

На правах рукописи



**УГРЮМОВ АЛЕКСАНДР ВАЛЕРЬЕВИЧ**

**ОПТИМИЗАЦИЯ СТРУКТУРЫ УРАН-ГАДОЛИНИЕВЫХ ТАБЛЕТОК  
В ОБЕСПЕЧЕНИЕ ПЕРСПЕКТИВНЫХ ТРЕБОВАНИЙ НОВЫХ  
ПРОЕКТОВ ТОПЛИВА ВВЭР**

05.14.03 «Ядерные энергетические установки, включая проектирование,  
эксплуатацию и вывод из эксплуатации»

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени  
кандидат технических наук

Москва – 2021

Работа выполнена в акционерном обществе «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А.Бочвара» (АО «ВНИИНМ»)

Научный руководитель: **Лысиков Александр Владимирович**  
кандидат технических наук, главный эксперт  
АО «ВНИИНМ», г.Москва

Официальные оппоненты: **Троянов Владимир Михайлович**  
доктор технических наук, старший научный  
сотрудник,  
Научный руководитель АО «ГНЦ-РФ ФЭИ»,  
г.Обнинск

**Бутов Владимир Григорьевич**  
доктор физико-математических наук, профессор  
Заведующий отделом НИИ прикладной  
математики и механики ТГУ, г.Томск

Ведущая организация: Государственный научный центр – Научно-исследовательский институт атомных реакторов (АО «ГНЦ НИИАР»), Ульяновская область, г.Димитровград

Защита состоится «14» декабря 2021 г. в 14 часов 00 минут на заседании диссертационного совета Д 520.009.07 при Федеральном государственном бюджетном учреждении Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», по адресу 123182, Москва, пл. Академика И.В. Курчатова, 1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Федерального государственного бюджетного учреждения Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», по адресу 123182, Москва, пл. Академика И.В. Курчатова, 1 и на сайте <http://nrcki.ru>.

Автореферат разослан «\_\_» \_\_\_\_\_ 2021 г.

Ученый секретарь Диссертационного совета  
Д 520.009.07

Д.А. Шкаровский

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Работа посвящена технологии изготовления ядерного уран-гадолиниевого топлива со стабильной положительной термической стабильностью геометрических размеров (доспекаемостью), и включает этапы: определение факторов, отвечающих за доспекаемость, определения механизма регулирования пористости таблеток, планирование эксперимента, проведение исследований плотности, доспекаемости и параметров микроструктуры таблеток, анализ полученных данных.

**Актуальность исследования.** Одним из современных решений обеспечения безопасности эксплуатации ядерного топлива ВВЭР является использование для регулирования реактивности интегрированного выгорающего поглотителя – оксида гадолиния. В результате имеются тепловыделяющие элементы гадолиНИЕВЫЕ (ТВЭГ), не занимающие полезное место в составе тепловыделяющей сборки (ТВС).

В действующем промышленном производстве уран-гадолиНИЕВЫХ таблеток типа ВВЭР оксид гадолиния вводят в количестве от 3,35 мас.% до 8 мас.%. Введение оксида гадолиния в диоксид урана приводит к отличию в свойствах между урановыми и уран-гадолиНИЕВЫМИ таблетками и, как следствие, к отличию в поведении ТВЭЛОВ и ТВЭГОВ во время эксплуатации. Так, уран-гадолиНИЕВЫЕ таблетки имеют низкую доспекаемость 0,1 % и менее, в то время как урановые таблетки имеют доспекаемость на уровне 0,1-0,2 %. При увеличении содержания оксида гадолиния до 5 мас.% и выше, доспекаемость уран-гадолиНИЕВЫХ таблеток становится нулевой. Низкая доспекаемость приводит к набуханию уран-гадолиНИЕВЫХ таблеток и контакту с оболочкой уже в первый год облучения. Взаимодействие топливо-оболочка считается ответственным за более быстрый рост ТВЭГОВ на первом и втором году эксплуатации ТВС. Стоит также не забывать, что внесение в матрицу диоксида урана заметно отличающегося от него по свойствам оксида гадолиния приводит к снижению прочностных характеристик и

уменьшению теплопроводности таблеток. Снижение прочности таблетки приводит к увеличению возможности появления сколов и увеличения их размеров, что при снижении теплопроводности приводит к увеличению напряжений в оболочке в месте скола и разгерметизации твэга.

В настоящее время при реализации новых технических проектов на ядерное топливо ужесточаются требования и к топливным таблеткам. Ужесточение требований направлено на достижение высоких эксплуатационных показателей, в частности, на снижение напряжений в оболочке твэга при эксплуатации за счет минимизации количества сколов и их размеров при обеспечении ненулевой доспекаемости.

Также необходимо учитывать, что с момента промышленного внедрения технологии изготовления уран-гадолиниевого топлива объёмы его производства возросли в 8-10 раз.

К моменту проведения начала работ по тематике диссертации данная проблема была решена только для уран-гадолиниевых таблеток с содержанием оксида гадолиния не более 3,35 мас.%. Таблетки с 5 мас.% и 8 мас.% от партии к партии могли отличаться по свойствам и, соответственно, по разному вести себя при эксплуатации.

Возможным путем решения указанных выше проблем и обеспечения требуемых характеристик топлива может быть регулирование пористости топливных таблеток за счет изменения технологических операций изготовления таблеток (изменение способа введения порообразователя при одновременном снижении температуры спекания).

Для пористости топлива необходимо рассмотреть как распределение пор по размерам влияет на доспекаемость топливных таблеток, определить требуемый диапазон размеров пор для регулирования, а также оценить технологические операции изготовления топлива, которые необходимо изменить.

В работе решена важная для развития атомной энергетики страны задача повышения качества и эксплуатационных характеристик уран-

гадолиниевого топлива для обеспечения надежной работы ТВЭЛОВ с выгорающим поглотителем при высоких выгораниях.

**Цель работы.** Целью работы является разработка и обоснование способа изменения пористости уран-гадолиниевых таблеток для обеспечения стабильной положительной доспекаемости при сохранении остальных параметров таблеток в соответствии с требованиями технического проекта.

Для достижения этой цели решены следующие задачи:

- предложены и оценены пути изменения пористости уран-гадолиниевых таблеток;

- рассмотрены и модернизированы методики контроля параметров уран-гадолиниевых таблеток для повышения достоверности контроля структуры таблеток;

- проведены исследования физико-химических свойств и микроструктуры таблеток для подтверждения правильности выбранных параметров структуры уран-гадолиниевых таблеток;

- предложена зависимость доспекаемости от параметров пористой уран-гадолиниевых таблеток.

**Научная новизна работы.**

- Установлено, что регулирование пористости уран-гадолиниевых таблеток в диапазоне от 0,1 до 1,0 мкм позволяет регулировать термическую стабильность геометрических размеров (доспекаемость).

- /Разработан способ регулирования пористости уран-гадолиниевых таблеток.

- Разработана эмпирическая зависимость доспекаемости от концентрации субмикронных пор для прогнозирования величины доспекаемости уран-гадолиниевых таблеток.

**Практическая значимость работы заключается:**

- во внедрении в технологический процесс изготовления уран-гадолиниевых таблеток разработанные в ходе выполнения диссертационной работы рекомендации по способу регулирования пористой структуры;

- в использовании разработанного способа регулирования пористой структуры уран-гадолиниевых таблеток при реализации проектов топлива для ТВЭГов АЭС «Темелин» mod.2 и ТВЭГов ТВС-КВАДРАТ;

- в рекомендации к использованию разработанной эмпирической зависимости доспекаемости от концентрации пор размером от 0,1 до 1,0 мкм для прогнозирования величины доспекаемости уран-гадолиниевых таблеток при изменении параметров технологических операций изготовления уран-гадолиниевых таблеток.

Достоверность представленных в работе результатов подтверждается результатами промышленной эксплуатации без разгерметизации с 2018 года тепловыделяющих сборок ТВСА-Т mod.2 с уран-гадолиниевыми таблетками, изготовленными с регулируемыми параметрами пористости, на 2 блоке АЭС «Темелин».

#### **Основные положения, выносимые на защиту:**

- способ изменения пористой структуры изменения уран-гадолиниевых таблеток для обеспечения стабильной положительной доспекаемости;

- результаты исследования основных свойств уран-гадолиниевых таблеток при изменении технологических режимов их изготовления;

- результаты промышленной эксплуатации уран-гадолиниевых таблеток на коммерческой АЭС «Темелин»;

- эмпирическая зависимость доспекаемости от концентрации пор для прогнозирования доспекаемости путем контроля только параметров пористости при изменении параметров технологических операций изготовления уран-гадолиниевых таблеток.

#### **Объем и структура работы.**

Диссертация состоит из введения, аналитического обзора, трех глав, выводов и библиографии. Работа изложена на 135 страницах, содержит 69 рисунков, 15 таблиц и список цитируемой литературы из 133 наименований

**Апробация результатов исследования.** Основные положения работы докладывались и обсуждались на следующих российских и международных научно-технических конференциях и семинарах:

- научно-техническая конференция АО «ТВЭЛ» «Ядерное топливо нового поколения для АЭС», Сочи, «ОЗК Дагомыс», 09-10.10.2018;

- всероссийская научно-техническая конференция «Материалы ядерной техники» МАЯТ-2019», 8 октября 2019, г.Москва, АО «ВНИИНМ»;

- научно-технический семинар по ядерному топливу «Эксплуатация российского топлива на АЭС ВВЭР: опыт, анализ, перспективы», г. Прага, Чехия, 10.09.2018 - 14.09.2018;

- IAEA Technical Meeting on Light Water Reactor Fuel Enrichment beyond the 5% Limit: Perspectives and Challenges. AZIMUT Hotel Olympic Moscow, Russian Federation, 27-30 августа 2018;

- TopFuel 2021, Spain, Santander, 24-28.10 2021;

- Международный семинар по вопросам, связанным с проектированием, производством и эксплуатацией ядерного топлива для ВВЭР-1000, 12-18.09.2021, г. Несебр, Болгария.

### **Публикации**

По теме диссертации опубликовано 8 работ, включая 2 статьи в реферируемых научных журналах из перечня ВАК РФ, 5 докладов на конференциях и одно учебное пособие.

## **ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

**Во введении** обоснована актуальность регулирования параметров пористости уран-гадолиниевых топливных таблеток; сформулированы цель работы и решаемые задачи, указана новизна и практическая значимость работы, изложены основные положения, выносимые на защиту.

**В первой главе** проведен обзор литературы по производству уран-гадолиниевых таблеток. Рассмотрено текущее состояние производства,

технологическая схема изготовления топливных таблеток, используемые компоненты для изготовления таблеток, влияние исходных материалов и технологических режимов изготовления на свойства таблеток.

Показано, что микроструктура топливных таблеток определяет плотность, термическую стабильность геометрических размеров, прочность и выход газообразных продуктов деления.

Установлено, что регулирование пористости уран-гадолиниевых таблеток в диапазоне от 0,1 до 1,0 мкм позволяет регулировать термическую стабильность геометрических размеров (доспекаемость).

Определены основные технологические параметры изготовления уран-гадолиниевых таблеток, влияющие на пористость показатели:

- исходные компоненты;
- способ подготовки пресспорошка;
- давление прессования;
- температура, время и среда спекания;
- глубина съема и скорость ведущего круга при шлифовании.

На основе проведенного аналитического обзора выпущено учебное пособие по технологии изготовления ядерного топлива на основе диоксида урана.

**Во второй главе** диссертационной работы рассмотрены механизмы, ответственные за изменение параметров микроструктуры топливных таблеток, в частности, размера пор. Первый механизм – объединение пор при увеличении размера зерна. Вторым механизмом – объединение пор за счет разницы в кривизне поверхности – большие поры поглощают поры малого размера (так называемое «созревание» по Оствальду). Эти два механизма проявляются одновременно, и степень доминирования одного или другого механизма определить трудно.

Показано, что наиболее распространенным способом регулирования пористости является введение различных порообразователей (в настоящее время наиболее часто используются в качестве порообразователей закись-



окись урана ( $U_3O_8$ ) и азодикарбонамид (Porophor)). Помимо этого, пористость также можно изменить за счет введения в шихту различных микродобавок, например, оксида алюминия (гидроокись алюминия) и/или оксида кремния.

Показано, что режимы приготовления пресспорошка влияют на параметры пористости топливных таблеток. Так, способ введения порообразователя (микродобавки) в пресспорошок, скорость вращения барабана мельницы, число и размер размольных тел, масса измельчаемого материала, продолжительность и среда размола являются определяющими факторами.

Рассмотрены действующие методики выполнения измерений параметров микроструктуры уран-гадолиниевых таблеток.

Показано, что для штатного контроля партии на соответствие требований технической и конструкторской документации при проведении оценки параметров микроструктуры используется методика ОИ 001.619-2006, а для измерения параметров пористости в диапазоне от 0,1 до 100 мкм разработана методика измерения параметров пористости топливных таблеток № 323.000.815-2017 МВИ. Методика № 323.000.815-2017 МВИ необходима для полного описания параметров пористости, включая субмикронные поры (от 0,1 до 1 мкм).

Показано, что одновременное использование описанных методик контроля параметров микроструктуры позволяет достаточно точно определить параметры пористой структуры таблеток, а также прогнозировать термическую доспекаемость топливных таблеток.

**В третьей главе** на основе проведенного анализа действующей технологии производства уран-гадолиниевых таблеток и теоретических возможностей изменения структуры топливных таблеток предложены пути изменения пористой структуры: изменение способа введения порообразователя за счет частичного добавления его в шаровую мельницу на первом этапе и частичного добавления в смеситель при смешивании с

пластификатором на последнем этапе приготовления пресспорошка; количество вводимого порообразователя увеличить с 0,4 мас.% до 0,8 мас.%; уменьшить температуру спекания с 1750-1765 °С до 1730-1700 °С.

В главе описана разработанная автором программа изготовления экспериментальных партий по измененным технологическим режимам и исследований уран-гадолиниевых таблеток с 5 мас.% оксида гадолиния.

В соответствии с разработанной программой на каждом этапе изготовления исследованы характеристики исходного порошка диоксида урана, пресспорошка, прессовок, спеченных таблеток.

Показано, что все качественные показатели пресспорошка, прессовок, спеченных таблеток, исследованные на каждом этапе изготовления соответствуют требованиям, предъявляемым к уран-гадолиниевым таблеткам с 5 мас.% оксида гадолиния в действующем технологическом процессе.

В соответствие с разработанной программой для последующего анализа были исследованы плотность, объемная доля открытых пор, доспекаемость, кислородный коэффициент, массовая доля водорода и параметры микроструктуры уран-гадолиниевых таблеток экспериментальных партий.

Для проведения последующего анализа сделанных изменений технологических операций для изменения пористой структуры таблеток собраны данные по качественным показателям уран-гадолиниевых таблеток с 5 мас.% оксида гадолиния текущих проектов ВВЭР, изготовленных по действующему технологическому процессу (порообразователь добавляют в гранулят при смешивании с пластификатором на последнем этапе приготовления пресспорошка, температура спекания – 1750-1765 °С).

Из проанализированных экспериментальных данных и данных авторского надзора следует, что все показатели, за исключением доспекаемости отдельных экспериментальных партий уран-гадолиниевых таблеток, соответствуют требованиям действующих технических условий и чертежей, таблица 1.

Таблица 1 –Свойства уран-гадолиниевых таблеток экспериментальных партий в сравнении с текущим производством и нормой

Параметр	Экспериментальные партии								Текущее пр-во	Норма
	1-1-1	1-1-2	1-2-1	1-2-2	2-1-1	2-1-2	2-2-1	2-2-2		
Плотность, г/см <sup>3</sup>	10,48	10,46	10,49	10,47	10,46	10,43	10,47	10,44	10,57	10,3-10,6
Доспекаемость, %	0,02	0,03	0,02	0,03	0,01	0,04	0,01	0,03	0,02	0,0-0,4
Кислородный коэффициент	2,029	2,028	2,030	2,028	2,029	2,030	2,029	2,029	2,029	2,010-2,040
Средний эффективный диаметр зерна, мкм	14,2	12,2	13,1	12,5	15,4	12,8	13,2	12,2	13,0-15,0	8-25
Макс.диаметр Фере отдельных пор на поле шлифа, мкм	77	176	101	95	98	189	134	162	249	≤ 500
Количество пор, наблюдаемых в плоскости шлифа и имеющих эффективный диаметр 1-10 мкм, %	91,8	87,7	87,8	86,3	84,8	82,0	84,2	84,7	88	≥ 80
Доля площади шлифа, занятой твердым раствором UO <sub>2</sub> -Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , %	97,2	96,5	98,7	98,3	98,6	98,7	98,6	98,7	97	≥ 80

Примечание – В обозначении варианта: первая цифра – вариант приготовления пресспорошка (1 – порообразователь 0,4 мас.% добавлен на последней стадии приготовления пресспорошка, 2 – порообразователь 0,4 мас.% добавлен в шаровую вибромельницу на первой стадии приготовления пресспорошка + 0,4 мас.% порообразователя добавлено на последней стадии приготовления пресспорошка), вторая цифра – вариант давления прессования (1 – 1,5/1,5 тс/см<sup>2</sup>, 2 – 1,7/1,7 тс/см<sup>2</sup>), третья цифра – температура спекания (1 – 1730°С, 2 – 1700°С).

**В четвертой главе** проанализированы полученные в третьей главе результаты исследований по изменению структуры уран-гадолиниевых таблеток и влиянию этих изменений на свойства уран-гадолиниевых таблеток.

Из полученных результатов следует:

Все показатели уран-гадолиниевых таблеток, соответствуют требованиям конструкторской и технологической документации новых проектов ВВЭР.

Плотность уран-гадолиниевых таблеток снижается с изменением способа введения порообразователя и увеличением его количества до 0,8 мас.%, а также при снижении температуры спекания с 1750-1765 °С до 1700-1730 °С.

Одновременное использование этих двух подходов обеспечивает для уран-гадолиниевых таблеток с 5 мас.%  $Gd_2O_3$  значение плотности, близкое к номинальному значению 10,45 г/см<sup>3</sup>, установленному в конструкторской документации для новых проектов ВВЭР.

Масса столба таблеток длиной 1000 мм напрямую определяется величиной плотности уран-гадолиниевых таблеток. Таким образом, влияние изменения способа введения порообразователя и изменения температуры спекания на данный параметр такое же, как и для плотности: снижается с увеличением количества вводимого порообразователя и при снижении температуры спекания;

При уменьшении температуры спекания с 1750-1765 °С до 1700-1730 °С средняя по партии доспекаемость уран-гадолиниевых таблеток с 5 мас.%  $Gd_2O_3$  положительная на уровне 0,02-0,03 %. Отдельные отрицательные значения доспекаемости обнаружены на партиях таблеток с температурой спекания 1730 °С при увеличении давления прессования до 1,7 тс/см<sup>2</sup> и в случаях добавления порообразователя только на заключительном этапе приготовления пресспорошка.

При использовании режимов спекания при температуре 1700 °С, когда в пресспорошок порообразователь добавляли на первом этапе при приготовлении гранулята, а затем прессовали таблетки при давлении 1,5 тс/см<sup>2</sup>, уран-гадолиниевые таблетки имели стабильную положительную доспекаемость на уровне 0,02-0,05 %.

Увеличение давления прессования с  $1,5 \text{ тс/см}^2$  до  $1,7 \text{ тс/см}^2$  приводит к увеличению средней плотности для всех экспериментальных партий уран-гадолиниевых таблеток, и к снижению доспекаемости на  $0,01-0,02 \%$ .

Полученные данные по параметрам микроструктуры и фазового состава характерны для уран-гадолиниевых таблеток массового производства с соответствующим номинальным содержанием оксида гадолия  $5 \text{ мас.}\%$  и соответствуют требованиям конструкторской документации.

Проведенные исследования пористой структуры уран-гадолиниевых таблеток экспериментальных партий показали, что стабильная положительная доспекаемость обеспечивается при использовании модернизированных режимов введения порообразователя (половина порообразователя ( $0,4 \text{ мас.}\%$ ) вводится на первом этапе приготовления пресспорошка в вибротельницу с остальными компонентами шихты, другая половина порообразователя вводится на заключительном этапе – в смеситель при введении пластификатора) и спекания (уменьшения температуры спекания до  $1700-1730 \text{ }^\circ\text{C}$ ). В этих случаях плотность уран-гадолиниевых таблеток находится в пределах  $10,43-10,45 \text{ г/см}^3$ , а максимальное количество пор приходится на диапазоны от  $0,1$  до  $1,0 \text{ мкм}$  и от  $1,0$  до  $10,0 \text{ мкм}$ .

Показано, что из-за образования твердого раствора замещения диоксид урана – оксид гадолия при спекании уран-гадолиниевых таблеток происходит заметное снижение количества пор в диапазоне от  $0,1$  до  $1,0 \text{ мкм}$  (в  $8-9$  раз меньше у уран-гадолиниевых таблеток с  $5 \text{ мас.}\%$   $\text{Gd}_2\text{O}_3$ , по сравнению с таблетками из  $\text{UO}_2$ ), таблица 2. Таким образом, добавляя порообразователь частично на первом этапе приготовления пресспорошка, обеспечиваются требования новых проектов таблеток для ВВЭР по плотности и массе столба таблеток с сохранением стабильной положительной доспекаемости.

На рисунках 1-3 представлено изменение размеров пор после проведения теста на доспекаемость наиболее характерных рассматриваемых экспериментальных партий уран-гадолиниевых таблеток в сравнении с

таблетками штатной партии с 5 мас.%  $Gd_2O_3$  (производство АО «МСЗ»). На рисунке 2 представлена результаты по экспериментальной партии 2-1-2 (порообразователь 0,4 мас.% добавлен в шаровую вибромельницу на первой стадии приготовления прессопорошка + 0,4 мас.% порообразователя добавлено на последней стадии приготовления пресспорошка давления прессования – 1,5/1,5 тс/см<sup>2</sup>, температура спекания – 1700°C), имеющей максимальное значение доспекаемости. На рисунке 3 представлена результаты по экспериментальной партии 2-1-2 (порообразователь 0,4 мас.% добавлен в шаровую вибромельницу на первой стадии приготовления прессопорошка + 0,4 мас.% порообразователя добавлено на последней стадии приготовления пресспорошка давления прессования – 1,7/1,7 тс/см<sup>2</sup>, температура спекания – 1730°C), имеющей минимальное значение доспекаемости.

Таблица 2 – Плотность, доспекаемость и концентрация пор уран-гадолиниевых таблеток экспериментальных партий в сравнении с таблетками из диоксида урана и штатной партии УГТ с 5 мас.%  $Gd_2O_3$

№ партии	UO <sub>2</sub>	УГТ	2-1-2	2-2-2	1-1-2	1-2-2	1-1-1	1-2-1	2-1-1	2-2-1
Плотность, г/см <sup>3</sup>	10,59	10,51	10,43	10,44	10,46	10,47	10,48	10,49	10,46	10,47
Доспекаемость, %	0,2	0,03	0,04	0,03	0,03	0,03	0,02	0,02	0,01	0,01
Концентрация пор, мм <sup>-2</sup> - общая	70459	7890	8432	7868	8314	7876	8604	8418	8560	7478
- в диапазоне 0,1-1,0 мкм	67340	6151	6659	6386	6763	6535	7172	7040	6931	6123
- в диапазоне 1,0-10,0 мкм	3046	1679	1712	1412	1493	1288	1383	1330	1573	1299
- в диапазоне 10-100 мкм	73	60	61	69	8	52	49	48	56	56

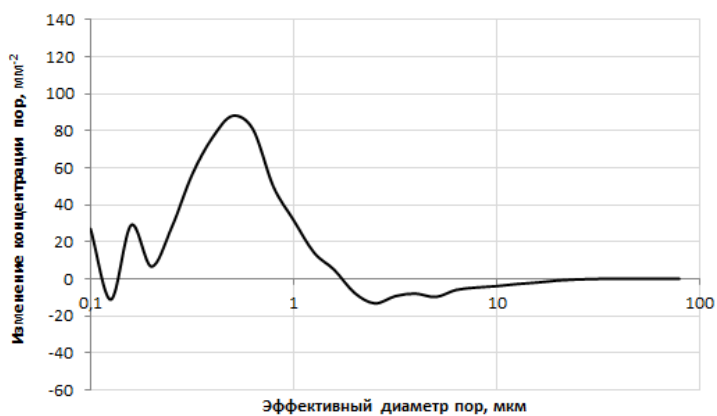


Рисунок 1 – Изменение концентрации пор после теста на дospelкаемость, уран-гадолиниевых таблеток с 5 мас.%  $Gd_2O_3$  штатной партии

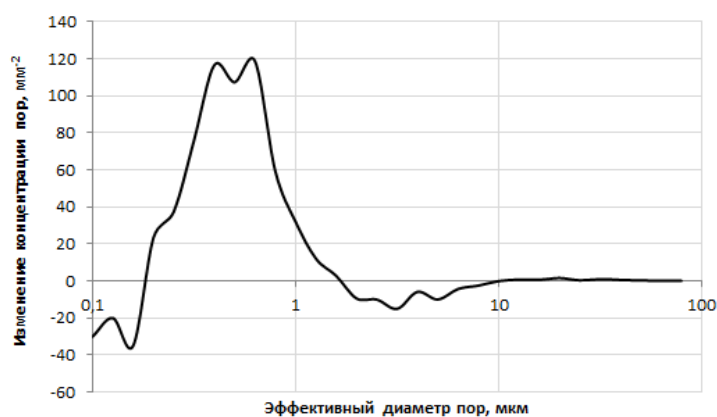


Рисунок 2 – Изменение концентрации пор после теста на дospelкаемость, уран-гадолиниевых таблеток с 5 мас.%  $Gd_2O_3$  экспериментальной партии №2-1-2

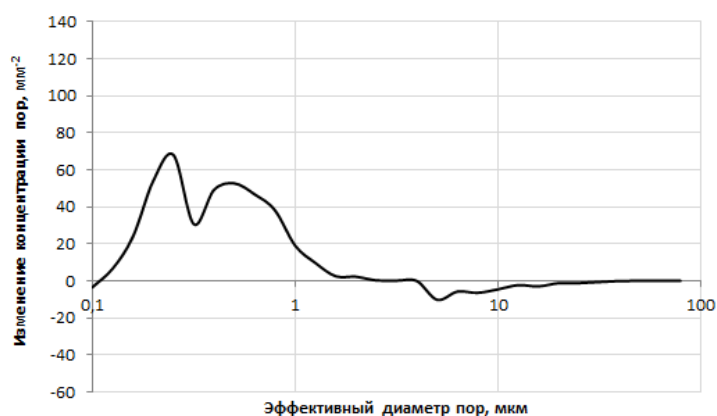


Рисунок 3 – Изменение концентрации пор после теста на дospelкаемость, уран-гадолиниевых таблеток с 5 мас.%  $Gd_2O_3$  экспериментальной партии №2-2-1

Данные, приведенные на рисунках 1-3, экспериментально подтверждают, что изменение концентрации пор в диапазоне их размеров от 0,1 до 1,0 мкм напрямую определяет доспекаемость уран-гадолиниевых таблеток. Помимо этого, рисунки 1-3 графически подтверждают, что положительную доспекаемость можно обеспечить путем модернизации режима введения порообразователя и понижения температуры спекания.

Получена эмпирическая зависимость доспекаемости от концентрации субмикронных пор (поры размером от 0,1 до 1,0 мкм). Данная зависимость может быть использована для прогнозирования доспекаемости путем контроля параметров пористости при изменении параметров технологических операций изготовления уран-гадолиниевых таблеток без проведения прямого теста на доспекаемость.

Зависимость доспекаемости от концентрации пор приведена на рисунке 4 и может быть описать аппроксимирующей функцией вида

$$\frac{\Delta D}{D} = 0,124 \ln N^* - 0,824 \quad , \quad (1)$$

где  $\Delta D/D$  – доспекаемость по диаметру, %;

$N^*$  – взвешенная концентрация пор по (2),  $\text{мм}^{-2}$ .

Взвешенная концентрация определяется суммой произведений концентрации пор для каждой категории размеров на весовой коэффициент. Весовые коэффициенты устанавливаются, как значения функции нормального распределения с заданными средним и дисперсией, умноженными на квадрат диаметра пор в данной категории.

$$N^* = \sum N_i \cdot \omega_i, \quad (2)$$

$$\omega_i = C \cdot D_i^2 \cdot e^{-\frac{(D_i - \mu)^2}{2\sigma^2}}, \quad (3)$$

где:  $N^*$  – взвешенная концентрация пор;



- $N_i$  – концентрация пор в  $i$ -категории;
- $\omega_i$  – весовой коэффициент для  $i$ -категории;
- $D_i$  – эффективный диаметр пор в  $i$ -категории;
- $\mu$  – математическое ожидание нормального распределения;
- $\sigma^2$  – дисперсия нормального распределения;
- $C$  – нормирующий коэффициент.

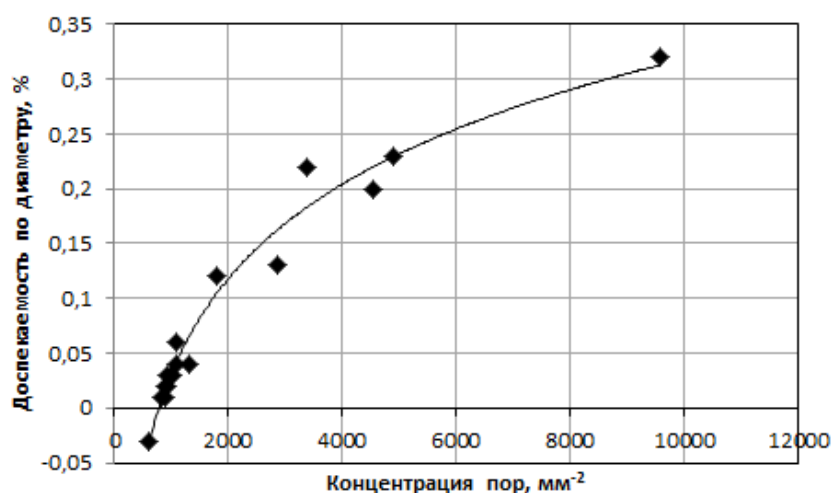


Рисунок 4 – Доспекаемость топливных таблеток в зависимости от концентрации пор

Сделаны и апробированы рекомендации по изменению технологического процесса изготовления уран-гадолиниевых таблеток с 5 мас.% оксида гадолиния.

Проведенные на АЭС «Темелин» визуальные инспекции, выполненные персоналом АЭС, подтвердили отсутствие разновысотности твэлов и твэгов. Тем самым, обоснована правильность подхода по изменению пористой структуры топливных таблеток за счет увеличения количества пор в диапазоне от 0,1 до 1,0 мкм путем модернизации способа введения порообразователя. То есть, подтверждена правильность подхода управления пористостью для обеспечения заложенного в техническом проекте формоизменения уран-гадолиниевых таблеток и твэгов.

### **Благодарность.**

Автор выражает благодарность сотрудникам АО «ВНИИНМ» и АО «МСЗ», принявшим участие в проведении экспериментальных работ и предоставившим для анализа свойства уран-гадолиниевых таблеток, выпускающихся в действующем производстве. Кроме этого, автор благодарен специалистам в области производства и эксплуатации ядерного топлива за позитивную критику, учтенную при написании работы.

## ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. Сохранение качества производимых уран-гадолиниевых таблеток в условиях увеличения объёмов производства и обеспечения полного выполнения требований технических проектов решается путем регулирования микроструктуры топливных таблеток, определяющей плотность, термическую стабильность геометрических размеров и прочность таблеток и выход газообразных продуктов деления.

2. Впервые разработана эмпирическая зависимость доспекаемости от концентрации пор уран-гадолиниевых таблеток. Полученную зависимость рекомендовано использовать для прогнозирования величины доспекаемости путем контроля параметров пористости, включая субмикронную пористость, в процессе изготовления уран-гадолиниевых таблеток.

3. Разработан способ регулирования субмикронной пористости уран-гадолиниевых таблеток для обеспечения стабильной положительной доспекаемости:

- изменение последовательности операций введения порообразователя: добавление порообразователя в шаровую мельницу на первом этапе и добавление на последнем этапе при смешивании с пластификатором (ранее порообразователь вводился на последнем этапе);

- увеличение количества вводимого порообразователя с 0,4 мас.% до 0,8 мас.%;

- уменьшение температуры спекания с 1750-1765 °С до 1700-1730 °С.

4. Проведены исследования основных свойств уран-гадолиниевых таблеток (плотность, доспекаемость, параметры микроструктуры) при изменении технологических режимов их изготовления. Исследования подтвердили правильность предлагаемых изменений операции введения порообразователя при изготовлении уран-гадолиниевых таблеток для управления их пористостью.

5. По измененному технологическому процессу в АО «МСЗ» выпущены уран-гадолиниевые таблетки для твэгов проектов АЭС «Темелин» mod.2 и ТВС-КВАДРАТ.

6. Тепловыделяющие сборки ТВСА-Т mod.2 с уран-гадолиниевыми таблетками, изготовленные по измененному технологическому процессу, успешно эксплуатируются с 2018 года на АЭС «Темелин».

Проведенные на АЭС «Темелин» визуальные инспекции, выполненные персоналом АЭС, подтвердили отсутствие разницы высотности твэлов и твэгов. Тем самым, обоснована правильность подхода управления пористостью для обеспечения заложенного в техническом проекте формоизменения уран-гадолиниевых таблеток и твэгов.

## ОСНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

- 1 Бахтеев О.А., Лысиков А.В., Угрюмов А.В. и др. Влияние параметров пористости топливных таблеток на их дospelеваемость // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. - 2018, № 4(95). - с. 109-115.
- 2 Лысиков А.В., Бахтеев О.А., Угрюмов А.В. и др. Исследование микроструктуры уран-молибденового топлива, полученного методами порошковой металлургии // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. - 2020, № 3(104). - с.79-83.
- 3 Лысиков А.В., Угрюмов А.В. Изготовление ядерного топлива на основе диоксида урана: учебное пособие [текст] / – М.: АО «ВНИИНМ», 2019. – 36 с.
- 4 Лысиков А.В., Михеев Е.Н., Угрюмов А.В. и др. Разработка технологии для обеспечения стабильной дospelеваемости уран-гадолиниевого топлива // Тезисы докладов конференции НТК-2018. Научно-техническая конференция АО «ТВЭЛ» «Ядерное топливо нового поколения для АЭС», Сочи, «ОЗК Дагомыс», 09-10.10.2018 г. - с.50.
- 5 Новиков В.В., Лысиков А.В., Угрюмов А.В. и др. Разработка технологических процессов в обеспечение требований по дефектности топливных таблеток водоохлаждаемых реакторов // Тезисы докладов конференции НТК-2018. Научно-техническая конференция АО «ТВЭЛ» «Ядерное топливо нового поколения для АЭС», Сочи, «ОЗК Дагомыс», 09-10.10.2018 г. - с.49.
- 6 Novikov V.V., Lysikov A.V., Ugrumov A.V. et al. A Large grain fuel for water-cooled reactors // In Proc.: Top Fuel 2021, Spain, Santander, 2021.
- 7 Угрюмов А.В., Хадеев В.Г., Шишкин А.А. и др. Разработка ядерных и конструкционных материалов для современных энергетических реакторных установок типа ВВЭР и БН // Тезисы докладов «Всероссийская научно-техническая конференция «Материалы ядерной техники» МАЯТ-2019», г.Москва, АО «ВНИИНМ», 8 октября 2019 г. – с.12-13.
- 8 Лысиков А.В., Михеев Е.Н., Угрюмов А.В. и др. Оптимизация конструкции и технологии уран-гадолиниевого топлива для активных зон реакторов ВВЭР-1000 // Международный семинар по вопросам, связанным с проектированием, производством и эксплуатацией ядерного топлива для ВВЭР-1000, 12-18.09.2021, г. Несебр, Болгария.