



**ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ**

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21)(22) Заявка: 2015107111/07, 02.03.2015

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
02.03.2015

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 02.03.2015

(45) Опубликовано: 20.04.2016 Бюл. № 11

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: US8149983 В2, 03.04.2012 . RU2198437 С2, 10.02.2003 . US4643866 А1, 17.02.1987 . US3927817 А, 23.12.1975.

Адрес для переписки:

115409, Москва, Каширское ш., 31, НИЯУ
МИФИ ОУИС УНИ, Бейгул Г.В.

(72) Автор(ы):

Баранов Виталий Георгиевич (RU),
Шорников Дмитрий Павлович (RU),
Тарасов Борис Александрович (RU),
Никитин Степан Николаевич (RU),
Юрлова Мария Сергеевна (RU),
Бурлакова Марина Александровна (RU)

(73) Патентообладатель(и):

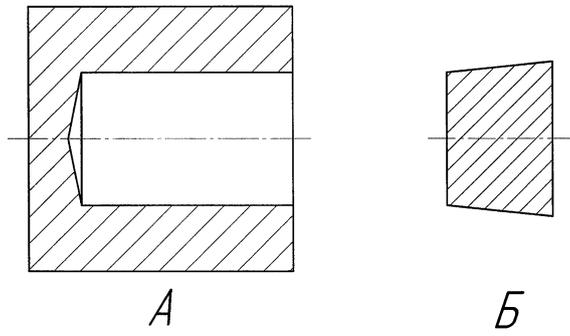
Российская Федерация от имени которой
выступает Государственная корпорация по
атомной энергии "Росатом" (RU),
федеральное государственное автономное
учреждение высшего профессионального
образования "НАЦИОНАЛЬНЫЙ
ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЯДЕРНЫЙ
УНИВЕРСИТЕТ "МИФИ" (НИЯУ
МИФИ) (RU)

**(54) СПОСОБ ИСПЫТАНИЯ НА СОВМЕСТИМОСТЬ ПОРОШКА ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА С
МАТЕРИАЛОМ ОБОЛОЧКИ ТВЭЛА**

(57) Реферат:

Предлагаемое изобретение относится к способам определения совместимости различных видов ядерного топлива и конструкционных материалов. Способ испытания на совместимость порошка ядерного топлива с материалом оболочки твэла заключается в отжиге диффузионной пары порошка ядерного топлива и оболочки твэла. Из материала оболочки твэла изготавливают тигель с полированной внутренней поверхностью, а также крышку, после чего в него запрессовывают порошок испытуемого ядерного топлива с имитаторами продуктов деления и проводят герметизацию тигля в инертной газовой

среде с последующим отжигом в диапазоне температур 600-1000°С. Для испытания используют порошки сплавов урана или монокрида урана крупностью 10-20 мкм. Для изготовления тигля и крышки используют коррозионно-стойкую сталь или сплавы циркония, а в качестве имитаторов химически активных продуктов деления йод и/или цезий, и/или теллур. Технический результат - надежный контакт (адгезия) топливного и конструкционного материалов, что повышает надежность и информативность диффузионных испытаний. 7 з.п. ф-лы, 3 ил.



Фиг. 3

RU 2581846 C1

RU 2581846 C1



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(51) Int. Cl.
G21C 17/06 (2006.01)
G21C 3/06 (2006.01)

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21)(22) Application: 2015107111/07, 02.03.2015

(24) Effective date for property rights:
02.03.2015

Priority:

(22) Date of filing: 02.03.2015

(45) Date of publication: 20.04.2016 Bull. № 11

Mail address:

115409, Moskva, Kashirskoe sh., 31, NIJAU MIFI
OUIS UNI, Bejgul G.V.

(72) Inventor(s):

**Baranov Vitalij Georgievich (RU),
SHornikov Dmitrij Pavlovich (RU),
Tarasov Boris Aleksandrovich (RU),
Nikitin Stepan Nikolaevich (RU),
JUrlova Marija Sergeevna (RU),
Burlakova Marina Aleksandrovna (RU)**

(73) Proprietor(s):

**Rossijskaja Federatsija ot imeni kotoroj
vystupaet Gosudarstvennaja korporatsija po
atomnoj energii "Rosatom" (RU),
federalnoe gosudarstvennoe avtonomnoe
uchrezhdenie vysshego professionalnogo
obrazovaniya "NATSIONALNYJ ISSLEDOVA
TELSKIJ JADERNYJ UNIVERSITET "MIFI"
(NIJAU MIFI) (RU)**

(54) **METHOD OF TESTING FOR COMPATIBILITY OF NUCLEAR FUEL POWDER WITH MATERIAL OF FUEL ELEMENT CLADDING**

(57) Abstract:

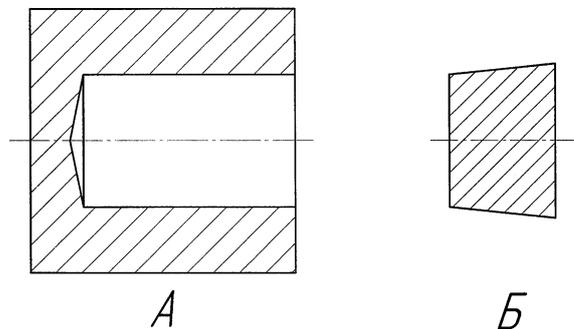
FIELD: engines.

SUBSTANCE: invention relates to methods of determining compatibility of various types of nuclear fuel and structural materials. Method of testing for compatibility of nuclear fuel powder with fuel rod cladding material comprises diffusion annealing of nuclear fuel powder and fuel rod cladding pair. From material of fuel rod cladding is made crucible with a polished inner surface and lid, after which it is moulded into a powder with test fuel and fission products simulators and sealing crucible in an inert gas atmosphere, followed by annealing in temperature range of 600-1,000 °C. Testing is carried out using uranium alloy powders or uranium mononitride with particle size of 10-20 mcm. To produce crucible and cover method uses corrosion-resistant steel or zirconium alloys, and as imitators of chemically active fission

products, iodine and/or caesium and/or tellurium.

EFFECT: technical result is reliable contact (adhesion) of fuel and structural materials, which increases reliability and information value of diffusion tests.

8 cl, 3 dwg



Фиг. 3

RU 2 581 846 C1

RU 2 581 846 C1

Предлагаемое изобретение относится к атомной промышленности и может найти использование в научно-исследовательских лабораториях, занимающихся определением свойств ядерного топлива и обоснованием работоспособности твэлов нового поколения с высокоплотным ядерным топливом.

5 В настоящее время в качестве ядерного топлива современных реакторов рассматриваются оксидное (UO_2), смешанное оксидное ($UPuO_2$), металлическое (U, U-Pu), нитридное (UN) и смешанное нитридное ядерное топливо ($UPuN$). В качестве конструкционного материала оболочки твэла предложено использовать коррозионно-стойкие стали ферритно-мартенситного и аустенитного классов (стали ЭП-450 и 450
10 ДУО, 823, X18H10T и т.п.), а также циркониевые сплавы (сплавы Э-110, Э-125). Одним из ключевых моментов эксплуатации композиции «ядерное топливо - материал оболочки твэла» является вопрос взаимодействия ядерного топлива и оболочки из стали или циркония, которое наступает по достижению выгораний 8-12% ТА, в диапазоне рабочих температур (400-700°C), что связано с повышенным содержанием в ядерном топливе
15 углерода и кислорода (для нитридного топлива), высокий кислородный потенциал (для оксидного топлива) а также наличие химически активных продуктов деления, образующихся в процессе облучения топлива (йод, цезий, теллур). Обозначенная проблема требует применения различных технологических мер. Проверка реализуемости предложенных методов по снижению взаимодействия может быть проведена в ходе
20 реакторных испытаний или диффузионных лабораторных испытаний. Для предварительной оценки характера взаимодействия ядерного топлива с оболочкой твэла применяются диффузионные испытания, результаты которых позволяют проводить предварительное обоснование и поиск методов по снижению взаимодействия в системе «ядерное топливо - оболочка твэла».

25 Известен способ получения диффузионных пар топливо - оболочка, так называемых «сэндвичей» путем деформации и диффузионной сварки (см. патент US 3927817 А). Способ основан на соединении металлических заготовок в многослойную структуру, которые затем подвергаются горячей прокатке, в результате пластической деформации слоев происходит диффузионная сварка. После прокатки удается получить «пакет»,
30 который может быть использован как для изготовления промышленных изделий, так и для лабораторных испытаний.

Также известен способ испытания на совместимость и исследование взаимной диффузии (Гуров К.П., Карташкин Б.А., Угастэ Ю.Э. Взаимная диффузия в многофазных металлических системах. - М.: Наука, 1981. - 350 с.), принятый в качестве прототипа,
35 заключающийся в том, что формируют диффузионную пару топливо-оболочка за счет прижима в струбцине из молибдена или тантала исследуемой пары топливо-оболочка и подвергают отжигу в инертной атмосфере сборку «струбцина-топливо-оболочка». После отжига диффузионную пару топливо-оболочка извлекают из струбцины, разрезают поперек и проводят исследование слоя взаимодействия методами
40 микрорентгеноспектрального анализа, оптической микроскопии и т.д.

Основные недостатки известного способа связаны с тем, что на стадии прижима в случае испытаний твердых материалов (особенно керамических) невозможен плотный контакт исследуемых материалов (адгезии), в результате чего взаимная диффузия затруднена. Сильное сжатие образцов ядерного топлива и конструкционного материала
45 приводит к растрескиванию топлива. Также в указанном способе приготовления диффузионных пар за счет соединения двух образцов исключено введение имитаторов химически активных продуктов деления.

Таким образом, технический результат направлен на повышение контакта (адгезии)

образцов ядерного топлива и конструкционного материала при проведении диффузионных испытаний металлического и керамического ядерного топлива (нитридного или оксидного ядерного топлива) и оболочек из коррозионно-стойких сталей или циркония, что позволит повысить качество диффузионных испытаний. Кроме того, результат диффузионных испытаний приближен к реакторным за счет введения между исследуемыми материалами имитаторов продуктов деления, в том числе и химически активных.

Технический результат достигается тем, что в предлагаемом способе испытания на совместимость порошка ядерного топлива с материалом оболочки твэла, заключающемся в отжиге диффузионной пары порошка ядерного топлива и оболочки твэла, предварительно из материала оболочки твэла изготавливают тигель с крышкой, причем внутреннюю поверхность тигля полируют, после чего в тигель запрессовывают порошок испытуемого ядерного топлива вместе с имитаторами продуктов деления и проводят герметизацию тигля в инертной газовой среде с последующим отжигом в диапазоне температур 600-1000°C.

В частном случае в качестве ядерного топлива используют порошок урана, полученный или помолом стружки, или методом гидрирования-дегидрирования.

В частном случае в качестве ядерного топлива используют порошок моонитрида урана крупностью 10-20 мкм, полученного из исходного металлического урана путем последовательного гидрирования-дегидрирования и азотирования урановой стружки. В этом случае порошок моонитрида урана характеризуется меньшим содержанием кислорода и углерода (менее 0,01 мас. % для каждого элемента), что существенно снижает величину взаимодействия с конструкционным материалом.

В частном случае для изготовления тигля и крышки используют коррозионно-стойкую сталь или сплавы циркония.

В частном случае внутреннюю поверхность тигля полируют до значений шероховатости Ra=0,16-0,125 мкм, что позволяет улучшить контакт между частицами порошка и внутренней поверхностью тигля.

В частном случае крышку тигля изготавливают в виде усеченного конуса.

В частном случае в тигель загружают порошок ядерного топлива с добавками имитаторов химически активных продуктов деления.

В частном случае в качестве имитаторов химически активных продуктов деления используют йод, и/или цезий, и/или теллур, количество которых соответствует глубине выгорания ядерного топлива в интервале 60-150 ГВтсут/тU.

Предложенный способ диффузионных испытаний позволяет проводить дореакторные испытания на совместимость ядерного топлива с конструкционными материалами, а также иных материалов высокой твердости. Применение порошковой засыпки позволяет проводить диффузионные испытания в присутствии имитаторов химически активных продуктов деления.

Ниже приведены примеры реализации предлагаемого способа диффузионных испытаний ядерного топлива и конструкционного материала (оболочки).

Пример 1. Для оценки взаимодействия металлического топлива с оболочкой из коррозионно-стойкой стали применяли порошки сплавов урана с молибденом и урана с цирконием, для получения которых использовали прутки сплава урана с молибденом или цирконием, которые разрезали дисковой фрезой (скорость вращения 180 об/мин, подача 28 мм/мин), зону фрезерования непрерывно охлаждали маслом И-20А. При указанных параметрах резания на выходе получили чешуеобразную стружку размером ~4 мм. Стружку промывали ацетоном и дихлорэтаном для удаления масла. Для удаления

оксидной пленки с поверхности стружки ее поместили на 15 мин в 20% раствор азотной кислоты. Для удаления кислоты стружку промывали дистиллированной водой 3 раза. Сразу после травления всю стружку загрузили в стаканы высокоэнергетической шаровой мельницы и провели помол при скорости вращения стаканов 400 об/мин, в течение 15 минут, при указанных значениях помола получили порошок уранового сплава крупностью 10-25 мкм.

Пример 2. Для предварительной оценки взаимодействия нитридного топлива с коррозионно-стойкой сталью использовали порошок моонитрида урана. Для получения порошка моонитрида урана использовали стружку металлического урана крупностью 1-3 мм, которую загрузили в стакан из оксида бериллия, который поместили в вакуумную печь типа СШВЛ. Затем провели откачку форвакуумным и диффузионным насосами до остаточного давления $5 \cdot 10^{-3}$ Па. Провели отжиг стружки в вакууме при 250-300°C, что позволило удалить адсорбированные газы, а также активировать поверхность порошка. Заполнили объем печи водородом и нагрели до 250°C и выдержали 30 мин, затем перекрыли подачу водорода, температуру повысили до 400°C и проводили откачку ампулы с порошком в течение 1 часа до остаточного давления $5 \cdot 10^{-3}$ Па. На этой стадии металлический уран в ходе последовательного гидрирования-дегидрирования превратился в активный порошок с развитой удельной поверхностью, который впоследствии хорошо реагирует с азотом. Затем снизили температуру до 250°C, снова заполнили печь водородом, после выдержки 30 мин перекрыли подачу водорода, повысили температуру до 400°C и снова откачивали ампулу в течение 1 часа при этой температуре. В результате проведенных циклов «гидрирования-дегидрирования» получили порошок металлического урана крупностью 15-20 мкм. Увеличение количества циклов «гидрирования-дегидрирования» приводит к уменьшению крупности порошка. После 3 циклов «гидрирования-дегидрирования» заполнили объем печи азотом, температуру повысили до 800°C и выдержали порошок урана в течение 1 часа. В результате был получен порошок полуторного нитрида U_2N_3 , крупность которого составила ~15 мкм. После получения порошка U_2N_3 приступили к получению моонитрида урана, для чего перекрыли подачу азота и повысили температуру до 1100°C при непрерывной откачке. Длительность этой стадии составила ~30 мин. По окончании процесса был получен моонитрид урана с крупностью порошинок ~10 мкм (см. Фиг. 1 и 2).

Пример 3. Для проведения диффузионных экспериментов ядерное топливо - оболочка твэла изготовили тигли из исследуемых сталей ЭП-450, ЭП-450 ДУО, ЭП-823, X18N10T с внутренним диаметром 5 мм, а также конические крышки, внешний вид которых представлен на фиг. 3. Внутренняя поверхность тигля шлифована и протравлена в 5% спиртовом растворе азотной кислоты. В тигле разместили порошок нитрида урана в количестве 900 мг в инертной среде. Для выявления влияния химически активных элементов цезия, йода и теллура последние добавляли в порошок UN в количестве 7,0 мг, 2 мг, 2 мг соответственно, что определено для выгорания 100 ГВт-сут/тU, затем сверху поместили крышку и запрессовали с усилием 1 МПа. После диффузионного отжига тигель разрезали на электроискровом станке поперек на расстоянии 5 мм от одного из краев. Затем провели металлографическую подготовку образца (в условиях инертной атмосферы). При этом не использовали воду и водосодержащие растворители во избежание окисления. В качестве основного метода анализа использовали сканирующий электронный микроскоп с приставками микроанализа. Определили толщину слоя взаимодействия и концентрацию таких элементов, как азот, кислород,

уран в слое стали, граничащем с топливом. В свою очередь в топливе определили содержание хрома, железа, никеля. По результатам определения концентрации элементов были построены концентрационные кривые и рассчитана энергия активации. В случае исследований в присутствии химически активных элементов дополнительно определили содержание йода, теллура и цезия, как по отдельности, так и интегральное влияние.

Таким образом, предлагаемый способ по сравнению с ранее известными позволяет получить надежный контакт (адгезию) между образцами ядерного топлива и конструкционного материала, что дает возможность проводить испытания на совместимость ядерного топлива с конструкционными материалами (сплавы циркония и коррозионно-стойкие стали), а также проводить дореакторные исследования и предварительные оценки взаимодействия в топливных композициях. Что, в свою очередь, позволит проводить более качественные реакторные испытания и повышать выгорание и эксплуатационные параметры топлива реакторов на быстрых нейтронах.

Формула изобретения

1. Способ испытания на совместимость порошка ядерного топлива с материалом оболочки твэла, заключающийся в отжиге диффузионной пары порошка ядерного топлива и оболочки твэла, отличающийся тем, что предварительно из материала оболочки твэла изготавливают тигель с крышкой, причем внутреннюю поверхность тигля полируют, после чего в него запрессовывают порошок испытуемого ядерного топлива вместе с имитаторами продуктов деления и проводят герметизацию тигля в инертной газовой среде с последующим отжигом в диапазоне температур 600-1000°C.

2. Способ по п. 1, отличающийся тем, что в качестве ядерного топлива используют порошок урана, полученный или помолом стружки, или методом гидрирования-дегидрирования.

3. Способ по п. 1, отличающийся тем, что в качестве ядерного топлива используют порошок моонитрида урана крупностью 10-20 мкм, полученного из исходного металлического урана путем последовательного гидрирования-дегидрирования и азотирования урановой стружки.

4. Способ по п. 1, отличающийся тем, что для изготовления тигля и крышки используют коррозионно-стойкую сталь или сплавы циркония.

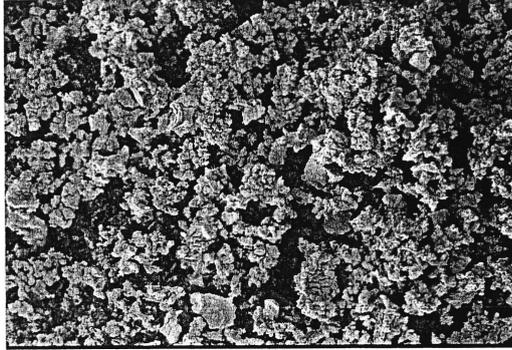
5. Способ по п. 1, отличающийся тем, что внутреннюю поверхность тигля полируют до значений шероховатости $Ra=0,16-0,125$ мкм.

6. Способ по п. 1, отличающийся тем, что крышку тигля изготавливают в виде усеченного конуса.

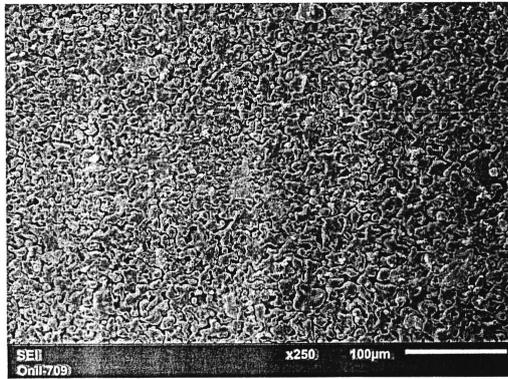
7. Способ по п. 1, отличающийся тем, что в тигель загружают порошок ядерного топлива с добавками имитаторов химически активных продуктов деления.

8. Способ по п. 1, отличающийся тем, что в качестве имитаторов химически активных продуктов деления используют йод, и/или цезий, и/или теллур, количество которых соответствует глубине выгорания ядерного топлива в интервале 60-150 ГВтсут/тУ.

Способ испытания на совместимость порошка ядерного топлива с
материалом оболочки твэла

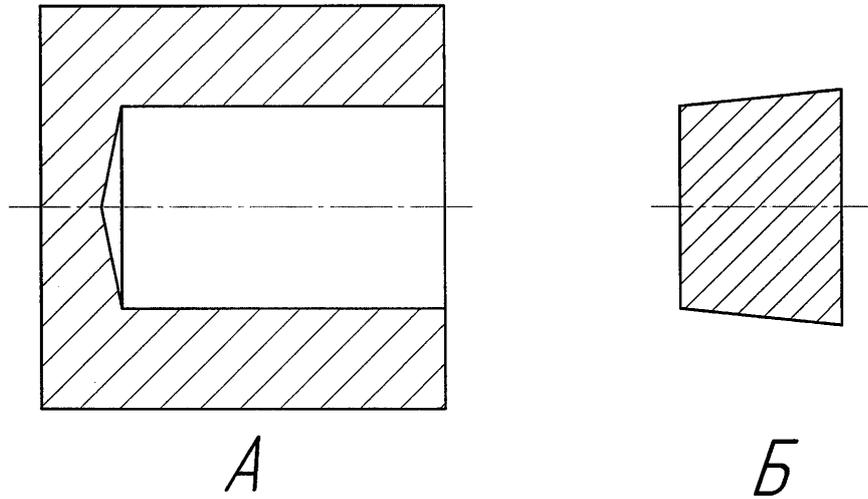


Фиг. 1



Фиг. 2

**Способ испытания на совместимость порошка ядерного топлива с
материалом оболочки твэла**



Фиг. 3