

# РАСПУХАНИЕ НИТРИДНОГО ТОПЛИВА ПРИ РАЗНЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО ОБЛУЧЕНИЯ НА РАННИХ СТАДИЯХ ВЫГОРАНИЯ

*Кинёв Е.А.<sup>1</sup>, Ярков В.Ю.<sup>1</sup>, Исинбаев А.Р.<sup>1</sup>, Бельтюков И.Л.<sup>1</sup>, Тарасов Б.А.<sup>2</sup>, Иванов А.Ю.<sup>2</sup>*

<sup>1</sup>АО «Институт реакторных материалов»  
624250, Свердловская обл., г. Заречный, а/я 29

<sup>2</sup>АО «ВНИИНМ»,  
123098, г. Москва, ул. Рогова, д. 5а



Целью работы является изучение особенностей распухания плотного ядерного топлива на начальных стадиях облучения. Рассматриваются условно свободные диаметрально-объемные изменения смешанного уран-плутониевого нитридного топлива, облученного до выгораний 1; 1,5; 2,5 и 3,5% т.а. при среднеобъемных температурах 1200, 1400 и 1500°C в спектре быстрых нейтронов активной зоны исследовательского ядерного реактора ИВВ-2М. Выявлены макроскопическое растрескивание и максимальное формоизменение диаметра таблеток на 4,6%, максимальное распухание топливной матрицы на 13,8%, формирование внутризеренного ансамбля пор субмикронных размеров средним диаметром от 22 до 67 нм, миграция нанопор на высокоугловые границы зерен. В целом динамика макроскопических объемных изменений при облучении прямо пропорциональна росту выгораний и температур. При выгорании 3,5% т.а. механизм объемного распухания плотного топлива выходит на новый уровень, когда поток нанопор со средним размером 50 нм максимален при 1500°C, а при 1200°C слабеет и контролирует средний размер нанопор на уровне 67 нм. Первоначальная скорость радиационного распухания исследованного топлива снижается от 4,8%/т.а. при выгорании 1,5% т.а. до 2,2%/т.а. при 3,5% т.а.

**Ключевые слова:** уран-плутониевое нитридное топливо, таблетка, выгорание, распухание, поры, микроструктура.

**Для цитирования:** Кинёв Е.А., Ярков В.Ю., Исинбаев А.Р., Бельтюков И.Л., Тарасов Б.А., Иванов А.Ю. Распухание нитридного топлива при разных температурах экспериментального облучения на ранних стадиях выгорания. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2024. – № 1. – С. 87 – 95.  
DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2024.1.07>

© Кинёв Е.А., Ярков В.Ю., Исинбаев А.Р., Бельтюков И.Л., Тарасов Б.А., Иванов А.Ю., 2024

## ВВЕДЕНИЕ

Для расчетно-экспериментального обоснования и верификации кодов поведения плотного ядерного топлива в рамках направления «Прорыв» в период с 2019 по 2021 гг. АО «ИРМ» осуществил комплексные исследования таблеточного смешанного нитридного уран-плутониевого (далее СНУП) топлива. Целью работы являлось изучение структурных особенностей исходного и послереакторного состояний топлива одной партии изготовления, подвергнутого условно свободному поэтапному экспериментальному облучению в реакторе ИВВ-2М до разных выгораний при стационарно заданных температурах. Центральная задача оценки распухания перспективного топлива реакторов на быстрых нейтронах в плане уменьшения погрешностей решалась с применением одного и того же аналитического оборудования и методик [1] как до, так и после облучения.

## МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЙ

Реакторное облучение топлива проводилось в четырех сериях однотипных твэлов (поз. 2 на рис. 1), активные части которых собирались из таблеток (поз. 7) уран-плутониевого нитрида. Конструкция твэлов посредством индивидуально заданной ширины внутреннего зазора обеспечивала возможность свободного распухания таблеток при постоянной на протяжении срока облучения индивидуальной среднеобъемной температуре  $1200 \pm 100$ ,  $1400 \pm 100$  и  $1500 \pm 100^\circ\text{C}$  в пределах каждого элемента. Поддержание температур в условиях эксплуатационного сужения зазора обеспечивалось аксиальным позиционированием твэлов относительно центральной плоскости активной зоны реактора. Для этого серии из трех (двух) твэлов с заданным набором целевых температур комплектовались в корпуса специальных капсул (поз. 8, рис. 1) и последовательно облучались в реакторе до целевых выгораний 1; 1,5; 2,5 и 3,5% т.а. Капсулы, оборудованные узлом аксиального позиционирования в активной зоне (поз. 1), теплотрической арматурой (поз. 3–5) и гафниевыми экранами (поз. 7), обеспечивали преференсное облучение топлива потоком быстрых нейтронов  $1,1 \cdot 10^{14}$  нейтр/(см<sup>2</sup>·с) при фиксированной температуре. Расчетные параметры облучения представлены в табл. 1.

После облучения проводился демонтаж твэлов из капсул с последующим извлечением топливных таблеток для оценки объемных изменений и распухания. До- и послереакторные измерения геометрических размеров проводились микрометрическим и металлографическим методами с применением одного и того же оборудования. Наружный диаметр таблеток с погрешностью  $\pm 0,01$  мм измеряли микрометром МК-25 и выборочно на металлографических шлифах поперечного сечения. Порометрия топлива выполнялась гидро-

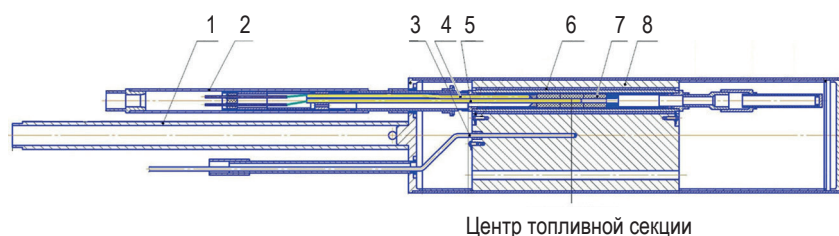


Рис. 1. Эскиз капсулы: 1 – тяга; 2 – твэл; 3 – 5 – термопары; 6 – гафниевый экран; 7 – таблетка; 8 – корпус

Таблица 1

**Характеристики исследованных материалов**

Номер капсулы	Номер твэла	$T_{обл.}, ^\circ\text{C}$	$B, \% \text{ т.а.}$	Примечание
–	7	–	0	Исходный материал
4	1в	1500	1,01	Вентилируемый твэл
	2в	1400	1,02	
	3в	1200	0,86	
1	1	1500	1,54	Невентилируемый твэл
	4	1400	1,50	
2	2	1500	2,50	Невентилируемый твэл
	5	1400	2,43	
	8	1200	2,34	
3	3	1500	3,74	Невентилируемый твэл
	6	1400	3,64	
	9	1200	3,48	

статическим [2] и стереометрическим [3] методами, в частности, на металлографических шлифах и сколах для лабораторной сканирующей микроскопии (СЭМ). Радиационное распухание топлива определяли относительно предварительно измеренного значения исходной кажущейся плотности:

$$S(\%) = 100 \cdot (\rho - \rho_0) / \rho_0, \quad (1)$$

где  $\rho$  и  $\rho_0$  – кажущаяся плотность до и после облучения соответственно.

Долю радиационно-индуцированной пористости определяли на экстракционных репликах металлографических шлифов облученного топлива, подвергнутых склерометрии.

**РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ**

Топливные таблетки, изготовленные из уран-плутониевого нитрида, в процессе экспериментального облучения подверглись макрорастрескиванию единичными трещинами радиальной ориентации независимо от степени выгорания и среднеобъемной температуры (рис. 2а). Тем не менее, наличие крупных фрагментов позволило измерить их наружный диаметр и оценить величины полных формоизменений после облучения (от 1 до 4,6%) относительного исходного значения, определенного до испытаний (рис. 2б). Предельная скорость формоизменения диаметра в результате облучения составила  $\sim 1,2\%/ \% \text{ т.а.}$

В исходном состоянии кажущаяся плотность таблеток составила  $12,28 \pm 0,05 \text{ г/см}^3$  или 85,7% теоретической плотности (ТП). Результаты расчетов радиационного распухания топлива при разных температурах облучения по данным гидростатических измерений представлены на рис. 3а. Максимальное распухание достигло 13,8%. Скорость распухания составила  $\sim (2,2 - 4,8)\%/ \% \text{ т.а.}$

Общая пористость при облучении растет с уровнем выгорания от исходного значения на уровне  $14 \pm 0,5$  до  $25 \pm 0,5\%$  (рис. 3б). Поведение закрытой и открытой пористости имеет сложный характер. При выгорании 1% т.а. отмечены лишь атермический прирост закрытой и снижение открытой пористости, соответствующие появлению внутризеренных нанопор газообразных продуктов деления (ГПД) и процессу доспекания таблеток. При по-

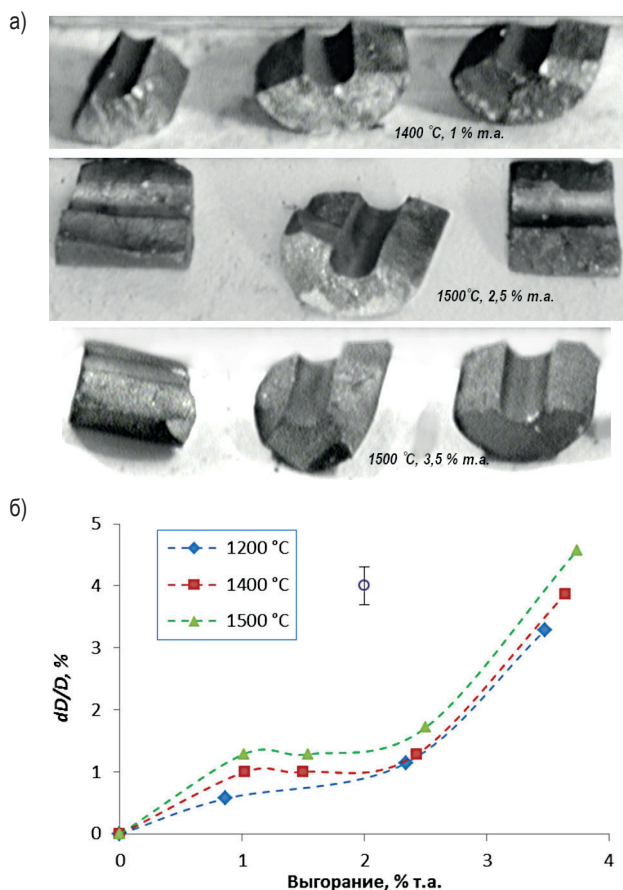


Рис. 2. Характер растрескивания (а) и диаметрального формоизменения (б) топлива

зерна размером  $15,9 \pm 4,5$  мкм. Более глубокое выгорание ( $\sim 3,5\%$  т.а.) сопровождается ростом радиационных пор с их интенсивной миграцией на границы зерен, имеющих средний условный размер  $11,9 \pm 2,5$  мкм.

Данные стереометрического анализа общей пористости методом металлографии и радиационно-индуцированной пористости методом сканирующей электронной микроскопии приведены в табл. 2. Диаметр зернограничных пор и общая пористость после облучения не определялись из-за того, что образцы имели форму крошки.

Анализ таблицы показывает, что исходные структурные параметры необлученного материала, полученные разными методами, имеют сходимость в пределах погрешностей измерений и не противоречат результатам гидростатической порометрии (рис. 2б). При этом ценность металлографической стереометрии определяется возможностью характеризовать объемное (радиальное) распределение пор микроскопических размеров, а электронно-скопической стереометрии – локальную нанопористость. Следует отметить существующую неоднородность исходного материала по размеру зерна и пор как в объемах одной, так и между различными таблетками исследованной партии изготовления. Это не является темой сообщения, но имеет значение при текущем анализе облученного топлива.

Первый этап облучения (1% т.а.) демонстрирует полуторакратное уменьшение среднего диаметра технологических пор и двукратное снижение закрытой пористости матрицы

вышении выгорания начинает проявляться воздействие роста температуры, сопровождаемое увеличением открытой и снижением закрытой пористости вплоть до соотношения 50/50 при 1500°C (см. рис. 3 б, температуры указаны над колонками гистограммы).

Металлографические и электронно-скопические исследования наглядно демонстрируют исходное состояние и структурные изменения, сопровождающие радиационное распухание СНУП-топлива низкого выгорания (рис. 4). Структура спеченного топлива с условным размером зерна  $15,3 \pm 1,5$  мкм характеризуется наличием технологических пор, равномерно расположенных в теле и на границе зерен. В условиях начальной (до выгорания 1,5% т.а.) стадии высокотемпературного нейтронного облучения ГПД формируют незамкнутую сеть микропор на границах

топлива как результат процесса термического дроспекания. Одновременно наблюдаются зарождение и рост нанопор. При максимальной температуре 1500°C это выглядит наиболее убедительно.

Второй этап (1,5% т.а.) отличается от первого слабым распуханием на фоне исключительного роста среднего размера нанопор и их вклада в общую пористость, сохраняющей прежний уровень. Можно видеть, что формирование нанопор при 1500°C превосходит таковое при 1400°C.

На третьем этапе (2,5% т.а.) зарегистрирован существенный прирост пористости, превышающий при максимальной температуре облучения исходное значение. Характерно, что диаметр нанопор при 1200 и 1400°C относительно второго этапа не увеличивается, хотя сохраняется тенденция прямой зависимости роста диаметра

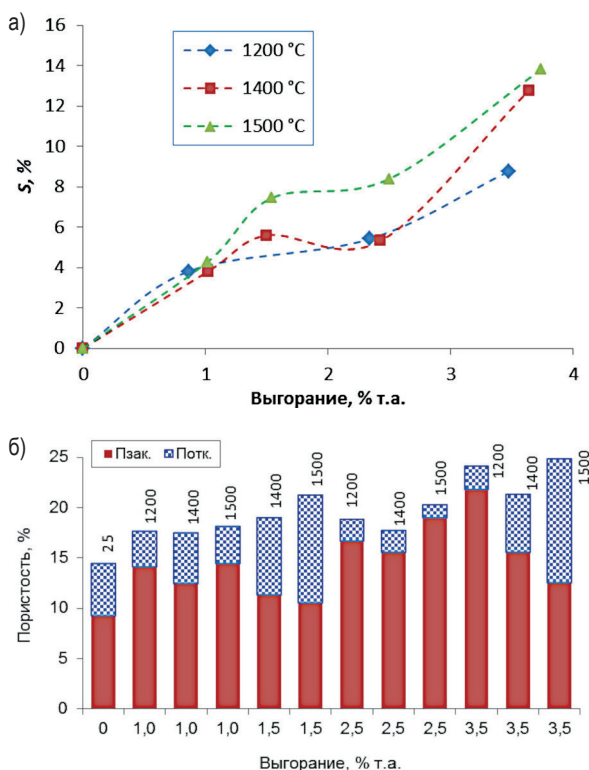


Рис. 3. Характер изменений распухания (а) и пористости (б) таблеток в зависимости от выгорания и температуры

Таблица 2

**Стереометрия пористости СНУП-топлива разными структурными методами**

B, % т.а.	$T_{\text{обл.}}, ^\circ\text{C}$	Металлография		СЭМ			
		$D_p, \text{мкм}$	$\Pi, \%$	$D_p, \text{мкм}$	$D_{np}, \text{нм}$	$\Pi_{np}, \%$	$\Pi, \%$
0	–	$5,3 \pm 1,5$	$14,0 \pm 1,0$	$4,0 \pm 0,2$	–	–	$14,2 \pm 4,0$
1,0	1200	$3,3 \pm 0,5$	$7,1 \pm 2,0$	Н/Д	35	$0,6 \pm 0,1$	Н/Д
	1400	$3,4 \pm 0,5$	$7,1 \pm 2,0$	Н/Д	25	$0,6 \pm 0,1$	Н/Д
	1500	$3,1 \pm 0,5$	$6,7 \pm 2,0$	Н/Д	40	$1,1 \pm 0,2$	Н/Д
1,5	1400	$3,2 \pm 0,4$	$7,3 \pm 2,0$	Н/Д	48	$1,7 \pm 0,3$	Н/Д
	1500	$3,3 \pm 0,5$	$7,5 \pm 1,0$	Н/Д	50	$4,5 \pm 0,5$	Н/Д
2,5	1200	$3,9 \pm 0,6$	$11,0 \pm 1,0$	Н/Д	29	$0,4 \pm 0,1$	Н/Д
	1400	$3,7 \pm 0,4$	$13,0 \pm 1,0$	Н/Д	22	$0,4 \pm 0,1$	Н/Д
	1500	$4,1 \pm 0,5$	$17,0 \pm 1,0$	Н/Д	50	$2,2 \pm 0,4$	Н/Д
3,5	1200	$3,8 \pm 0,4$	$19,0 \pm 1,0$	Н/Д	67	$3,0 \pm 0,6$	Н/Д
	1400	$3,6 \pm 0,3$	$17,0 \pm 1,0$	Н/Д	54	$2,2 \pm 0,4$	Н/Д
	1500	$4,0 \pm 0,4$	$20,3 \pm 1,0$	Н/Д	50	$1,8 \pm 0,4$	Н/Д

$D_p$  – средний диаметр пор;  $D_{np}$  – средний диаметр нанопор  
 $\Pi$  – объемная пористость,  $\Pi_{np}$  – нанопористость, Н/Д – нет данных для крошки

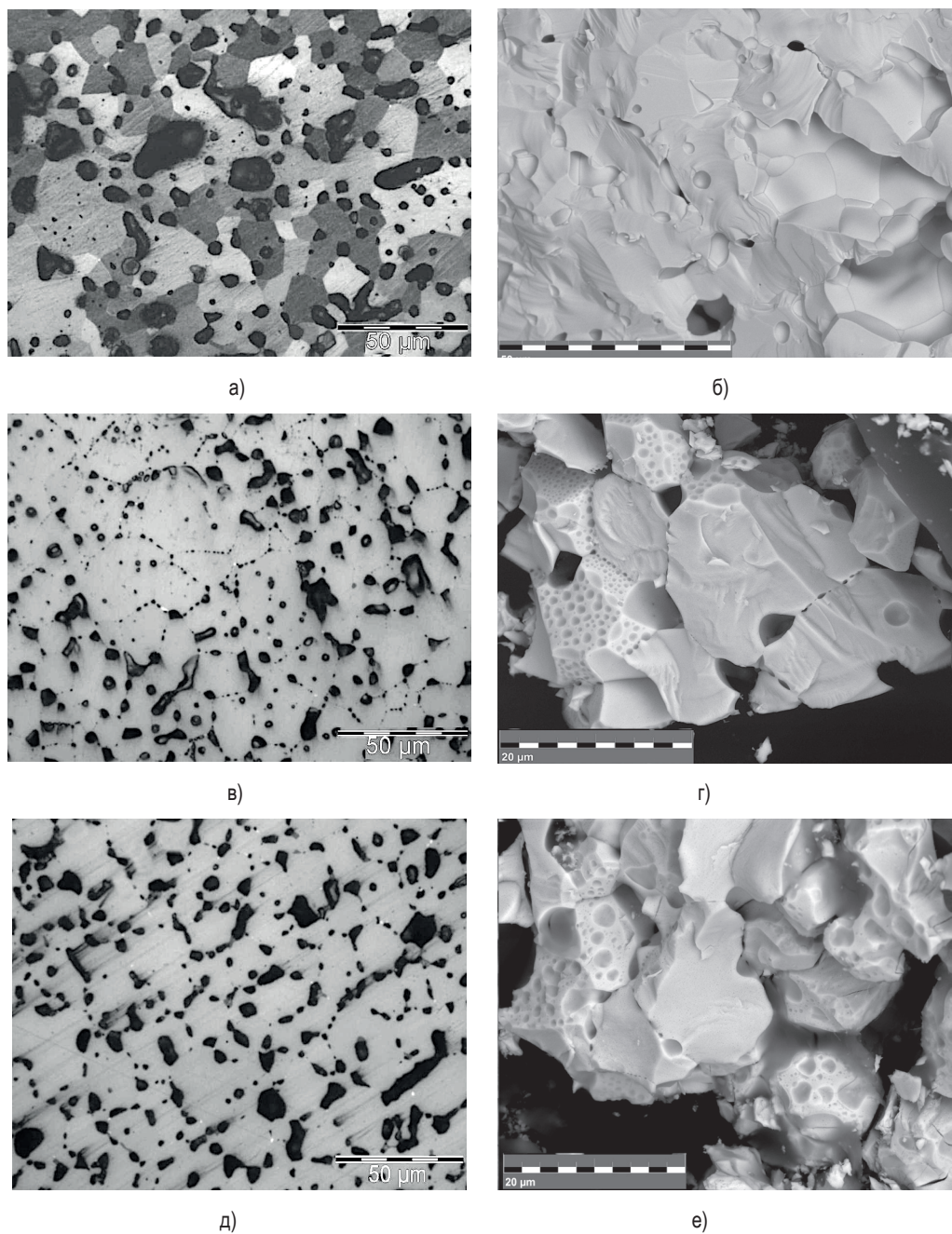


Рис. 4. Металлографическая (слева) и электронноскопическая (справа) микроструктуры СНУП-топлива в исходном (а, б) состоянии, после выгорания 1,5% т.а. при 1500°C (в, г) и 3,5% т.а. при 1400°C (д, е)

и микропор и нанопор в диапазоне температур облучения. Указанный прирост пористости можно связать с началом термической миграции нанопор, превысивших критический размер, на границы зерна [4].

Четвертый этап (3,5% т.а.) явился кульминацией начальной стадии распухания СНУП-топлива. Поведение нанопористости выходит на новый уровень, характеризуемый обратной зависимостью диаметра нанопор и вклада нанопористости в объемных изменениях от температуры облучения. На этой стадии при 1200°C средний диаметр нанопор достигает максимального за весь эксперимент значения 67 нм. Увеличение температуры до 1500°C активирует преимущественную миграцию нанопор на высокоугловые границы зерен и контролирует их диаметр на уровне 50 нм. Как результат, средний диаметр пор микронных размеров (по данным металлографии) достигает максимума 4 мкм, а общая пористость – максимума 20%, имея, в том числе, минимальный вклад 1,8% от нанопор.

## ВЫВОДЫ

Исследованы ранние стадии условно свободного радиационного распухания СНУП-топлива при среднеобъемных температурах от 1200 до 1500°C и выгорании до 3,5% т.а. Показано, что при выгорании 1% т.а. матрица топлива подвергается доспеканию во всем исследованном диапазоне температур и накапливает первичный ансамбль внутриверенных нанопор ГПД диаметром до 40 нм, наиболее представительный при максимальной температуре. В интервале от 1,5 до 2,5% т.а. характерны умеренный рост размеров нанопор и исходных микропор, увеличение доли нанопористости и общей пористости в прямой зависимости от роста выгорания и температуры. При выгорании 3,5% т.а. механизм объемного распухания плотного топлива выходит на новый уровень, когда прямая температурная зависимость его полного распухания контролируется миграцией нанопор на стоки – высокоугловые границы зерен. В этих условиях поток нанопор со средним размером 50 нм максимален при 1500°C, тогда как при 1200°C он слабеет и контролирует средний размер нанопор на уровне 67 нм.

Начальная скорость радиационного распухания СНУП-топлива снижается от максимальной 4,8%/т.а. при 1,5% т.а. до 2,2%/т.а. при 3,5% т.а. Уменьшение скорости распухания во времени коррелирует с ростом открытой и отчасти связанной межзеренной пористости.

## Литература

1. Кинёв Е.А., Барыбин А.В., Панченко В.Л., Цыгвинцев В.А. Методики материаловедческих исследований нитридного ядерного топлива // ВАНТ. Серия: материаловедение и новые материалы. – 2021. – Вып. 3(109). – С. 83 – 93.
2. ГОСТ 2409-2014. Огнеупоры. Методы определения кажущейся плотности, открытой и общей пористости, водопоглощения. – М.: Стандартинформ, 2014. – 7 с.
3. Салтыков С.А. *Стереометрическая металлография*. – М.: Металлургия, 1976. – 271 с.
4. Дегальцев Ю.Г., Пономарев-Степной Н.Н., Кузнецов В.Ф. Поведение высокотемпературного ядерного топлива при облучении. – М.: Энергоатомиздат, 1987. – 208 с.

Поступила в редакцию 06.02.2024

**Авторы**

Кинев Евгений Александрович, ведущий научный сотрудник, к.т.н.,

E-mail: kinev\_ea@irmatom.ru

Ярков Валентин Юрьевич, младший научный сотрудник,

E-mail: irm@irmatom.ru

Исинбаев Артур Радионович, младший научный сотрудник,

E-mail: irm@irmatom.ru

Бельтюков Игорь Леонидович, руководитель направления,

E-mail: irm@irmatom.ru

Тарасов Борис Александрович, руководитель пректа, к.т.н.,

E-mail: vniinm@rosatom.ru

Иванов Алексей Юрьевич, начальник отдела,

E-mail: vniinm@rosatom.ru

УДК 621.039.531

**Swelling of Nitride Fuel under Different Experimental Irradiation Temperatures at the Early Burnout Stages**

**Kinev E.A.<sup>1</sup>, Yarkov V.Yu.<sup>1</sup>, Isinbaev A.R.<sup>1</sup>, Belyukov I.L.<sup>1</sup>, Tarasov B.A.<sup>2</sup>, Ivanov A.Yu.<sup>2</sup>**

<sup>1</sup> *Research institute of nuclear materials, Joint-Stock Company,*

*PO Box 29, 624250 Zarechny, Sverdlovsk reg., Russia*

<sup>2</sup> *VNIINM,*

*5a Rogova Str., 123098 Moscow, Russia*

**Abstract**

The purpose of the work is to study the swelling characteristics of dense nuclear fuel at the initial stages of irradiation. Conditionally free diametrical and volumetric changes in mixed uranium-plutonium nitride fuel irradiated to burnups of 1, 1.5, 2.5 and 3.5% FIFA are considered at average volume temperatures of 1200, 1400 and 1500°C in the spectrum of fast neutrons in the core of the IVV-2M research nuclear reactor. The central problem of assessing the swelling of promising fast neutron reactor fuel in terms of reducing errors was solved using the same analytical equipment and techniques both before and after irradiation. Macroscopic cracking and a maximum change in the diameter of the pellets by 4.6% as well as a maximum swelling of the fuel matrix by 13.8% and the formation of an intragranular ensemble of submicron pores with an average diameter of 22 to 67 nm, and migration of nanopores to high-angle grain boundaries were revealed. In general, the dynamics of macroscopic volumetric changes during irradiation are directly proportional to the increase in burnup and temperature. At burnout 3.5% FIFA the mechanism of volumetric swelling of dense fuel reaches a new level when the flow of nanopores with an average size of 50 nm is maximum at 1500°C, and at 1200°C weakens and controls the average nanopore size at the level of 67 nm. The initial rate of radiation swelling of the studied fuel decreases from 4.8%/FIFA at burnout 1.5% FIFA up to 2.2%/FIFA at 3.5% FIFA.

**Key words:** uranium-plutonium nitride fuel, pellet, burnout, swelling, pores, microstructure.

**For citation:** Kinev E.A., Yarkov V.Yu., Isinbaev A. R., Belyukov I.L., Tarasov B.A., Ivanov A.Yu. Swelling of Nitride Fuel under Different Experimental Irradiation Temperatures at the Early Burnout Stages. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2024, no. 1, pp. 87 – 95; DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2024.1.07> (in Russian).



### References

1. Kinev E.A., Barybin A.V., Panchenko V.L., Tsygvintsev V.A. Material methods of nitride nuclear fuel researches. *VANT. Series: Materials technology and new materials*. 2021, iss. 3(109), pp. 83–93 (in Russian).
2. GOST 2409-2014. *Refractories. Methods for determining apparent density, open and total porosity, water absorption*. Moscow: Standartinform, 2014, 7 p. (in Russian).
3. Saltykov S.A. *Stereometric metallography*. M.: Metallurgy, 1976, 271 p. (in Russian).
4. Degaltsev Yu.G., Ponomarev-Stepnoy N.N., Kuznetsov V.F. *Behavior of high-temperature nuclear fuel under irradiation*. M.: Energoatomizdat, 1987, 208 p. (in Russian).

### Authors

Evgeny A. Kinev, Leading Researcher, Cand. Sci. (Engineering),

E-mail: kinev\_ea@irmatom.ru

Valentin Yu. Yarkov, Junior Researcher,

E-mail: irm@irmatom.ru

Artur R. Isinbaev, Junior Researcher,

E-mail: irm@irmatom.ru

Igor L. Beltyukov, Head of direction,

E-mail: irm@irmatom.ru

Boris A. Tarasov, Project Manager, Cand. Sci. (Engineering),

E-mail: vniinm@rosatom.ru

Alexey Yu. Ivanov, Department Head,

E-mail: vniinm@rosatom.ru