

УДК 621.762

РОЛЬ ПЕРВИЧНЫХ ПРОЧНЫХ АГРЕГАТОВ В ПОРОШКАХ ДИОКСИДА УРАНА В ПОВЫШЕНИИ КАЧЕСТВЕННЫХ И ЭКСПЛУАТАЦИОННЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ТОПЛИВНЫХ ТАБЛЕТОК

© Владимир Сергеевич Панов, Лариса Васильевна Мякишева,
Владимир Валентинович Басов

Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС»,
Москва, Россия
zeinalova@rambler.ru

Аннотация. Цель настоящей работы заключается в повышении качественных и эксплуатационных характеристик топливных таблеток за счет оптимизации технологии производства топливной составляющей тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ) реакторов АЭС.

В настоящее время, как и в ближайшем обозримом будущем, широкое применение ядерной энергетики как альтернативы другим источникам энергии - неизбежный технически, экономически и экологически целесообразный путь энергообеспечения мировой экономики.

В России, как и в большинстве промышленно развитых стран, все большее внимание уделяется вопросам развития ядерной энергетики. Соответствующая федеральная программа предусматривает достижение выработки электроэнергии на АЭС в общем объеме ее генерации до 20-25 % к 2020 г. и до 25-27 % к 2030 г. при обеспечении безусловной безопасности работы АЭС.

Для обеспечения указанных показателей необходимо повышение качественных и эксплуатационных характеристик топливных таблеток, что, в свою очередь, требует проведения исследований поведения топлива на всех стадиях его производства и установления зависимостей в системе «технология-структура-свойства».

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В работе применяли диоксид урана (UO_2), полученный по технологии для ADU-порошка [1].

Операции приготовления пресс-порошка, прессования и спекания проводили по стандартной методике, принятой в ОАО «Машиностроительный завод» (МСЗ) (г. Электросталь). Брикеты требуемых размеров прессовали в стальной пресс-форме при давлениях 1500-3000 МПа и спекали в печи ПНТ-ПВТ при температуре 1730 ± 25 °С.

На всех этапах изготовления таблеток для изучения поведения агрегатов, присутствующих в ADU-порошках, использовали как известные, так и специально разработанные для этих целей способы и методики анализов [2, 3].

Из ранее проведенных исследований известно, что при определенных параметрах процесса осаждения диураната аммония из раствора UO_2F_2 в ADU- порошках образуются первичные крупные прочные агрегаты, представляющие собой сростки отдельных первичных частиц кристаллов и кристаллитов UO_2 , с преобладающим размером 20-45 мкм [4].

Микротвердость данных агрегатов составляет 1400-1700 МПа. Они не разрушаются в процессе изготовления таблеток и практически полностью (85-90 %) переходят в спеченные изделия, формируя внутри их участки повышенной пористости, что приводит к снижению плотности таблеток.

Зависимости плотности спеченных таблеток от характеристик исходных ADU-порошков, с учетом проведенных исследований, могут быть описаны эмпирическими уравнениями вида:

$$Y_1 = 10,190 + 0,088x_1, \quad (1)$$

$$Y_2 = 10,566 - 0,020x_2, \quad (2)$$

$$Y_3 = 10,807 - 0,571x_3, \quad (3)$$

$$Y_4 = 10,720 - 0,100x_4, \quad (4)$$

$$Y_{5,6} = 10,33 - 0,276x_5 - 0,068x_6, \quad (5)$$

$$Y_{1-4} = 10,23 - 0,71x_1 - 0,018x_2 - 0,178x_3 - 0,15x_4, \quad (6)$$

где x_1 - удельная поверхность порошка, $\text{м}^2/\text{г}$; x_2 - плотность его утряски, $\text{г}/\text{см}^3$; x_3 - средний условный размер зерна, мкм ; x_4 - насыпная плотность, $\text{г}/\text{см}^3$; x_5 - объемная доля агрегатов в порошке, об. %; x_6 - микротвердость агрегатов, МПа; $Y_{5,6}$ - плотность таблеток для порошков с агрегатами, $\text{г}/\text{см}^3$; Y_{1-4} - без агрегатов, $\text{г}/\text{см}^3$.

Видно, что плотность таблеток с агрегатами определяется объемной долей агрегатов в исходном порошке и их микротвердостью, а в случае применения порошков без агрегатов - такими характеристиками, как удельная поверхность, плотность утряски, насыпная плотность и размер зерна. При объемной доли агрегатов в порошках до 10% зависимость давления прессования (P) от объемной доли первичных агрегатов в исходных порошках (Q) выражается полиномиальным уравнением:

$$P = 0,0076 Q^2 - 0,0339 Q + 1,565, \quad (7)$$

а при объемной доли агрегатов в порошках более 10% - логарифмическим уравнением:

$$P = 0,6644 \text{Ln}(Q) + 0,5279, \quad (8)$$

На рис. 1 приведена зависимость необходимого давления прессования (P) от объемной доли (Q) первичных прочных агрегатов в исходных ADU- порошках.

Можно заметить, что с ростом величины Q требуется большее давление прессования для достижения заданной плотности прессованных таблеток, поскольку сопротивление уплотнению порошков повышается. По мере роста показателя Q также в процессе прессования таблеток интенсифицируется явление упругого последействия, приводящее к снижению плотности порошков и, как следствие, уменьшению плотности спеченных таблеток.

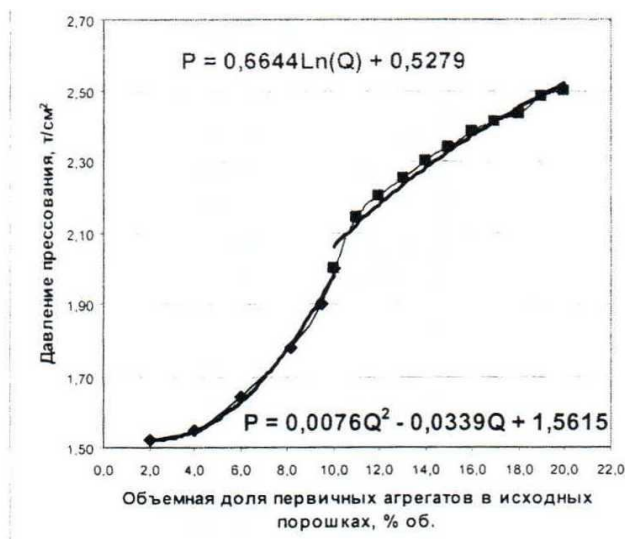


Рис. 1. Зависимость необходимого давления прессования от объемной доли прочных агрегатов в исходных ADU-порошках

Графическое изображение зависимостей плотности (p) спеченных таблеток от величины упругого последействия (u) представлено на рис. 2.

С помощью специально разработанного приспособления, основу которого составляет разъемная матрица, прессуют таблетки из текстурированного пресс-порошка, фиксируют высоту таблетки в момент приложения давления прессования и, по истечении 2-минутной

выдержки после извлечения таблетки из матрицы, по разности высот рассчитывают величину упругого последействия, служащую мерой оценки пригодности исходных порошков и пресс-порошков для получения заданной плотности.

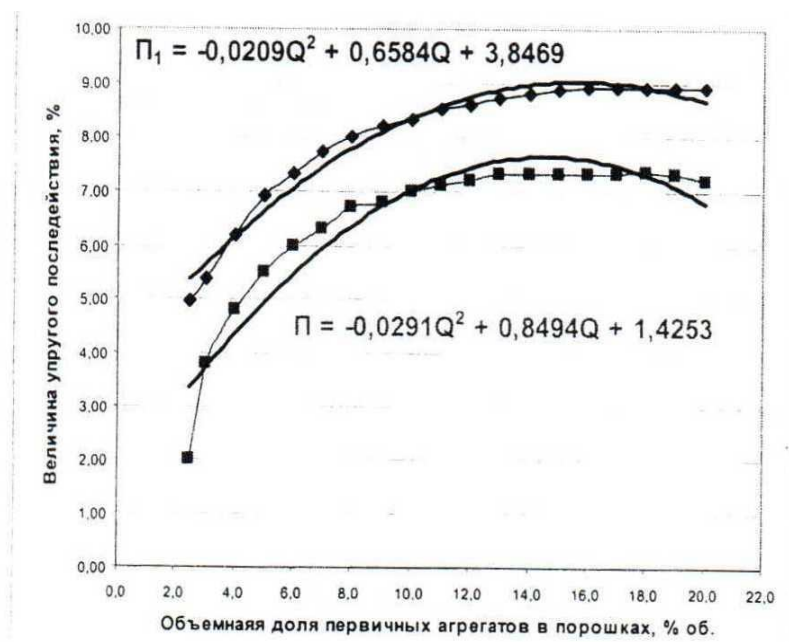


Рис. 2. Зависимость плотности печенных таблеток от величины упругого последействия исходных ADU-порошков (1) и пресс-порошков (2)

На рис. 3 приведена зависимость плотности печенной таблетки от объемной доли агрегатов в исходных ADU-порошках, которая имеет линейный характер.

Полученные экспериментальные данные подтвердили возможность прогнозирования и плотности, и пористости изготавливаемых печенных таблеток по величине упругого последействия.

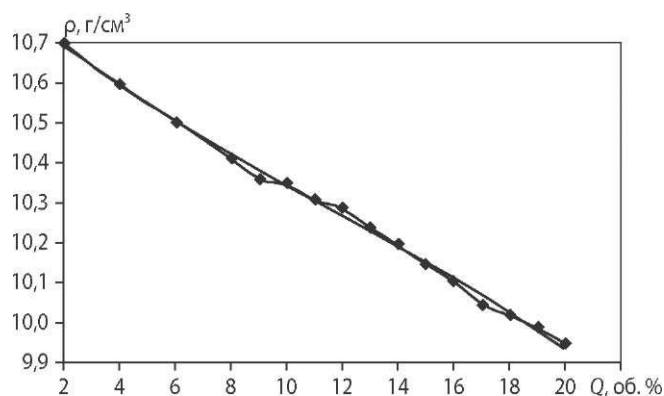


Рис. 3 Зависимость плотности печенных таблеток от объемной доли первичных прочных агрегатов в исходных ADU – порошках

Для обеспечения плотности печенных таблеток более 95 % величина упругого последействия должна быть < 6⁸ %. В результате комплекса проведенных исследований установлено, что первичные прочные агрегаты, размером более 20 мкм, за счет образования внутри таблеток участков повышенной пористости и за счет упругого последействия, снижают плотность печенных таблеток. Необходимо отметить, что первичные прочные агрегаты, присутствующие в исходном порошке UO₂, не разрушаясь, переходят в печенные таблетки, образуя их структурные характерные участки повышенной пористости. Для

повышения плотности таблеток необходимо активировать порошки UO_2 путем повышения их удельной поверхности за счет разрушения агрегатов в готовых порошках. В ОАО «МСЗ» эта операция осуществляется с помощью созданной установки для активации, усреднения и стабилизации свойств исходных порошков [3].

В работе разработан и обоснован способ уменьшения выхода из топливных таблеток под оболочку ТВЭЛа газообразных продуктов деления, заключающийся в создании внутри таблеток с учетом присутствующих в исходных порошках агрегатов специальных участков - «газосборников».

Проведенные исследования улучшили показатели макро – и микроструктуры топливных таблеток, что, в свою очередь, позволит повысить эксплуатационные свойства ТВЭЛов в целом.

ВЫВОДЫ

1. Исследовано влияние прочных агрегатов размером более 20 мкм, присутствующих в исходных гидролизно-экстракционных порошках UO_2 , на процессы прессования и спекания топливных таблеток.
2. Установлено, что агрегаты практически не разрушаются в процессе приготовления пресс-порошка и прессования таблеток, образуя при спекании внутри таблетки участки повышенной пористости.
3. Изучено влияние объемной доли агрегатов и величины упругого последействия на плотность получаемых топливных таблеток после спекания.
4. Показаны пути повышения плотности таблеток с помощью активирования исходного порошка UO_2 .

Работа выполнена в рамках Госконтракта № 16.513.11.3034 от 12.04.2011г. по теме: «Исследование принципов создания нового поколения топливных таблеток на основе диоксида урана для ТВЭЛов, модифицированного нанодисперсной легирующей композицией»

Литература

1. Панов В. С., Лопатин В. Ю. Составы, технология и свойства порошковых материалов для ядерной техники. // М.: Изд. дом МИСиС. - 2008.
2. Либенсон Г. А., Лопатин В. Ю., Комарницкий Г. В. Процессы порошковой металлургии. Т. I и II. //М.: МИСиС. - 2002.
3. Пат. 2148279 (РФ). Способ получения топливных таблеток / В. В. Басов, А. В. Иванов, В. С. Курсков. - 2000.
4. Басов В. В., Панов В. С. // Изв. вузов. Порошковая металлургия и функц. покрытия. - 2009. - № 4.- С. 31.

Поступила: 02.10.12.