

## РЕАКТОРНЫЕ ПОЛЗУЧЕСТЬ И ДОСПЕКАЕМОСТЬ КРУПНОЗЕРНИСТОГО ТОПЛИВА $UO_2$

© 2023 г. Е. Н. Михеев<sup>a</sup>, А. В. Федотов<sup>a</sup> \*, Н. М. Рысов<sup>a</sup>, В. В. Новиков<sup>a</sup>,  
О. А. Бахтеев<sup>a</sup>, А. Л. Ижутов<sup>b</sup>, А. В. Бурукин<sup>b</sup>, С. В. Середкин<sup>b</sup>, Г. А. Ильиных<sup>b</sup>

<sup>a</sup>АО “Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов  
им. акад. А.А. Бочвара” (АО “ВНИИНМ”), Москва, 123098 Россия

<sup>b</sup>АО “Государственный научный центр – Научно-исследовательский институт атомных реакторов”  
(АО “ГНЦ НИИАР”), Димитровград, Ульяновской обл., 433510 Россия

\*E-mail: AnVFedotov@bochvar.ru

Поступила в редакцию 10.01.2023 г.

После доработки 17.01.2023 г.

Принята к публикации 09.02.2023 г.

С использованием разработанных методов и экспериментальных средств в реакторных условиях при плотности делений  $1.0 \cdot 10^{13}$  и  $1.2 \cdot 10^{13} \text{ 1}/(\text{см}^3 \text{ с})$  проведено исследование ползучести и доспекаемости образцов крупнозернистого топлива типа ВВЭР. Диаграммы деформации при исследовании ползучести в интервале напряжений 10–40 МПа получены при эффективной температуре образцов 943, 1020, 1200 и 1301 К. Показано, что до температуры 1123 К деформация в основном определяется радиационной ползучестью, что подтверждается ее линейной зависимостью от напряжения. При более высокой температуре увеличивается вклад радиационно-термической ползучести, причем ее вклад в общую деформацию возрастает с ростом напряжения. Значения скоростей ползучести, полученные при температурах 1200 и 1301 К, выше, чем для таблеток диоксида урана со стандартным зерном. Диаграмма деформации при исследовании доспекаемости топливного столба высотой 88.32 мм получена при эффективной температуре образцов 960 К. Доспекаемость по высоте составила (0.070–0.095) с учетом погрешности. Показано, что в пределах экспериментальной погрешности радиационная доспекаемость дает малый вклад в результирующую деформацию топлива в сравнении с ползучестью.

**Ключевые слова:** топливные таблетки, диоксид урана, реакторная ползучесть, доспекаемость, крупнозернистое топливо

**DOI:** 10.56304/S2079562922050591

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Для твэлов водоохлаждаемых реакторов на начальных этапах облучения механическое взаимодействие топливного сердечника с оболочкой зависит от ползучести и доспекаемости топлива и является одним из основных факторов, определяющих работоспособность и безопасность твэлов. При эксплуатации твэлов при температурах 873–973 К основной вклад в деформацию топлива под облучением вносит радиационная составляющая ползучести, а при более высоких температурах увеличиваются вклады термической и радиационно-термической составляющих ползучести, которые становятся преобладающими при 1173–1373 К [1]. Кроме того, на начальном этапе облучения вклад в деформацию топлива может вносить и доспекаемость топлива.

Деформация ползучести зависит от структурного состояния таблеток (отношение O/U, пори-

стость, размер зерна, примеси). Радиационная ползучесть топлива штатной технологии исследована подробно, однако для диоксида урана с крупным размером зерна таких данных в настоящее время нет. Поэтому цель настоящей работы – исследование ползучести крупнозернистого топлива, содержание примесей в котором находится в рамках требований ASTM [2].

### 2. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКИ

#### 2.1. Методики

Требования к разработанным экспериментальным средствам и основным параметрам испытаний ядерного топлива на ползучесть и доспекаемость подробно описаны в [3, 4]. Методика предполагает непрерывное измерение изменения высоты облучаемых образцов, нагруженных постоянным сжимающим усилием, или без нагрузки. Для ее реализации с учетом указанных требований раз-

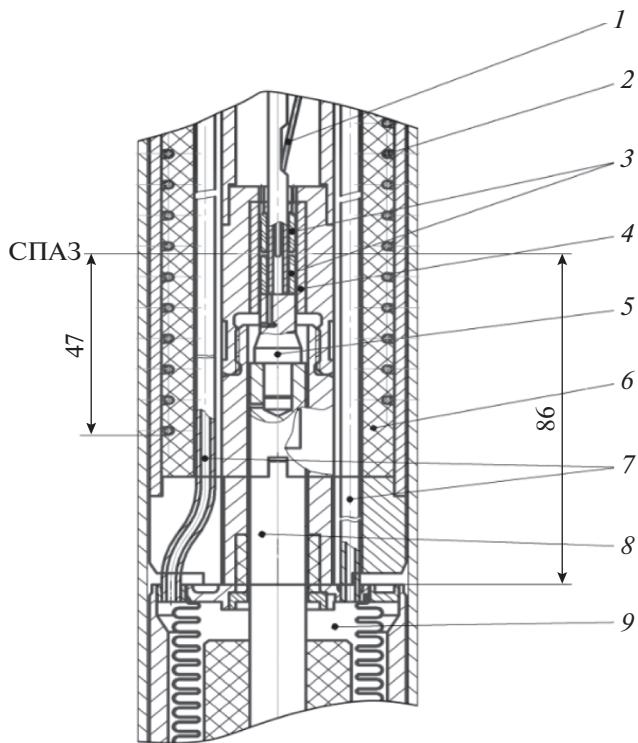


Рис. 1. Общий вид рабочего участка ОУ: 1 – термоэлектрические преобразователи, 2 – нагреватель, 3 – образцы, 4 – молибденовая гильза, 5 – молибденовый наконечник, 6 – графит, 7 – газовые линии, 8 – толкатель, 9 – сильфон, СПАЗ – срединная плоскость активной зоны.

работано облучательное устройство (ОУ), показанное на рис. 1, состоящее из нагружающего узла, соединенного с фланцем герметичной рабочей полости посредством сварки, устройства для передачи и регистрации деформации образца, нагревателя, биологической защиты и системы технологических коммуникаций [5]. В рабочей полости ОУ на уровне центра активной зоны размещались два образца исследуемого топлива.

Для нагружения использовалась пневматическая система, исполнительным элементом которой являлся однослойный сильфон из нержавеющей стали, рассчитанный на максимальное наружное избыточное давление 1.1 МПа [6]. Сильфон помещался в стальной корпус. К его внутренней и наружной полости приварены газовые линии для связи с газовакуумным стендом. Сила, создаваемая наружным давлением, передается образцам толкателем с молибденовым наконечником. Деформация от образца передается преобразователю индуктивному, радиационно-термостойкому [7], удлинительным штоком. На нижнем конце удлинительный шток представляет собой молибденовую трубку, проходящую к торцу нагружающего наконечника через центральное отверстие в образце. Для перемещения корпуса датчика и его

настройки на начало отсчета использовали винтовой механизм с возвратной пружиной.

На внешнем корпусе ОУ был установлен электрический нагреватель, предназначенный для регулирования и поддержания температуры испытаний. В зависимости от заданного уровня температур испытаний корпус нагревателя может быть изготовлен из графита или нержавеющей стали. Горячие спаи термопар размещались в молибденовом наконечнике удлинительного штока, проходящего через центральное отверстие образцов.

Информационно-измерительная система для проведения реакторных экспериментов включала в себя первичные преобразователи (датчики), электрические схемы для питания датчиков, системы детектирования и нормализации сигналов, амплитудно-цифровые преобразователи, микроконтроллер, управляющий и регистрирующий компьютер, а также программное обеспечение.

Для измерения температуры использовались термоэлектрические преобразователи хромель-алюмель производства АО «ГНЦ НИИАР» со стандартной градуировкой [8]. Основная приведенная погрешность измерения при использовании термоэлектрического преобразователя с учетом погрешности ее установки составляла 3%.

Для определения давления в пневматической системе нагружения образца использовался датчик избыточного давления «КУРАНТ-ДИ» производства ООО «Метроник» с верхним пределом измерения 2.5 МПа и пределом допускаемой основной погрешности 0.5%.

Функционирование первичных преобразователей, их связь с управляющим и регистрирующим компьютером обеспечивалась специально разработанным электронным блоком. Общее управление работой прибора осуществлялось 8-разрядным микроконтроллером ATMEGA163 производства National Instruments Ltd с тактовой частотой 8 МГц. Передача данных от персонального компьютера и управление работой осуществлялась с использованием специального драйвера. Для устранения помех была использована оптическая развязка. Программное обеспечение верхнего уровня информационно-измерительной системы было создано в пакете LabView [9].

Схема разработанных ОУ в виде капсюль в соответствии с предложенной методикой показаны на рис. 2. Принцип действия ОУ для определения доспекаемости аналогичен ОУ для определения ползучести за исключением отсутствия узла нагружения исследуемых образцов.

Деформация как функция времени описывается зависимостью вида:

$$\varepsilon(t) = \frac{\Delta L}{L} = \varepsilon_0 + \varepsilon_h(1 - e^{-ct}) + \xi t, \quad (1)$$

где  $\epsilon$  – общая деформация;  $\epsilon_0$  – начальная деформация;  $\epsilon_n$  – деформация на неустановившейся стадии ползучести;  $c$  – постоянная размерности обратного времени;  $\xi$  – стационарная скорость ползучести.

Для изучения реакторной ползучести было выбрано четыре температурных диапазона: 773–973, 973–1073, 1123–1223 и 1273–1373 К.

Исследование доспекаемости крупнозернистого топлива диоксида урана в условиях реакторного облучения целесообразно проводить при температуре меньше температуры хрупко-пластического перехода в топливе, когда основной вклад в деформацию вносит радиационная составляющая ползучести. Ожидаемая скорость деформации при определении доспекаемости оценивалась в пределах  $10^{-7}$ – $10^{-6}$  1/ч, что составляет примерно 0.1% относительной деформации по высоте таблетки (примерно 10 мм).

Необходимые условия облучения были реализованы в реакторе РБТ-6 АО “ГНЦ НИИАР” (входит в состав оборудования центра коллективного пользования “Облучение – материаловедение – исследовательский центр”), который позволяет проводить непрерывные испытания длительностью до 1600 ч, характеризуется высокой стабильностью нейтронного потока, удобством доступа к исследовательским каналам и простотой перегрузочных операций.

## 2.2. Образцы для исследований

Для испытаний на ползучесть использовали образцы в виде цилиндрических втулок внешним и внутренним диаметром 7.54–7.55 и 4.50–4.60 мм соответственно, высотой 10–11 мм. Такая толщина стенки втулки, примерно 1.5 мм, выбрана с учетом снижения трения по торцам образца и допустимого уровня термических напряжений при энерговыделении 350–400 Вт/см<sup>3</sup> [3]. Теоретическая плотность (ТП) исходных таблеток, рассчитанная для нестехиометрического отношения О/У равного 2.002–2.003 и периода решетки из работ [10, 11], составляла 10.95 г/см<sup>3</sup>. Обогащение топлива по изотопу <sup>235</sup>U было 4.0%. Образцы были изготовлены в АО “ВНИИНМ” путем механической обработки промышленных таблеток диоксида урана плотностью 95.8–96.2% ТП. Примесный состав образцов, определенный атомно-эмиссионной спектроскопией, приведен в табл. 1.

Для каждого реакторного испытания на ползучесть при одной температуре подбирали топливный столб из двух образцов высотой, не превышающей геометрические размеры измерительной части разработанной установки, т.е. не более 23 мм. При этом использовали в качестве прокладки молибденовую шайбу высотой от 1 до 3 мм с соответствующими диаметральными размерами.

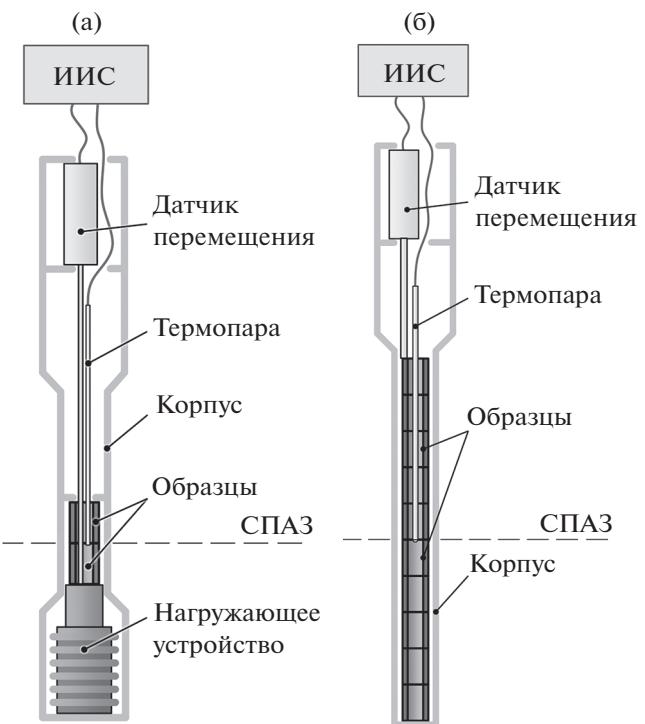


Рис. 2. Схема экспериментальных установок для определения реакторной ползучести (а) и доспекаемости (б).

Исследование термической ползучести в установке, схожей по конструктивным особенностям с рабочей частью ОУ, представленной на рис. 1 и 2а, показало, что при температуре 1523 К и напряжении 20, 30 и 40 МПа деформация образца составляла  $1.1 \cdot 10^{-4}$ ,  $4.0 \cdot 10^{-4}$  и  $1.0 \cdot 10^{-3}$  1/ч соответственно.

Для оценки среднего эффективного диаметра зерна (СЭДЗ) поперечные и продольные шлифы исходных топливных таблеток, подготовленные на этапе оценки пористости, были проправлены и исследованы с помощью оптического микроскопа Leica CTR-600 и электронного микроскопа Hitachi TM-3000. На рис. 3 представлено изображение шлифа, снятого на оптическом микроскопе при увеличении  $\times 200$ . Определение СЭДЗ проводили с помощью программы SIAMS Photolab [12] по точечным и интервальным оценкам.

Усредненное распределение зерен по размеру на шлифах, сделанных поперечно и продольно оси таблетки, приведено на рис. 4а. Среднее значение СЭДЗ для двух типов шлифов составило 26 мкм. На рис. 4б показано усредненное распределение пор по размерам в исходных таблетках, полученное оптической и электронной микроскопией на продольных и поперечных шлифах. Объемная доля всех пор 3.67%, а субмикронных – 0.36%.

Дореакторный тест термической доспекаемости, соответствующий NRC.1.126 [13], проводился в течение 24 ч при 1998 К в протоке газовой смеси

Таблица 1. Примесный состав таблеток

Примесный элемент	Содержание, ppm
Бор	<0.3
Железо	<30
Кремний	<30
Марганец	<3
Мед	<3
Никель	<30
Хром	<30
Азот	<20
Углерод	<10
Фтор	<1
Хлор	<6
Алюминий	97
Кальций	<100
Магний	<30
Вольфрам	<30
Ванадий	<30
Кадмий	<0.3
Молибден	<30
Фосфор	<150
Эрбий	<1
Гадолиний	<0.3
Цинк	1

Ar + 7% H<sub>2</sub>. Значение термической доспекаемости составило 0.09% по высоте таблеток.

Для реакторных испытаний на доспекаемость использовали 10 образцов в виде цилиндрических втулок из той же партии крупнозернистого топлива, исследованного на ползучесть. Внутренний диаметр был в пределах 4.2–4.7 мм. Высота топливного столба составила 88.32 мм.

### 2.3. Обоснование конструкции установки

Требуемые температуры испытаний топливных образцов в процессе реакторного облучения предполагалось обеспечивать конструкцией ОУ, выбором газов и материалов, термическим сопротивлением газовых зазоров, а также величиной энерговыделения. Для этого был проведен тепловой расчет для ОУ, расположенного в канале, охлаждение которого осуществляется водой. Температура внешней поверхности канала, равная 323 К, принята в качестве граничного условия.

Расчеты с помощью программного комплекса ANSYS [14] проведены при нулевой мощности нагревателя. Условия облучения соответствовали размещению ОУ в выбранных каналах реактора РБТ-6. Расчеты проводились при изменении

энерговыделения топлива в интервале 250–550 и 300–450 Вт/см<sup>3</sup> для экспериментов на ползучесть и доспекаемость соответственно. Тепловое излучение, помимо теплопроводности для соответствующих газов, учитывалось только в зазоре между топливными образцами и молибденовой оболочкой, в которой они размещались. Излучательная способность ε для топлива принималась равной 0.8. Расчет проводился для стационарных условий. Задаваемая точность расчета – 0.01. Расчетная схема-модель установок для исследования ползучести и доспекаемости представлена на рис. 5. Примеры расчетов распределения температуры в элементах установок приведены на рис. 6 и 7. Результаты всех расчетов для образцов показаны на рис. 8.

Анализ данных теплового расчета для установки для исследования ползучести показал, что в случае заполнения гелием варьированием зазора между молибденовой оболочкой и образцами в диапазоне 0.2–0.6 мм можно обеспечить максимальную температуру топлива в диапазоне от 873 до 1173 К при энерговыделении 400 Вт/см<sup>3</sup>. При заполнении установки неоном при этом энерговыделении максимальные температуры изменяются в интервале 1373–1773 К при значениях зазора 0.2–0.4 мм. В установке для исследования доспекаемости показано, что достаточно использовать только гелий. Полученные расчетные данные перекрывают требуемые интервалы температур испытаний.

## 3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ УСЛОВИЯ

Реакторную ползучесть исследовали в каналах № 4 и 7 активной зоны реактора. Плотность потока нейтронов с энергией  $E < 0.5$  эВ в выбранных каналах составляла  $2.6 \cdot 10^{13}$  и  $2.4 \cdot 10^{13}$  1/(см<sup>2</sup> с) соответственно. Проведено четыре цикла испытаний при температуре 938, 1007, 1138 и 1251 К, измеренной в центральном отверстии ( $T_c$ ) верхнего образца, при напряжении 20, 30 и 40 МПа, для максимальной температуры при напряжении 10, 20 и 30 МПа. Плотность делений в образцах составляла  $1.0 \cdot 10^{13}$  1/(с·см<sup>3</sup>) для минимальной температуры (канал № 7) и  $1.2 \cdot 10^{13}$  1/(с·см<sup>3</sup>) для остальных температур (канал № 4). Плотность делений определяли расчетом с помощью численной модели реактора РБТ-6, созданной на основе пакета прикладных программ MCU, версии MCU RR [15], в котором реализован аналоговый метод Монте–Карло совместного моделирования траекторий нейтронов и гамма-квантов в трехмерной геометрии. Константное обеспечение пакета базируется на библиотеке ядерных данных DLC/MCUDAT-2.1 [16].

После завершения программы испытаний при температуре 1007 К и напряжении 40 МПа предполагалось предварительно проверить влияние радиационного уплотнения на результаты исследования ползучести, полученные в начальном режиме ис-

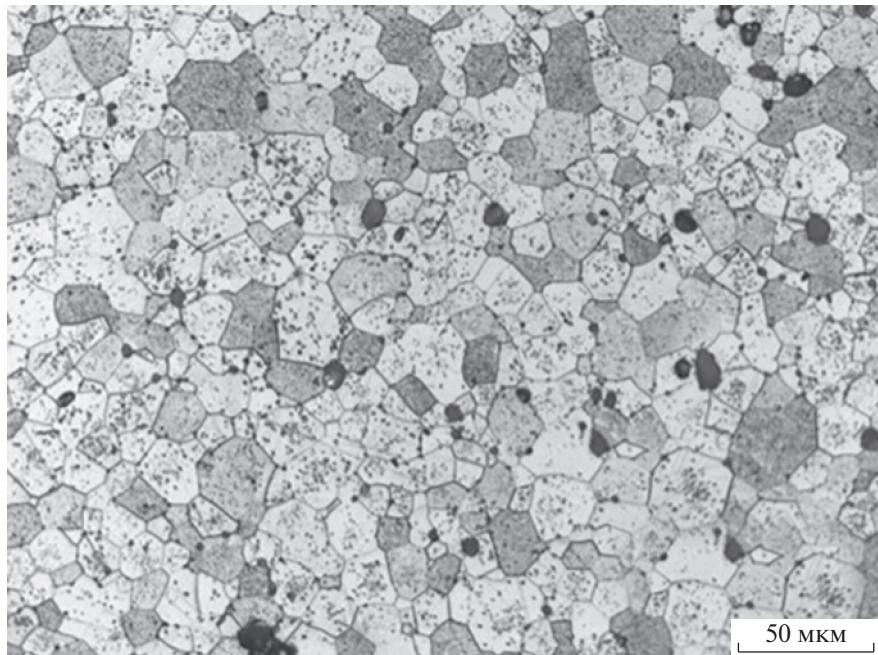


Рис. 3. Микроструктура исходных таблеток (увеличение  $\times 200$ ).

пытаний. Для этого было снижено напряжение до 20 МПа. Общая продолжительность испытаний при одной температуре на постоянной мощности реактора 5.5–6.0 МВт составляла от 340 до 1380 ч.

Расчетная плотность делений в образцах, определенная через предварительную регистрацию плотности потока нейтронов в выбранном канале № 7 датчиком ДПЗ, в процессе эксперимента по облучению топлива на доспекаемость соответствовала мощности объемного энерговыделения (280–340) Вт/см<sup>3</sup>. Разброс связан с погрешностью определения плотности потока нейтронов и сечений деления. Температура, измеренная с помощью термопары в центре топливного столба в процессе реакторного облучения равнялась 918–923 К после выхода реактора на мощность. После стабилизации условий облучения температура была повышена нагревателем до 958 К и поддерживалась в процессе всего эксперимента. Среднее значение температуры в центре топливного столба при облучении на доспекаемость составило 955 К, что в пределах погрешности совпадает с соответствующим значением для эксперимента на ползучесть при минимальной температуре. Общее время облучения с учетом пробного пуска и одной плановой остановки реактора составило 1800 ч, что соответствует с учетом плотности делений и сверхстехиометрии исходного топлива удельному выигрышанию 2.5 МВт сут/кгУ.

Оценка общей экспериментальной погрешности определения деформации в экспериментах как на ползучесть, так и на доспекаемость не превышает 15%.

## 4. РЕЗУЛЬТАТЫ

### 4.1. Общая деформация под нагрузкой при облучении (эксперимент на ползучесть)

На рис. 9 показаны зависимости регистрируемой относительной деформации образцов диоксида урана от времени при различных нагрузках и температурах в процессе облучения. Обработкой диаграмм деформации методом математической статистики получены минимальные значения скорости деформации в стационарном состоянии для каждого режима испытаний. На примере повторного участка испытаний при температуре 1007 К и напряжении 20 МПа предварительная оценка показала несущественный вклад доспекаемости в общую деформацию: величина скорости ползучести  $1.6 \cdot 10^{-6}$  1/ч примерно в полтора раза меньше скорости ползучести на первом режиме испытаний.

Температуру в образцах определяли на основе полученных экспериментальных данных [3, 4] по методике, приведенной в [3, 17], с помощью программного комплекса ANSYS. Вычисленная эффективная температура для каждого цикла испытаний равна 943, 1020, 1200 и 1301 К с погрешностью определения 5%. Пример расчетного распределения температуры в образцах при испытании на ползучесть показан на рис. 10 в осевой симметрии для сектора с углом 5° для внутренней поверхности (а) и по высоте для трех позиций с различным радиусом (б). Перепад температур по высоте и радиусу достигает 75 и 50 К соответственно.

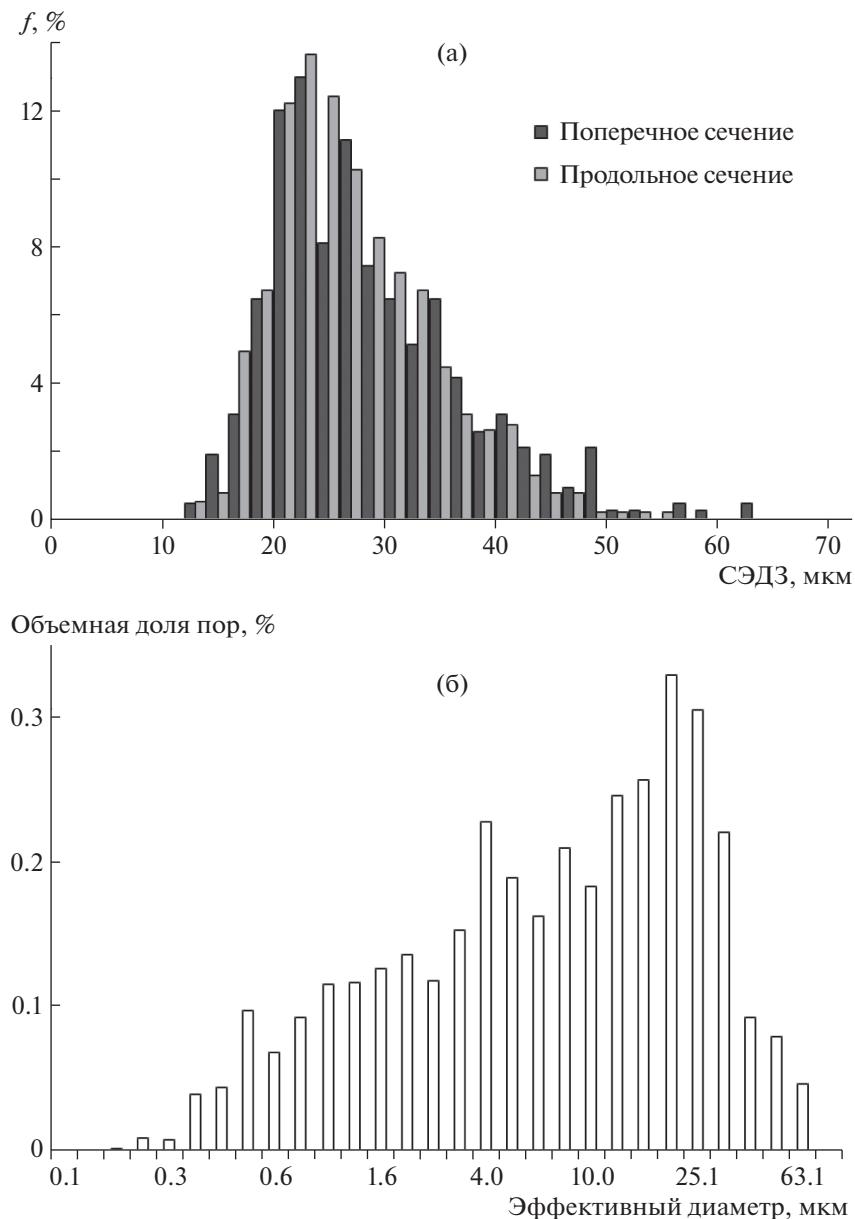


Рис. 4. Усредненные параметры микроструктуры исходных таблеток: (а) распределение СЭДЗ, (б) распределение пор.

На рис. 11 представлены зависимости скорости реакторной ползучести в зависимости от напряжения, полученные из диаграмм деформации, приведенных на рис. 9.

Анализ этих результатов показал, что в области низких (943 и 1020 К) температур зависимость скорости ползучести от напряжения имеет линейный характер, а также ползучесть не зависит от температуры. При температурах выше 1020 К увеличивается вклад радиационно-термической составляющей ползучести. При этом зависимость скорости ползучести от напряжения описывается комбинацией линейной и степенной функций.

Энергия активации ползучести возрастает от 91 до 267 кДж/моль с повышением температуры с

1020 до 1200 К соответственно, причем влияние радиационно-термической составляющей ползучести возрастает с ростом напряжения.

#### 4.2. Общая деформация без нагрузки при облучении (эксперимент на доспекаемость)

Диаграмма изменения перемещения при исследовании доспекаемости представлена на рис. 12. Изменение относительной деформации по высоте топливного столба вычислялось как

$$\frac{\Delta L}{L_0} = \frac{L - 200}{L_0}, \quad (2)$$

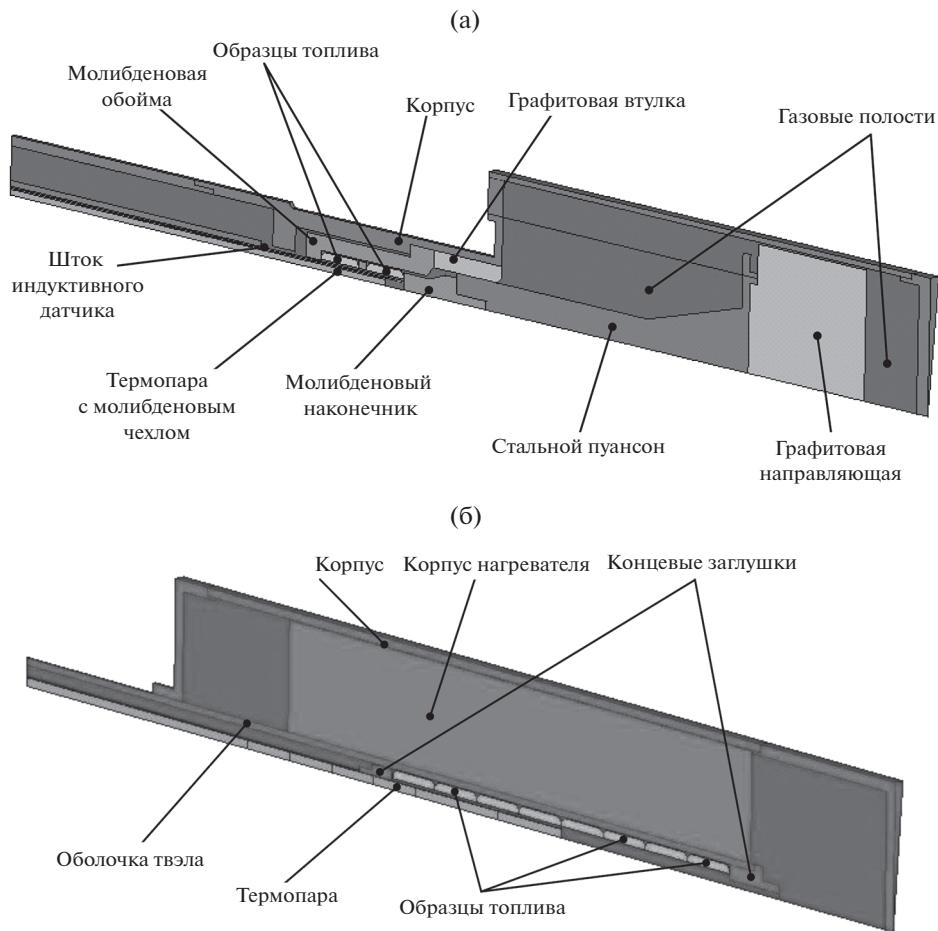


Рис. 5. Расчетная схема-модель установок для исследования ползучести (а) и доспекаемости (б).

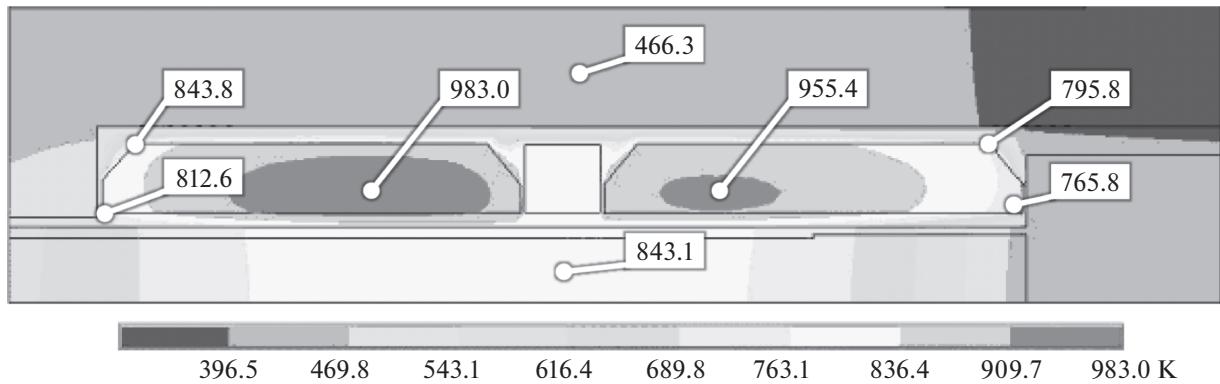


Рис. 6. Пример распределения температуры в элементах установки для исследования ползучести при энерговыделении  $350 \text{ Вт}/\text{см}^3$  (газ в полости капсулы гелий, зазор 0.6 мм).

где  $L$  – текущее показание датчика перемещений;  $L_0$  – начальная высота топливного столба, равная 88.32 мм. Анализ кривой показал, что в процессе реакторного облучения топливного столба, показания датчика перемещений составили 128 мкм при

начальной точке 200 мкм, т.е. изменение высоты составило 72 мкм, что соответствует усадке 0.082%.

Экспериментальные результаты, приведенные на рис. 12, хорошо описываются зависимостью [18, 19] вида

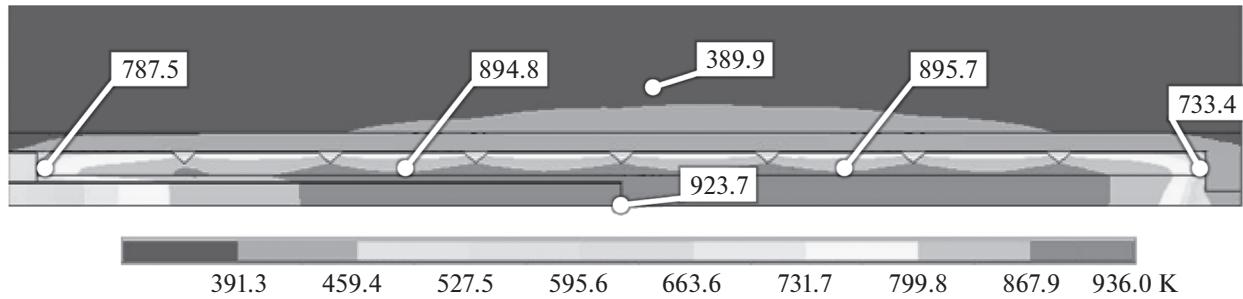


Рис. 7. Пример распределения температуры в элементах установки для исследования доспекаемости при энерговыделении 400 Вт/см<sup>3</sup> (газ в полости капсулы гелий, зазор 0 мм).

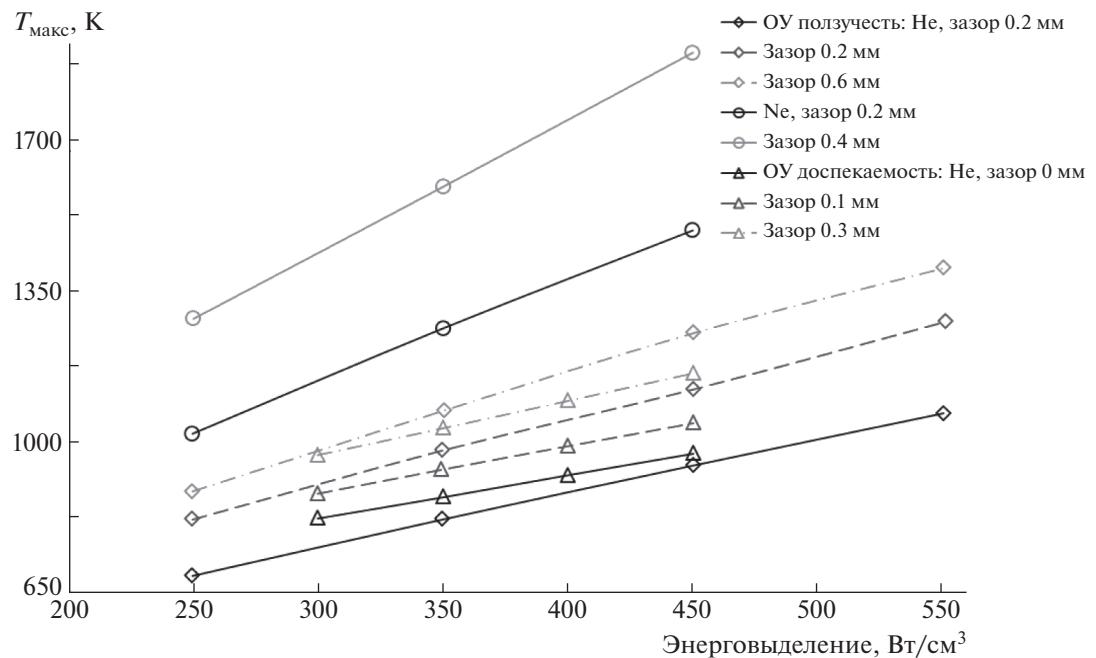


Рис. 8. Максимальные температуры в зависимости от энерговыделения для различных зазоров между топливными образцами и молибденовой ампулой.

$$\frac{\Delta L(t)}{L} = -a(1 - e^{-bt}), \quad (3)$$

где параметр  $a$  определяет максимальное уплотнение топлива на всем временном участке; а параметр  $b$  – величина обратная характерному времени радиационного доспекания.

Используя автоматический подбор функций, результаты которого также приведены на рис. 12, получены следующие значения:  $a = 0.00081$ ,  $b = -0.0031$ . Таким образом, за достигнутое время облучения относительное изменения высоты, связанное с уплотнением топлива, равно 0.081%. Если принять, что процесс радиационного доспекания топлива зависит в основном от доли мелких пор в их распределении по размерам [20], то объем субмикронных пор уменьшится на 0.24%

или примерно на 2/3 от их исходного объема. Послереакторные микроструктурные исследования не выявили в пределах погрешности определения для достигнутых выгораний изменение параметров СЭДЗ и пористости. Можно предположить, что оценочное изменение пористости (доспекание) связано с наличием пор размером меньше 1 мкм, точное детектирование которых крайне затруднено по причине незначительного вклада в общую пористость.

Анализ выражения (3) показывает, что максимальное значение радиационной доспекаемости с учетом распускания составит 0.081% и не превысит приведенную выше величину термической доспекаемости.

Эффективная температура топливного столба, рассчитанная по упомянутой выше методике, бы-

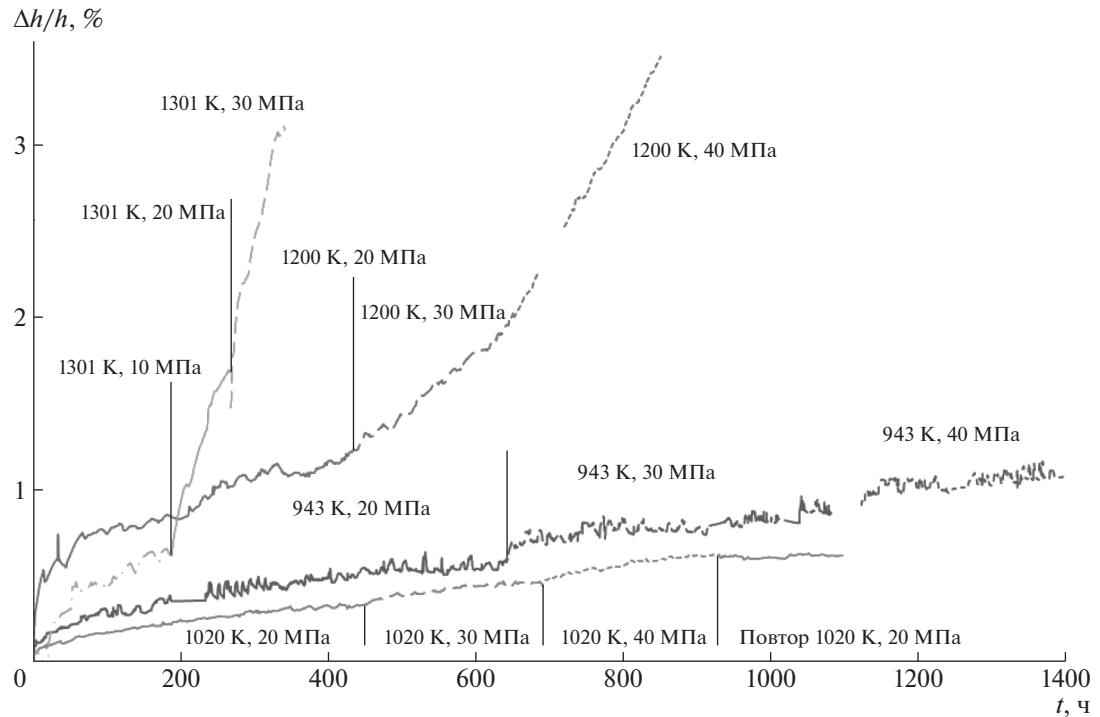


Рис. 9. Диаграмма относительной деформации образцов по высоте при различных напряжениях и температуре.

ла на 5 К выше определяемой с помощью термопары температуры в центре топливного столба и составила 960 К. Расчетный перепад температуры по радиусу образца в центральном осевом сечении топливного столба равен 75 К при среднем значении мощности объемного энерговыделения.

## 5. ОБСУЖДЕНИЕ

### 5.1. Сравнение данных по ползучести

На рис. 13 показана зависимость скорости стационарной термической (без облучения) и реакторной ползучести от обратной температуры для диоксида урана в виде образцов различной формы (втулки, кольца и пружинки), в том числе с крупным зерном [21–26]. В табл. 2 приводится детальное пояснение этих данных. Все экспериментальные результаты пересчитаны на 95% ТП, плотность делений  $1.2 \cdot 10^{13} \text{ 1/(см}^3 \text{ с)}$  и напряжение 20 МПа; указаны плотность, обогащение, размер зерна, отношение О/М и газовая среда.

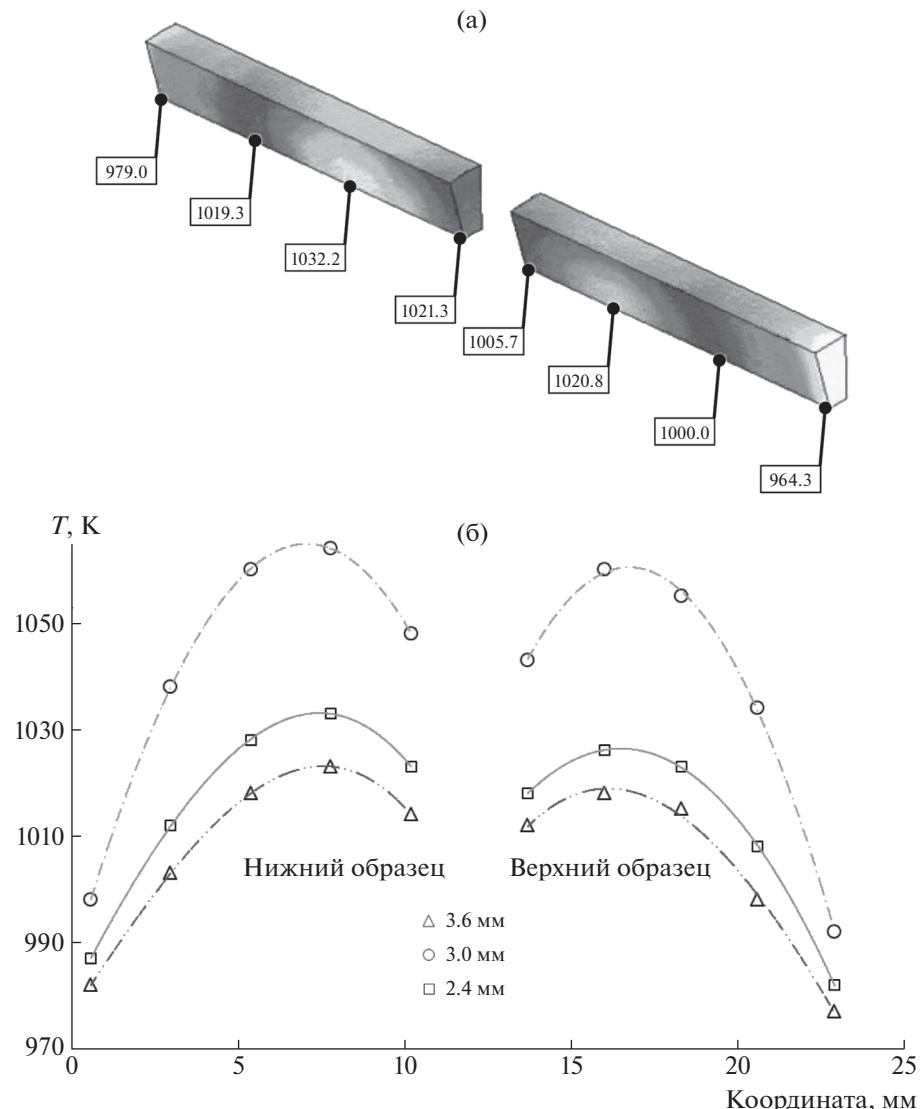
Большинство приведенных на рис. 13 данных близки друг к другу. Исключение составляют работы [22, 23], в которых значение скорости ползучести при максимальных температурах, 1153 и 1443 К соответственно, существенно отличается от других данных для реакторной ползучести для соответствующего размера зерна. Отсутствие в работе [22] экспериментальных точек при температуре выше 1153 К (или менее 0.86 1/K для обрат-

ной температуры) не позволяет сделать какой-либо вывод о ходе зависимости этих данных в радиационно-термической области ползучести.

Данные работы [21] лежат в температурном интервале, в котором преобладает радиационный вклад в ползучесть, а данные работ [24, 25] в интервале температур, соответствующих радиационно-термической составляющей. Сравнить их во всем представленном температурном интервале не представляется возможным. Однако именно в этих интервалах результаты работы [21] коррелируют со всеми другими данными по реакторной ползучести, а результаты работы [24] практически совпадают с данными [25] для стандартного размера зерна без добавок.

Общим трендом всех представленных данных является близость наших результатов по реакторной ползучести к результатам работ [25, 26], в которых использовались различные добавки.

Анализ приведенных данных показывает, что ниже температуры 1123 К (или более 0.89 1/K) скорости ползучести практически не зависит от температуры. Выше 1123 К и вплоть до температуры хрупко-пластического перехода диоксида урана (примерно 0.4  $T_{\text{пл}}$ , где  $T_{\text{пл}}$  – температура плавления) скорость ползучести существенно возрастает по степенному закону, причем значения реакторной ползучести на порядок больше термической ползучести соответствующих образцов. Также при этих температурах для диоксида урана с крупным



**Рис. 10.** Типичное расчетное распределение температуры в образцах под облучением: (а) расчетное распределение температур на внутренней поверхности (цифрами показаны температуры в указанных точках), (б) по высоте (вид на втулку – сверху) втулки внутренним радиусом 2.29 и внешним радиусом 3.775 мм во втором эксперименте ( $T_{\text{н}} = 1007$  К) для позиций радиусом 2.4 (□), 3.0 (○) и 3.6 (△) мм.

зерном, полученным с использованием различных добавок, как термическая, так и реакторная скорость ползучести примерно на порядок выше, чем у соответствующего топлива как со стандартным, так и с крупным размером зерна без добавок.

### 5.2. Сравнение данных по доспекаемости

Полученное значение доспекаемости в настоящей работе при достигнутом выгорании сравнивались с результатами работ [27–29], представленных на рис. 14.

Рассчитанное в соответствии с полуэмпирической моделью [27] для реакторного уплотнения топлива значение изменения относительного объе-

ма диоксида урана с размером зерна 6.5 мкм, моно-модальным распределением пор с долей субмикронных пор менее 1.1% и плотностью 93.9% составило порядка 0.3% (рис. 14а). Это соответствует 0.1% уплотнения по высоте топливной таблетки и полностью совпадает в пределах погрешности со значением доспекаемости крупнозернистого топлива, полученного в нашей работе.

Кроме этого, для топлива с размером зерна 8.5 мкм (рис. 14б), с большей плотностью (порядка 96%) и таким же распределением пор, но меньшим содержанием субмикронной пористости (0.6%) наблюдается снижение пористости на величину примерно 0.26%, что коррелирует с нашими оценками, приведенными выше.

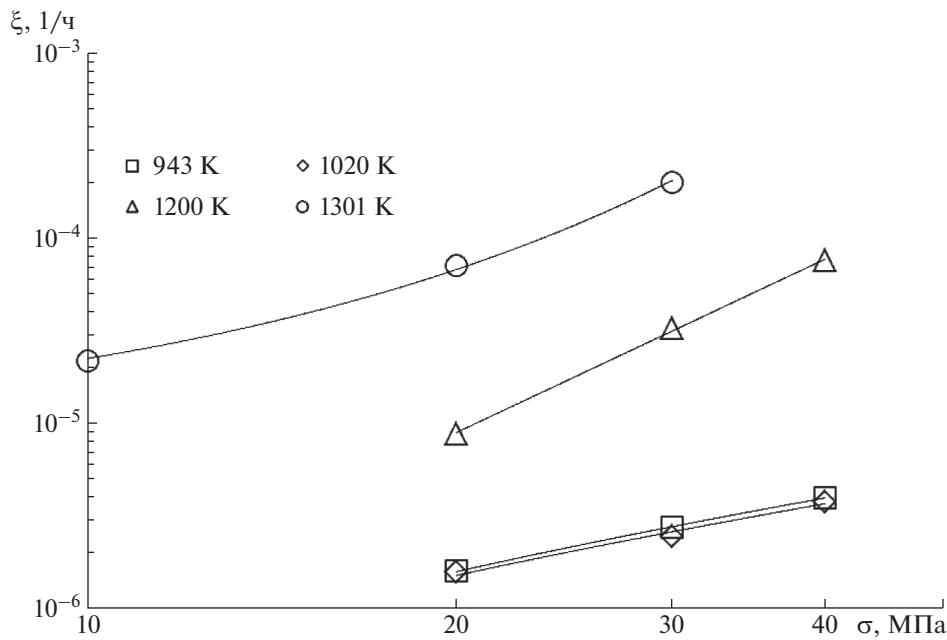


Рис. 11. Зависимость скорости реакторной ползучести от напряжения при температуре 943 ( $\square$ ), 1020 ( $\diamond$ ), 1200 ( $\Delta$ ) и 1301 ( $\circ$ ) К.

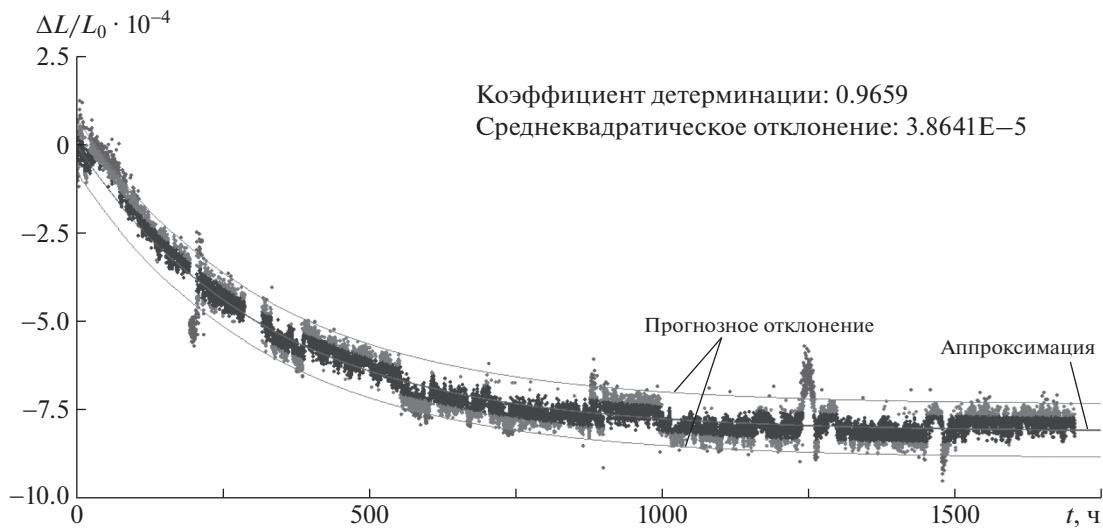


Рис. 12. Диаграмма изменения перемещения топливного столба и аппроксимация экспериментальных результатов по уравнению (5) для доверительного интервала 0.95; цвета точек: темно-серый, светло-серый и серый – экспериментальные значения внутри интервалов распределения  $1\sigma$ ,  $2\sigma$  и вне  $2\sigma$  соответственно.

Для топлива PWR [28, 29] с размером зерна 9–10 мкм, плотностью 95.1–95.3%, бимодальным распределением пор, содержанием субмикронной пористости 0.6–0.8% наблюдается снижение относительного объема на величину 0.2–0.4% (рис. 14в), что также хорошо коррелирует с нашими оценками.

Анализ экспериментальных данных работ [28, 29] с учетом оценок, полученных в нашей работе,

подтверждает тенденцию уменьшения доспекаемости топлива при снижении субмикронной пористости.

### 5.3. Оценка влияния вклада доспекаемости на скорость деформации

Для оценки вклада доспекаемости на скорость деформации в процессе реакторного облучения

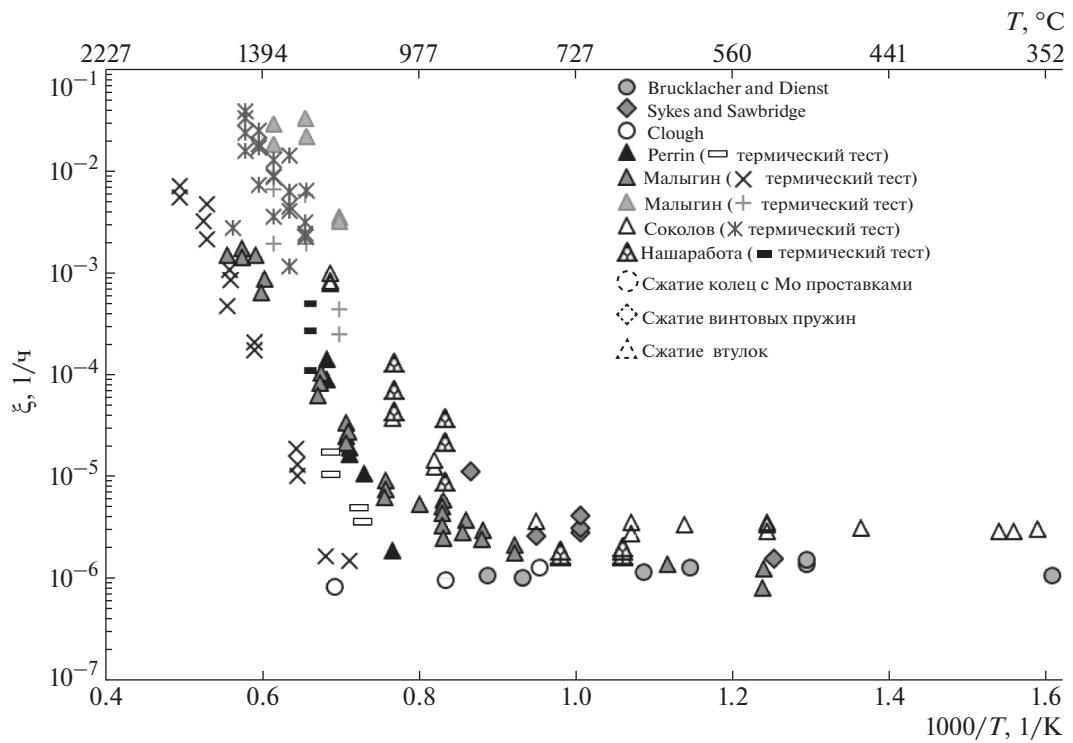


Рис. 13. Термическая и реакторная скорость ползучести для различного вида образцов и состава диоксида урана при напряжении 20 МПа, плотности делений  $1.2 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1} \text{ см}^{-3}$ , плотности топлива 95% ТП.

топлива необходимо установить при близких температурах скорость уплотнения в эксперименте по определению доспекаемости и сравнить ее со скоростью уплотнения в эксперименте по определению ползучести при различных нагрузках. Зависимости скорости деформации при напряжении 20, 30 и 40 МПа и скорость уплотнения при доспекаемости, рассчитанные для всего времени облучения, приведены на рис. 15. Скорость деформации и скорость усадки в процессе доспекаемости определялись из частной производной от-

носительной деформации топливного столба по времени зависимостей (1) и (3) соответственно.

Показанные на рис. 15 временные зависимости доли доспекаемости в скорость общей деформации дают возможность определить искомый вклад доспекаемости на стационарном участке. Как видно из представленных данных, вклад радиационной доспекаемости при исследовании реакторной ползучести при напряжении 20 МПа составляет не более 20%, а при напряжении 30 и 40 МПа – менее 10% от значения скорости стаци-

Таблица 2. Пояснение данных по скорости ползучести, приведенных на рис. 13

Символ	Авторы	Добавки	ТП, %	Обогащение, %	Размер зерна, мкм	Отношение О/У	Атмосфера	Ссылка
●	Brucklacher & Dienst	–	95–97	1–5	10–35	2.000–2.005	NaK	[21]
◆	Sykes & Sawbridge	–	>97.5	0.72	8–10	–	Ar	[22]
○	Clough	–	97–98	2; 4.7; 20	10–15	2.002–2.005	Не указано	[23]
▲	Perrin	–	98	24.48	27	2.005	He	[24]
▲	Малыгин	–	94–96	2.4–6.5	9–20	2.001–2.003	He	[25]
▲	Малыгин	Fe–O–Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	97	2.4–6.5	25	2.004–2.006	He	[25]
△	Соколов	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> –Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	96	4.4	18.5	2.001–2.002	He	[26]
△	Наши данные	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> –SiO <sub>2</sub>	96	4.0	26	2.002–2.003	He	–

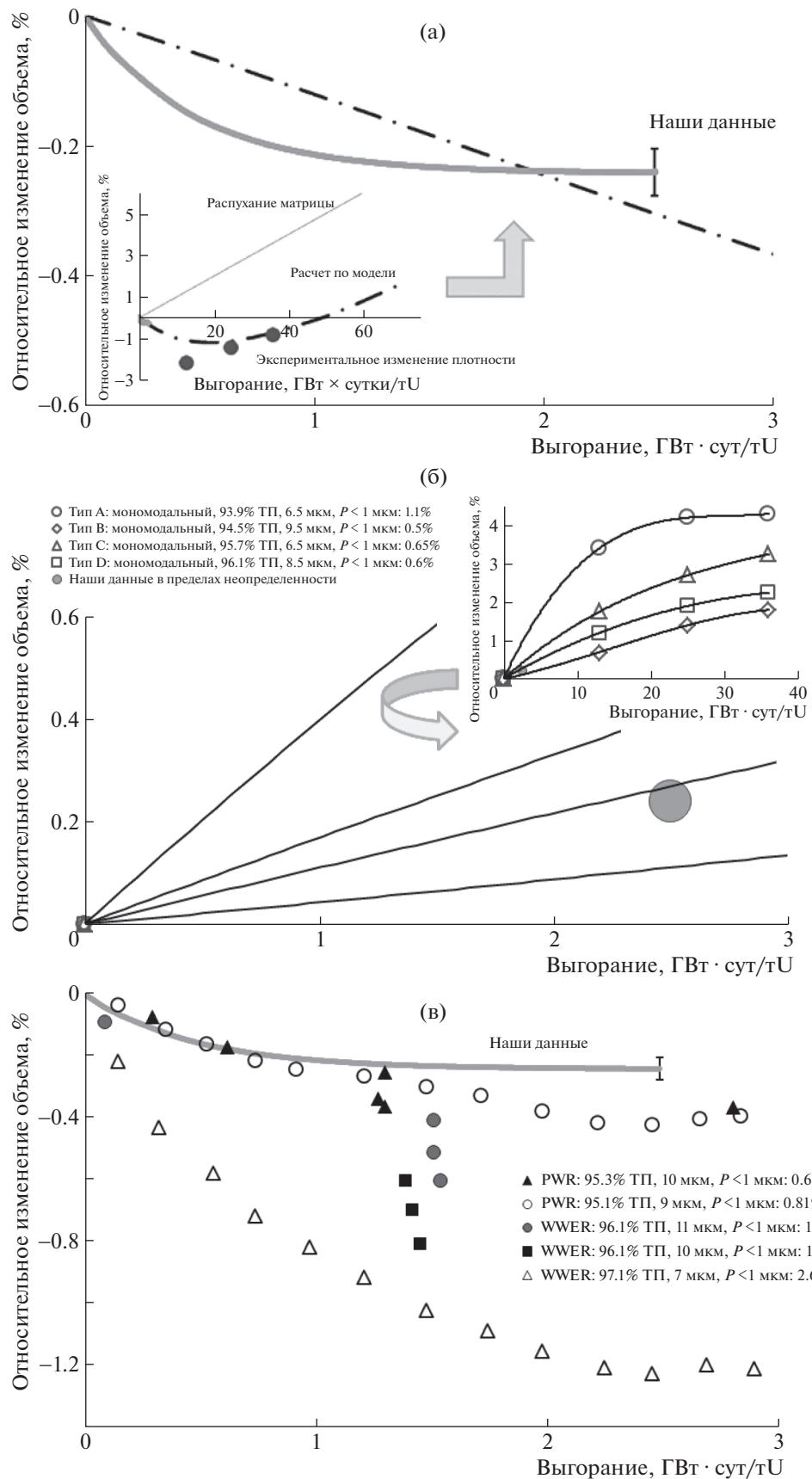


Рис. 14. Сравнение результатов по доспекаемости с данными: (а) и (б) [27], (в) [28, 29].

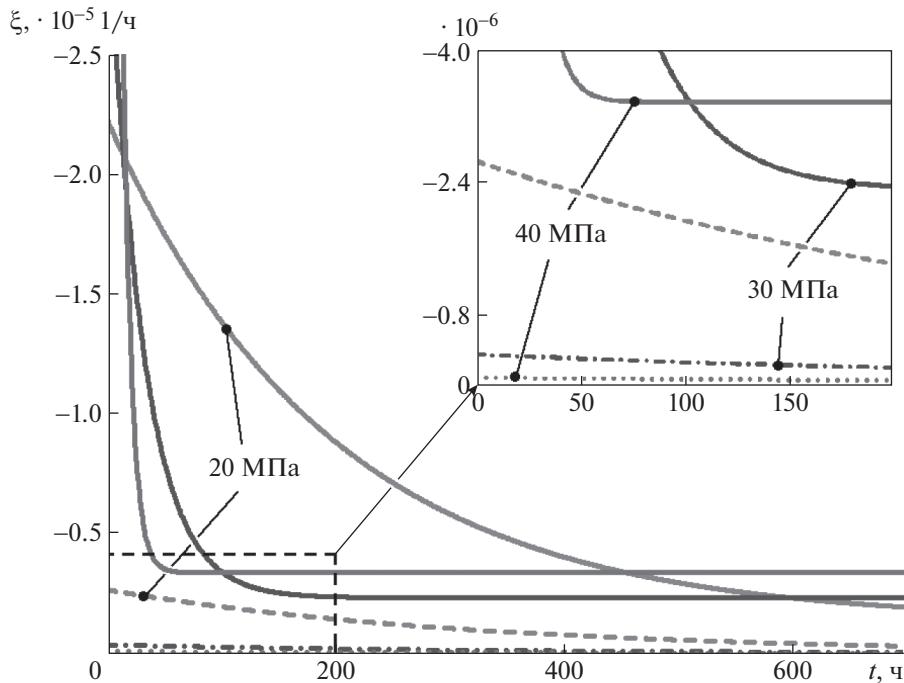


Рис. 15. Скорость ползучести (линия) и скорость уплотнения при доспекаемости (пунктирные и штрихованные линии).

онарной ползучести и в пределах экспериментальной погрешности (15%) определения каждой характеристики не влияет на скорость стационарной ползучести.

#### 5.4. Оценка вклада распухания на скорость деформации

В области температур ниже  $0.4T_{пл}$  на начальных этапах облучения распухание определяется накоплением осколков деления. Скорость изменения объема составляет  $(2.9-4.2) \cdot 10^{-23} \text{ см}^3/\text{дел}$  или порядка 0.8 об. % на процент выгорания [21]. В обсуждаемых экспериментальных результатах плотность делений составляла  $(1.0-1.2) \cdot 10^{13} \text{ 1}/(\text{см}^3 \cdot \text{с})$ . Это означает, что в измеряемой скорости деформации присутствует постоянная составляющая распухания со скоростью  $(3.5-6.0) \cdot 10^{-7} \text{ 1/ч}$ , равная по порядку, но с противоположным эффектом, соответствующему значению доспекаемости, которая также не влияет существенно на скорость стационарной ползучести.

## 6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных исследований установлено, что скорость стационарной реакторной ползучести крупнозернистого топлива ВВЭР при напряжении от 10 до 40 МПа при среднем значении эффективной температуры в образцах 943, 1020, 1200 и 1301 К составила  $(1.35-3.35) \cdot 10^{-6}$ ;  $(1.6-3.8) \cdot 10^{-6}$ ;  $(0.9-7.6) \cdot 10^{-5}$  и  $(0.2-2.0) \cdot 10^{-4} \text{ 1/ч}$ .

соответственно. Определено, что до температуры примерно 1123 К деформация в основном определяется радиационной ползучестью, и полученные результаты практически не отличаются от соответствующих данных для топлива с различным содержанием добавок и размером зерна. При более высокой температуре увеличивается вклад в общую деформацию радиационно-термической ползучести, причем он возрастает с ростом напряжения, а значения скорости ползучести при этом больше примерно на порядок в сравнении с топливом без добавок с различным размером зерна, что будет благоприятно сказываться на взаимодействие топливо-оболочки в процессе реакторного облучения.

Показано, что радиационная доспекаемость по высоте топливного столба при среднем значении эффективной температуры образцов 960 К и выгорании 2.5 МВт·с/кгU достигает своего максимума и не превышает значения термической доспекаемости (не более 0.1%), и в пределах экспериментальной погрешности дает малый вклад в результирующую деформацию топлива в сравнении с ползучестью.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Данную работу авторы посвящают памяти д.т.н., профессору НИЯУ МИФИ Малыгину В.Б., внесшему значительный вклад в разработку методов и экспериментальных средств для изучения характеристик топлива в реакторных условиях.

Работа выполнена по заказу АО “ТВЭЛ”.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. *Solomon A.A., Roubort J.L., Voglewede J.C.* Fission Induced Creep of  $UO_2$  and Its Significance to Fuel Element Performance. 1971. Chicago: Argonne National Laboratory.
2. ASTM C776-17. Standard Specification for Sintered Uranium Dioxide Pellets for Light Water Reactors. 2017.
3. *Mikheev E.N. et al.* // Proc. Top Fuel 2015: Reactor Fuel Performance. 2015. P. 379.
4. *Mikheev E.N. et al.* // Proc. Top Fuel 2016: LWR Fuels with Enhanced Safety and Performance. 2016. P. 463.
5. *Малыгин В.Б. и др.* Патент РФ на полезную модель № 117701. Г21Д 1/00. Бюллетень "Изобретения. Полезные модели". 2012. № 18. С. 202.
6. ГОСТ Р 50618-93. Национальный стандарт Российской Федерации. Сильфоны компенсаторные однослойные металлические. Типы, общие технические требования.
7. *Малыгин В.Б., Ремезов В.Н., Силин А.А.* // Труды "Испытания реакторных материалов". 1988. Москва: Энергоатомиздат. С. 34–36.
8. ГОСТ Р 8.585-2001. Национальный стандарт Российской Федерации. Термопары. Номинальные статические характеристики преобразования.
9. LabView Professional Development System. National Instruments Ltd. 2013. <https://www.ni.com/en/shop/labview/select-edition.html>
10. *Lynds L. et al.* X-Ray and Density Study of Nonstoichiometry in Uranium Oxides. 1963. Washington: American Chemical Society.
11. *Leinders G. et al.* // J. Nucl. Mater. 2015. V. 459. P. 135.
12. SIAMS Photolab Version 4.0-b-r 3834: <http://siams.com>.
13. Regulatory Guide Office of NRC 1.126: An Acceptable Model and Related Statistical Methods for the Analysis of Fuel Densification. 2010. U.S.: Nuclear Regulatory Commission.
14. ANSYS 7.0 Documentation. Thermal Analysis Guide. 2009. Canonsburg: ANSYS Inc.
15. *Иванов В.Б., Цыканов В.А., Булычева Л.В., Ванеев Ю.Е. и др.* Труды по нейтронно-физическими характеристикам каналов облучения реактора СМ. Отчет инв. № О-4479. 1996. Димитровград: НИИАР.
16. Программа MCU-RR с библиотекой ядерных констант DLC/MCUDAT-2.1. Отчет инв. № 36/16-2000. 2000. Москва: НИЦ "Курчатовский институт".
17. *Perrin J.* // J. Nucl. Mater. 1972. V. 42 (1). P. 101.
18. *Stehle H., Assman H.* // J. Nucl. Mater. 1974. V. 52 (2). P. 303.
19. *Olander D.* Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements. TID-26711-P1. 1976. U.S.: Energy Research and Development Administration.
20. *Малыгин В.Б.* // Инженерная физика. 1999. Т. 1. С. 23.
21. *Brucklacher D., Dienst W.* // J. Nucl. Mater. 1972. V. 42. P. 285.
22. *Sykes E.C., Sawbridge P.T.* Irradiation Induced Creep of Uranium Dioxide: Tech. Report RD/B/N 1489. 1969. Berkeley: Central Electricity Generating Board.
23. *Clough D.J.* // J. Nucl. Mater. 1977. V. 65. P. 24.
24. *Perrin J.* // J. Nucl. Mater. 1971. V. 39. P. 175.
25. *Малыгин В.Б.* Механические свойства и размерная стабильность топлива энергетических ядерных реакторов. Дисс. д.т.н. 1997. Москва.
26. *Соколов А.Н.* Экспериментальное и расчетное обоснование использования оксидного топлива с низким сопротивлением деформированию в ТВЭлах энергетических реакторов. Дисс. к.т.н. 05.14.03. 2005. Москва.
27. *Maier G., Assmann H., Dorr W.* // J. Nucl. Mater. 1988. V. 153. P. 213.
28. *Volkov B., Tverberg T.* // Proc. 4th Int. Conf. on WWER Fuel Performance, Modelling and Experimental Support. 1–5 Oct., 2001. P. 186–196.
29. *Volkov B. Yu. et al.* // At. Energy. 2013. V. 114 (6). P. 325.

Irradiation-Induced Creep and Re-Sintering of Large Grain Sized  $UO_2$  Fuel

**E. N. Mikheev<sup>1</sup>, A. V. Fedotov<sup>1, \*</sup>, N. M. Rysev<sup>1</sup>, V. V. Novikov<sup>1</sup>, O. A. Bakhteev<sup>1</sup>,  
A. L. Izhutov<sup>2</sup>, A. V. Burukin<sup>2</sup>, S. V. Seredkin<sup>2</sup>, and G. A. Ilyinykh<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>*JSC Bochvar High Technology Research Institute of Inorganic Materials (VNIINM), Moscow, 123098 Russia*

<sup>2</sup>*JSC State Scientific Centre, Research Institute of Nuclear Reactors (RIAR), Dimitrovgrad, Ulyanovsk oblast, 433510 Russia*

\*e-mail: [AnVFedotov@bochvar.ru](mailto:AnVFedotov@bochvar.ru)

Received January 10, 2023; revised January 17, 2023; accepted February 9, 2023

**Abstract**—A study of irradiation-induced creep and re-sintering of large grain sized fuel of the VVER type was carried out using the developed procedures and experimental facilities under radiation with fission rates of  $1.0 \times 10^{13}$  and  $1.2 \times 10^{13} 1/(cm^2s)$ . Strain diagrams generated during creep studies within the strain range of 10–40 MPa were obtained at effective sample temperatures of 943, 1020, 1200 and 1301 K. It was demonstrated that strain is mainly determined by irradiation induced creep within the temperature range of up to 1123 K. This was confirmed by its linear dependency on stress. At higher temperatures, the effect of radiation-thermal creep grows, and its contribution to the total strain increases with the growth of stress. Creep rate values obtained at temperatures of 1200 and 1301 K are higher than those of uranium dioxide with standard grain size. Strain diagram produced during the studies of re-sintering of an 88.32 mm high fuel column was obtained at the effective specimen temperature of 960 K. In terms of height, re-sintering amounted to 0.070–0.095%. It was shown that, within the limits of the experimental error, irradiation-induced re-sintering makes a small contribution to the resulting strain of the fuel in comparison with creep.

**Keywords:** fuel pellets, uranium dioxide, irradiation-induced creep, re-sintering, large grain sized fuel