости в кристаллической решетке UPuN.

Для количественной оценки изменения пористости по радиусу топливных таблеток в центральных сечениях твэлов были использованы электронно-микроскопические изображения микроструктуры. На таких изображениях отчетливо просматриваются не только технологические поры, но и мелкие газовые поры, образованные в процессе облучения. В качестве примера на рисунке 6.6 (слева) представлены изображения микроструктуры топлива, характерной для трех положений вдоль радиуса топливной таблетки, а также идентификация пор с помощью масок в программе Видео-Тест Структура 5.2 (рисунок 6.6 справа).

На рисунке 6.7 представлено распределение пористости вдоль радиуса топливного сердечника в сечениях на высоте 205 мм (а) и 280 мм (б) от низа топливного столба. Пористость топлива увеличилась от исходного значения $15,1 \pm 0,4$ % до $23,5 \pm 1,6$ % и $21,0 \pm 1,5$ % после второго этапа облучения в сечениях твэла на высоте соответственно 205 мм и 280 мм от низа топливного столба.

Распределение пористости вдоль радиуса топливного сердечника коррелирует с распределением температуры и газообразных продуктов деления (рисунок 5.5) – в направлении центра топливной таблетки с ростом температуры диффузионная подвижность атомов газообразных продуктов деления увеличивалась, быстрее проходили процессы объединения пор и выход ГПД через открытые каналы пор.

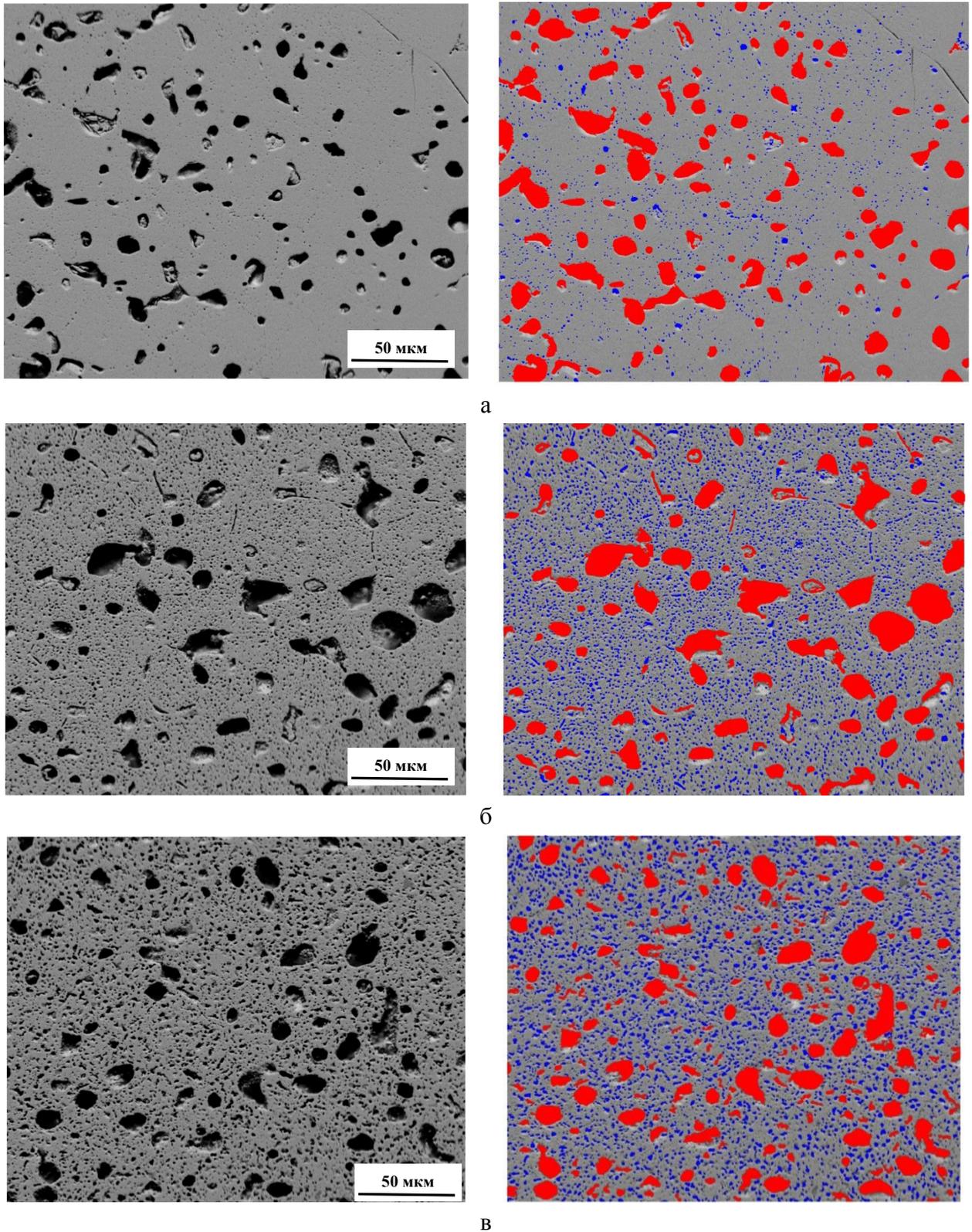


Рисунок 6.6 – Изображения микроструктуры топлива $U_{0,4}Pu_{0,6}N$ и результат выделения пор в программе Видео-Тест Структура 5.2: а – вблизи поверхности таблетки, б – на середине радиуса, в – в центре таблетки (красный цвет на изображении – технологические поры, синий цвет – «газовые» поры, образовавшиеся в процессе облучения)

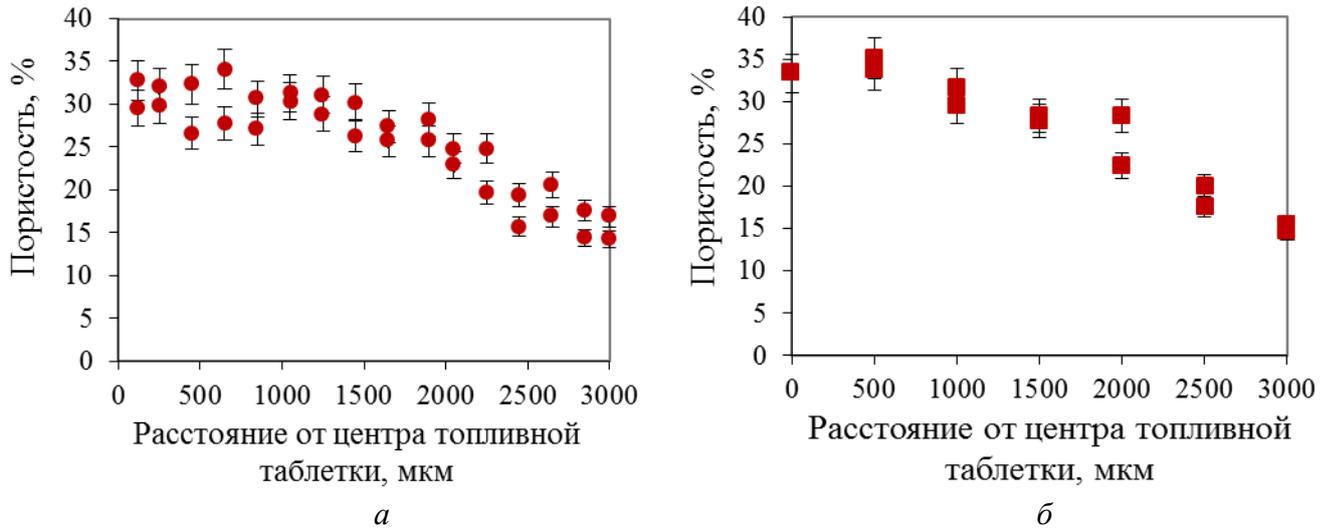


Рисунок 6.7 – Распределение пористости СНУП топлива $U_{0,4}Pu_{0,6}N$ по радиусу топливных таблеток на высоте 205 (а) и 285 (б) мм от низа ТС после второго этапа облучения [18]

Полученное значение пористости топливных таблеток в центральном сечении твэла (205 мм от низа топливного столба) позволило определить вклад в распухание за счет увеличения объема пор. Для этого воспользовались формулой 2.13:

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_r = \Pi \cdot \left(\frac{\Delta V}{V_0} + 1\right) - \Pi_0 = 23,5 \cdot (0,153 + 1) - 15,1 = 12 \%$$

В соответствии с формулой 2.9 скорость распухания топлива за счет увеличения объема твердой фазы составила, таким образом, 3,3 %. Поскольку увеличение объема твердой фазы происходило в том числе за счет увеличения объема кристаллической решетки $UPuN$, был отдельно вычислен вклад этой составляющей.

Данные об изменении параметра кристаллической решетки были представлены в таблице 5.3. Распухание топлива за счет изменения объема кристаллической решетки $UPuN$ рассчитано следующим образом:

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \frac{a^3 - a_0^3}{a_0^3} \cdot 100\% = \frac{0,49180^3 - 0,49001^3}{0,49001^3} = 1,1\%,$$

где a_0 , a – ПКР $U_{0,82}, Pu_{0,18}N$ до и после облучения, соответственно, нм.

Таким образом, изменение объема топлива за счет увеличения объема кристаллической решетки вследствие замещения в ней разделившихся атомов урана и плутония новыми атомами продуктов деления составило 1,1 %. Оставшиеся 2,2 % в увеличении объема твердой фазы топлива обусловлены образованием продуктами деления вторых фаз. Оценить какой объем занимают те или иные элементы ПД в состоянии, когда они растворены в матрице топлива и когда они образуют включения сделать сложно и в данной работе такая оценка не проводилась.

Данные, полученные при разделении механизмов распухания уран-плутониевого нитридного топлива после высокотемпературного облучения, представлены в таблице 6.9. В

соответствии с результатами определения распухания и пористости топлива в сечении твэла, облученного в составе ОУ-2 до выгорания 4,8 % т.а., скорость распухания топлива за счет увеличения объема твердой фазы и увеличения объема пор составляла 0,3 и 1,3 % / % выгорания. Для твэла, облученного до выгорания 12,1 % т.а., получены схожие значения (таблица 6.9).

Таблица 6.9 – Распухание СНУП топлива после высокотемпературного облучения

Параметр	Значение	
Расчетное локальное выгорание, % т.а.	4,8	12,1
Максимальная температура облучения, °С	1145	1760
Распухание топлива, %	7,5	15,3
Вклад в распухание, %:		
– за счет увеличения объема твердой фазы,	1,3	3,3
– за счет увеличения объема пор	6,2	12,0
Скорость распухания, % / % выгорания	1,6	1,3*
Вклад в скорость распухания, % / % выгорания:		
– за счет увеличения объема твердой фазы,	0,3	0,3
– за счет увеличения объема пор	1,3	1,0

* - среднее за весь период значение (с учетом стадии сдерживаемого распухания при выгорании более 5 % т.а.)

Диффузионная подвижность газообразных продуктов деления при высокотемпературном облучении привела к формированию развитой системы пор в уран-плутониевом нитридном топливе, что дало существенный вклад в его распухание. Кроме того произошло изменение структуры топлива, связанное с выходом газообразных (рисунок 5.5) и летучих (рисунок 5.6) продуктов деления из топлива в свободный объем твэла, а также выходом части твердых продуктов деления и формированием новых фаз (рисунок 5.8). Этим объясняется сравнительно небольшой вклад в общее распухание топливной композиции за счет увеличения объема твердой фазы. Полученные результаты согласуются с литературными данными [6, 24, 26, 37, 50] и подтверждают, что вклад «твердого» распухания снижается с ростом температуры.

6.5 Выводы по главе 6

При достигнутом максимальном выгорании 12,1 % т.а. распухание уран-плутониевого нитридного топлива, облученного в составе твэлов с гелиевым подслоем при максимальной температуре 1760 °С, составляло 15,3 %. Оценка вклада разных факторов в общую величину распухания показала, что в твэлах с газовым подслоем и, соответственно высокой рабочей температурой, большая диффузионная подвижность продуктов деления способствовала формированию развитой системы газовых пор, большого количества самостоятельных фаз из нерастворившихся продуктов деления, выходу части летучих и газообразных продуктов деления в образовавшиеся поры и в свободный объем твэла. В результате этих процессов значения скорости распухания нитридного топлива за счет увеличения объема пор и твердой фазы составляли соответственно 1,0 и 0,3 %/% выгорания.

Контакт топлива с оболочкой для данной конструкции и условий облучения твэлов произошел при выгорании около 5 % т.а., поэтому при анализе распухания было выделено две стадии – стадия свободного распухания топлива и стадия распухания в условиях контакта с оболочкой твэла. Скорость «свободного» распухания топлива максимальна за весь период облучения и составляла около 2,1 %/% выгорания. После исчезновения зазора между топливным сердечником и оболочкой твэла скорость распухания существенно снизилась и в диапазоне выгорания от 5 до 12,1 % т.а. составила 0,7 %/% выгорания, что было связано со снижением рабочей температуры топлива и действием сжимающих напряжений со стороны оболочки. Средняя скорость распухания за весь период облучения составляла 1,3 %/% выгорания.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ результатов исследований уран-плутониевого нитридного топлива, облучённого в опытном реакторе БОР-60 в составе твэлов с жидкометаллическим (свинцовым) и газовым (гелиевым) заполнением при максимальной температуре в центре сердечника соответственно до 870 и 1760 °С с поэтапным увеличением уровня выгорания до 5,5 и 12,1 % т.а. в рамках научных программ по изучению свойств и обоснованию работоспособности плотного топлива для проектируемых реакторов на быстрых нейтронах, позволяет сделать следующие выводы:

1. После облучения уран-плутониевого нитридного топлива в составе твэлов с жидкометаллическим заполнением при температуре ниже 870 °С до уровня выгорания 3,9 % т.а. наработанные продукты деления находятся в основном в твёрдой фазе, обуславливая увеличение её объёма. Выход ксенона и цезия в технологические поры не превышал соответственно 10 и 6 % от образовавшегося количества. Максимальная скорость распухания составила 1,4 %/% выгорания, 1,0 % из которых обусловлен увеличением объёма твёрдой фазы.

2. После достижения выгорания 5,5 % т.а. на отдельных участках топливных таблеток, облучённых при температуре ниже 870 °С, обнаружены характерные признаки реструктуризации нитридного топлива – измельчение зерна до субмикронных размеров с выходом ксенона в сформировавшиеся поры. Среднее значение скорости распухания топлива при выгорании 5,5 % т.а. достигло 1,5 % / % выгорания, 0,7 % из которых обусловлено увеличением объёма пор, 0,8 % – увеличением объёма твёрдой фазы, включая 0,1 % за счёт увеличения параметра кристаллической решётки.

3. В уран-плутониевом нитридном топливе после облучения при максимальной температуре 1760 °С до глубины выгорания 12,1 % т.а. выход ксенона и цезия из твёрдой фазы составил соответственно 65 и 62 % от образовавшихся количеств. Распухание топлива происходило как за счёт увеличения объёма твёрдой фазы, в основе которой – многокомпонентный твёрдый раствор, содержащий выделения вторых фаз, так и за счёт формирования пористости.

4. При анализе распухания топлива, облучённого при максимальной температуре 1760 °С до глубины выгорания 12,1 % т.а., выделены две стадии – стадия свободного распухания до контакта топлива с оболочкой и стадия распухания в условиях механического сдерживания со стороны оболочки твэла. Показано, что для данной конструкции и условий облучения твэлов контакт топлива с оболочкой наступил при значении локального (в сечении) выгорания около 5 % т. а., при этом средняя скорость распухания топлива до контакта с оболочкой составила 2,1 %/% выгорания. После контакта топливного сердечника с оболочкой твэла произошло снижение скорости распухания, и среднее за весь период облучения значение

составило 1,3 %/% выгорания, из которых за счёт увеличения объёма пор – 1,0 %, за счёт набухания твёрдой фазы 0,3 %, включая 0,1 % за счёт увеличения параметра кристаллической решётки.

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ

ГПД	-	газообразные продукты деления,
ГЦК	-	гранцентрированная кубическая (кристаллическая решетка),
КПРЭО	-	комплексная программа расчетно-экспериментального обоснования,
КР	-	кристаллическая решетка,
НИОКР	-	научно-исследовательские и опытно-конструкторские работы,
ОЯТ	-	отработавшее ядерное топливо,
ПД	-	продукты деления,
ПКР	-	параметр кристаллической решетки,
ППП	-	пик полного поглощения,
СНУП	-	смешанное нитридное уран-плутониевое (топливо),
т.а.	-	тяжелые атомы,
ТВС	-	тепловыделяющая сборка,
ТВЭЛ	-	тепловыделяющий элемент,
ТКЛР	-	температурный коэффициент линейного расширения,
ТП	-	теоретическая плотность
ТС	-	топливный сердечник,
ФЦП	-	федеральная целевая программа,
ЭЯ	-	элементарная ячейка.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адамов, Е.О. Концептуальные положения стратегии развития ядерной энергетики России в перспективе до 2100 г / Е.О. Адамов [и др.] // Атомная энергия. – 2012. – № 112 (6). – С. 319–330.
2. Комплексная программа расчетно-экспериментального обоснования плотного топлива для реакторов на быстрых нейтронах (2-я редакция), утв. заместителем генерального директора-директором БУИ ГК «Росатом» 24.03.2015: офиц. текст. – М., 2015. – 57 с.
3. Frost, B. Materials Science and Technology. A Comprehensive Treatment / B. Frost [et al.] – Wiley: VCH, 1994. – 558 p
4. Алексеев, С.В. Нитридное топливо для ядерной энергетики: учеб. Пособие / С.В. Алексеев, В.А. Зайцев. – М.: Техносфера, 2013. – 240 с.
5. Котельников, Р.Б. Высокотемпературное ядерное топливо: учеб. пособие / Р.Б. Котельников [и др.] – 2-е изд. – М.: Атомиздат, 1978. – 432 с.
6. Arai, Y. Development status of metallic dispersion and non-oxide advanced and alternative fuels for power and research reactors / Y. Arai [et al.] // IAEA-TECDOC-1374 (Vienna, Sept. 2003). – Vienna - 2003. – 104 p.
7. Iwai, T. Post-irradiation examinations of uranium-plutonium mixed nitride fuels irradiated in JMTR / T. Iwai // Report JAERI – Research 2000-2010 (Japan, Jan. 2000). – Japan, 2000. – P. 110.
8. Orlov, V.V. Mononitride fuel and large scale nuclear power industry / V.V. Orlov [et al.] // IAEA-TECDOC-970 (Vienna, Oct. 1996). – Vienna, 2003. – P. 155-169.
9. Iwai, T. Fission gas release of uranium-plutonium mixed nitride and carbide fuels / T. Iwai [et al.] // IAEA-TECDOC-970 (Vienna, Oct. 1996). – Vienna, 2003. – P. 137- 155.
10. Masaki, I. Irradiation Performance of Uranium-Plutonium Mixed Nitride Fuel Pins in JOYO / I. Masaki [et al.] // Global-2003 (New Orleans, LA). – 2003. – P. 1694-1703.
11. Fromont, M. Behaviour of Uranium-Plutonium Mixed Nitride and Carbide Fuels Irradiated in Phenix / M. Fromont [et al.] // Global-2005 (Tokyo, Japan). – 2005. – P. 2562-2571.
12. Грачев, А.Ф. Исследования смешанного нитридного уран-плутониевого топлива в рамках проекта «Прорыв» / А.Ф. Грачев [и др.] // Атомная энергия. – 2017. – № 122 (3). – С. 156-167.
13. Звир, Е.А. Результаты исследования твэлов комбинированной ЭТВС-1 после опытной эксплуатации в реакторе БН-600 / Е.А. Звир [и др.] // Сборник трудов АО «ГНЦ НИИАР». – 2017. – № 3. – С. 76-84.

14. Звир, Е.А. Результаты исследования экспериментального твэла с уран-плутониевым нитридным топливом после второго этапа облучения в реакторе БОР-60 / Е.А. Звир [и др.] // Сборник трудов АО «ГНЦ НИИАР». – 2017. – № 3. – С. 66-75.
15. Поролло, С.И. Анализ экспериментальных данных о газовыделении и распухании облученного в реакторе БР-10 моонитридного уранового топлива / С.И. Поролло [и др.] // Атомная энергия. – 2016. – № 121 (6). – С. 326-332.
16. Aczel, A.A. Quantum oscillations of nitrogen atoms in uranium nitride [Электронный ресурс] / А.А. Aczel // Nat Commun. – 2012. – Режим доступа: <https://doi.org/10.1038/ncomms2117>.
17. Бобков, В.П. Справочник по свойствам материалов для перспективных реакторных технологий: Справочник [под ред. В. М. Поплавского] / В. П. Бобков [и др.]. – М.: ИздАТ, Т. 6: Свойства ядерных топливных композиций. – 2013. – 367 с.
18. Беляева, А.В. Результаты испытаний смешанного моонитридного топлива $U_{0,55}Pu_{0,45}N$ и $U_{0,4}Pu_{0,6}N$ в реакторе БОР-60 до выгорания ~12 % тяж. ат. / А.В. Беляева [и др.] // Атомная энергия. – 2011. – № 110 (6). – С. 332–346.
19. Годин, Ю.Г. Физическое материаловедение: учебник для вузов [под ред. Б.А. Калина] / Ю.Г. Годин [и др.]. – М.: МИФИ, Т. 7, часть 2: Ядерные топливные материалы. – 2008. – 604 с.
20. Matthews, R.V. Fabrication and testing of uranium nitride fuel for Space Power Reactor / R.V. Matthews [et al.] // J. Nucl. Mater. – 1988. – № 151. – P. 334-344.
21. Matzke, Hj. Science and Technology of Advanced LMFBR Fuels / Hj. Matzke [et al.] // A Monograph on Solid State Physics, Chemistry and Technology of carbides, nitrides and carbonitrides of Uranium and Plutonium (Amsterdam). – 1986.
22. Любимов, Д.Ю. Термодинамическое моделирование фазового состава смешанного уран-плутониевого моонитрида при облучении быстрыми нейтронами до выгорания 80 ГВтсут/т и температуре 900-1400 К / Д.Ю. Любимов [и др.] // Атомная энергия. – 2013. – №. 114 (4). – С.198-202.
23. Бугаенко, Л.Т. Почти полная система средних ионных кристаллографических радиусов и ее использование для определения потенциалов ионизации / Л.Т. Бугаенко [и др.] // Вестн. Моск. Ун-та. сер.2. Химия. – 2008. – № 49 (6). – С. 363-383.
24. Arai, Y. Nitride fuels / Y. Arai // Comprehensive Nuclear Materials. – 2012. – №. 3. – P. 41-54.
25. Булатов, Г.С. Термодинамический анализ химического и фазового составов облученного быстрыми нейтронами уран-плутониевого нитрида в зависимости от температуры и выгорания / Г.С. Булатов [и др.] // Материаловедение. – 2009. – № 1, – С. 2-6.

26. Thetford, R. The chemistry and physics of modelling nitride fuels for transmutation / R. Thetford [et al.] // *J. Nucl. Mater.* – 2003. – № 320 (203). – P. 44-53.
27. Schram, R.P.C. Chemical form of fission products in high burnup fuels / R.P.C. Schram [et al.] // IAEA-TECDOC-1036 (Tokyo, Oct. 1998). – Tokyo, 1998. – P. 245-257.
28. Powell, H.J. Fission product distribution in fast reactor oxide fuels / H.J. Powell // Behaviour and chemical state of irradiated ceramic fuels. IAEA. – Vienna, Austria. – 1974. – P. 379-392.
29. Blank, M.L. Stimulation of the de novo pathway for the biosynthesis of platelet activating factor (PAF) via cytidylyltransferase activation in cells with minimal endogenous PAF production / M.L. Blank [et al.] // *J. Biol. Chem.* – 1988. – № 263. – P. 5656-5661.
30. Любимов, Д.Ю. Влияния продуктов деления на химический и фазовый составы моонитрида урана / Д.Ю. Любимов [и др.] // *Материаловедение.* – 2004. – № 2. – С. 8-13.
31. Arai, Y. The effect of oxygen impurity on the characteristics of uranium and uranium-plutonium mixed nitride fuels / Y. Arai [et al.] // *J. Nucl. Mater.* – 1993. – № 202 (1-2). – P. 70-78.
32. Любимов, Д.Ю. Термодинамическое моделирование фазового состава смешанного уран-плутониевого моонитрида с примесью кислорода при облучении быстрыми нейтронами выгораний в 140 ГВт сут/т и температуре 900–1400 К / Д.Ю. Любимов [и др.] // *Атомная энергия.* – 2015. – № 118. – С. 24-29.
33. Троянов, В.М. Перспективы использования нитридного топлива в быстрых реакторах с замкнутым топливным циклом / В.М. Троянов [и др.] // *Атомная энергия.* – 2014. – № 117 (2). – С. 69-75.
34. Рогозкин, Б.Д. Моонитридное топливо для быстрых реакторов / Б.Д. Рогозкин [и др.] // *Атомная энергия.* – 2003. – № 95 (3). – С. 208-221.
35. Русинкевич, А.А. Некоторые особенности термодинамики нитридного топлива при выгорании / А.А. Русинкевич [и др.] // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика ядерных реакторов.* – 2015. – № 2. – С. 114-121.
36. Moore, J.P. Thermal conductivity, Electrical Resistivity, and Seebeck Coefficient of Uranium Mononitride / J.P. Moore [et al.] // *J. Amer. Ceram. Soc.* – 1970. – № 53 (2). – P. 76-82.
37. Feng, B. Steady-state fuel behavior modeling of nitride fuels in FRAPCON-EP / B. Feng [et al.] // *J. Nucl. Mater.* – 2012. – № 427. – P. 30-38.
38. Olander, D.R. Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements: United States of America ERDA Technical Information Center / D.R. Olander. – Oak Ridge: Tennessee. – 1976. – 603 p.
39. Bauer, A. Nitride fuels: Properties and Potentials, Reactor Technology / A. Bauer // *J. Reactor Technol.* – 1972. – № 15 (2). – P. 87.

40. Bauer, A.A. He-and Na-Bonded Mixed Nitrite Fuel / A.A. Bauer [et al.] // Performance in Proceeding of International Conference on FBR Fuel Performance (Monterey, Mar. 1979). – Monterey, 1979. – P. 827.
41. Kosuke, T. Fission gas release and swelling in uranium-plutonium mixed nitride fuels / T. Kosuke [et al.] // J. Nucl. Mater. – 2004. – № 327. – P. 77-87.
42. Крюков, Ф.Н. Результаты исследований экспериментальных твэлов с уран-плутониевым нитридным топливом, облученных в реакторе БОР-60 до максимального выгорания 12,1 % т.а. / Ф.Н. Крюков [и др.] // IX Российская конференция по реакторному материаловедению: Тез. докл. – Димитровград: ОАО «НИИАР» (Димитровград, сен. 2009). – Димитровград, 2009. – С. 50-52.
43. Голованов, В.Н. Результаты послереакторных исследований нитридного топлива и топлива на основе инертных матриц, облучённого в реакторе БОР-60 / В.Н. Голованов [и др.] // Вопросы атомной науки и техники. Серия: материаловедение и новые материалы. – 2006. – № 2 (67). – С. 145-154.
44. Рогозкин Б.Д. Послереакторные исследования моонитридного и оксидного плутониевого топлива с инертной матрицей выгоранием~19% тяж. ат. в БОР-60 / Б.Д. Рогозкин [и др.] // Атомная энергия. – 2010. – № 109 (6). – С. 304-307.
45. Дегальцев, Ю.Г. Поведение высокотемпературного ядерного топлива при облучении: учеб. пособие / Дегальцев, Ю.Г. [и др.]. – М.: Энергоатомиздат. – 1987. – 207 с.
46. Завгородний, А.Я. Радиационное распухание металлического уранового топлива: аналитический обзор / А.Я. Завгородний, Ю.М. Головченко – Димитровград: АО «ГНЦ НИИАР». – 1975. – 254 с.
47. Конобеевский, С.Т. Влияние облучения на материалы: учеб. пособие / С.Т. Конобеевский. – М.: Атомиздат. – 1967. – 123 с.
48. Косенков, В.М. Рентгенография в реакторном материаловедении – 2-е изд., перераб. и доп. – Ульяновск: УлГУ, 2006 . – 168 с.
49. Benedict, U. The solubility of solid fission products in carbides and nitrides of uranium and plutonium / U. Benedict. – Euratom Report EUR-5766. – 1977. – P. 125.
50. Долгодворов, А.П. Моделирование поведения продуктов деления в нитридном топливе: дис. ...канд. тех. наук : 05.14.03 / Долгодворов Алексей Павлович – М., 2017 – 128 с.
51. Rogozkin, B.D. Carbide and Nitride Mixed U/Pu Fuels for Fast Reactors / B.D. Rogozkin [et al.] // IAEA-TECDOC 840 (Obninsk, Nov. 1994). – Obninsk, 1995. – P.7-11.
52. Rechetnikov, F.G. Production and studies of U and Pu nitride as nuclear fuel and forms of weapon's grade plutonium storage / F.G. Rechetnikov [et al.]. – Global-95. International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cicle Systems. – 1995. – P. 1359.

53. Ватулин, А.В. Мононитридное уран-плутониевое топливо быстрых реакторов со свинцовым теплоносителем [Электронный ресурс] / А.В. Ватулин [и др.] // Вестник МИФИ. – 2009. – 1 электрон.опт диск (CD-ROM).
54. Методика измерений распределения скорости счёта излучения радионуклидов по длине стержневых образцов гамма-спектрометрическим методом в радиационно-защитной камере РЗК-1. МИ Рег. № 1172. Реестр методик ОАО «ГНЦ РФ НИИАР», Димитровград, 2018 г.
55. Методика измерения объёма и давления газа в твэле и свободного объёма твэла на установке лазерного прокола в защитной камере К-5. Рег. № 1164. Реестр методик ОАО «ГНЦ РФ НИИАР», Димитровград, 2018 г.
56. Методика измерения. Твэлы. Масс-спектрометрический метод определения объёмных долей газов в пробах газовой фазы. МИ Рег. № 1200. Реестр методик ОАО «ГНЦ НИИАР», Димитровград, 2018 г.
57. Измерение геометрических параметров изделий и элементов их макроструктуры с использованием системы анализа изображений, получаемых на микроскопе УМСД-2. Методика измерений, Рег. № 1163. Реестр методик АО «ГНЦ НИИАР», Димитровград, 2018 г.
58. Golovanov Using Scanning Electron Microscope PHILIPS XL 30 ESEM-TMP installed in the Hot Cell / V.N. Golovanov [et al.]. // Report on HOTLAB Plenary Meeting. – 2004. P. 121-127.
59. МИ рег.№ 1165 по Реестру. Материалы и изделия атомной техники. Методика измерений рег.№ 133-18 (ОМИТ). Методика измерения геометрических характеристик микроструктуры с использованием видеосистемы анализа изображений на микроскопах МДРЗК и Leica Telatom 4. Свидетельство о МА рег.№ 1165-01.00050-2014-2017 (рег. № 668) от 10.10.2018
60. Электронно-зондовый рентгеноспектральный микроанализ топливных композиций ядерных энергетических реакторов: Монография / В.Н. Голованов [и др.]. - Ульяновск: УлГУ, 2006. – 143 с.
61. Методика испытаний рег.№ 698 «Материалы атомной техники. Определение характеристик кристаллической структуры методом рентгенографии».15502000100. Свидетельство о МА рег.№ 106-13 (рег.№ 09-13) от 25.01.2018.
62. Методика измерения геометрических параметров облучённых стержневых изделий длиной до 4 метров в защитной камере К-1. МИ, Рег. № 1166. Реестр методик «ГНЦ РФ НИИАР», Димитровград, 2018.
63. ISO 9278:2008 [Electronic resource]. Nuclear energy. Uranium dioxide pellets. Determination of density and volume fraction of open and closed porosity. — Web site of British Standards Institution. — Access mode: by subscription. — URL:

<https://shop.bsigroup.com/ProductDetail?pid=000000000030125442> (date of the application: 08.06.2021).

64. ГОСТ 2211-65. Межгосударственный стандарт огнеупоры и огнеупорное сырье Методы определения плотности. - М.: ИПК Издательство стандартов, 2004. – 17 с.
65. Беляева, А.В. Особенности распухания уран-плутониевого нитридного топлива при низкотемпературном облучении в быстром реакторе до выгорания 5,5 % тяж.ат. / А.В. Беляева [и др.] // Атомная энергия. – 2017. – № 122 (5). – С. 263–266.
66. Беляева, А.В. Послереакторные исследования твэлов с нитридным уран-плутониевым топливом с газовым и жидкометаллическим подслоем / А.В. Беляева [и др.] // Атомная энергия. – 2021. – №. – С.
67. Tasaka, K. JNDC Nuclear Data Librari of Fission Products-Second Version / K. Tasaka [et al.]. – JAERI-1320. – 1990. – 265 p.
68. Ray, L. An electron microscopy study of the RIM structure of a UO₂ fuel with a high burnup of 7,9 % FIMA / L. Ray [et al.] // J. Nucl. Mater. – 1997. – № 245. – P. 115-123.
69. Spino, J. Detailed characterization of the rim microstructure in PWR fuels in the burn-up range 40-67 GWd/tM / J. Spino [et al.] // J. Nucl. Mater. – 1996. – № 231. – P. 179-190.
70. Coquerelle, M. Limits and Prospects for High Burn-up LWR fuels / M. Coquerelle [et al.]. – ITU Annual Report (EUR 17296). – 1996. – P. 235.
71. Беляева, А.В. Радиационное распухание уран-плутониевого нитридного топлива в экспериментальных твэлах с газовым и жидкометаллическим наполнением / А.В. Беляева [и др.] // Сборник трудов АО «ГНЦ НИИАР». – 2017. – № 3. – С. 17–29.
72. Справочник по свойствам материалов для перспективных реакторных технологий / В. П. Бобков [и др.] ; под общ. ред. В. М. Поплавского. – Москва: ИздАТ, Т. 5: Свойства реакторных сталей и сплавов, 2014. – с. 584.
73. Грачев, А.Ф. Особенности радиационного распухания уран-плутониевого нитридного топлива в экспериментальных твэлах с гелиевым и свинцовым подслоем / А.Ф. Грачев [и др.] // Атомная энергия. – 2021. – № 129 (5). – С. 272-276.