



(19) **RU** ⁽¹¹⁾ **2 193 242** ⁽¹³⁾ **C2**
(51) МПК⁷ **G 21 C 3/62, C 01 G 43/025**

РОССИЙСКОЕ АГЕНТСТВО
ПО ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ**

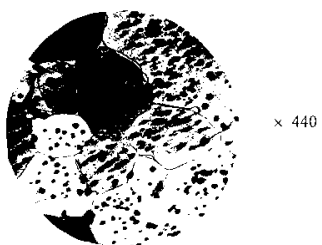
(21), (22) Заявка: 2000131713/06, 18.12.2000
(24) Дата начала действия патента: 18.12.2000
(46) Дата публикации: 20.11.2002
(56) Ссылки: US 4869866, 20.11.1987. RU 2157568 C1, 10.10.2000. RU 2142170 C1, 27.11.1999. RU 2081063 C1, 10.06.1997. US 5257298, 26.10.1993.
(98) Адрес для переписки:
123060, Москва, а/я 369, ВНИИНМ, ОИС

(71) Заявитель:
Федеральное государственное унитарное предприятие "Всероссийский научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А.А.Бочвара"
(72) Изобретатель: Решетников Ф.Г., Бибилашвили Ю.К., Милованов О.В., Михеев Е.Н., Локтев А.М., Кулешов А.В., Молчанов В.Л., Пименов Ю.В., Панюшкин А.К., Головешкин А.В., Маловик В.В., Малыгин В.Б.
(73) Патентообладатель:
Федеральное государственное унитарное предприятие "Всероссийский научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А.А.Бочвара"

(54) **ТАБЛЕТКА ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА**

(57)
Изобретение относится к области ядерной энергетики и может быть использовано для получения таблеток ядерного топлива на основе диоксида урана. Технической задачей заявляемого изобретения является повышение пластичности материала ядерного топлива при рабочих температурах ее использования и снижение за счет этого механического взаимодействия столба топливных таблеток с оболочкой твэла. Поставленная задача достигается: по I варианту выполнения таблетка ядерного топлива из диоксида урана содержит алюминия от 0,03 до 0,10 мас.% и кремния от 0,01 до 0,05 мас.%, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики; по II варианту выполнения таблетка ядерного топлива из диоксида урана содержит алюминия от 0,03 до 0,10 мас.%, кремния от 0,01 до 0,05 мас.% и ниобия от 0,05 до 0,15 мас.%, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики, а ниобий в форме оксидов образует твердый раствор с диоксидом урана; по III варианту

выполнения таблетка ядерного топлива из диоксида урана содержит железа от 0,04 до 0,15 мас.%, алюминия от 0,02 до 0,05 мас.% и кремния от 0,01 до 0,04 мас.%, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены в основном по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики, в состав которой в форме оксидов входит также железо, а остальная часть железа в форме оксидов образует твердый раствор с материалом зерен диоксида урана; по IV варианту выполнения таблетка ядерного топлива из диоксида урана содержит железа от 0,04 до 0,15 мас.%, алюминия от 0,02 до 0,05 мас.%, кремния от 0,01 до 0,04 мас.% и ниобия от 0,05 до 0,15 мас.%, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены в основном по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики, в состав которой в форме оксидов входит также часть железа, а остальная часть железа и ниобий в форме оксидов образуют твердый раствор с материалом зерен диоксидов урана. В изобретении раскрываются также пять способов изготовления таблеток ядерного топлива. 9 с. и 22 з.п. ф-лы, 1 табл., 3 ил.



Характерная микроструктура таблеток из диоксида урана, содержащих пластифицирующую добавку (вариант три).
Фиг. 1

RU 2 1 9 3 2 4 2 C 2

RU 2 1 9 3 2 4 2 C 2



(19) **RU** ⁽¹¹⁾ **2 193 242** ⁽¹³⁾ **C2**
(51) Int. Cl.⁷ **G 21 C 3/62, C 01 G 43/025**

RUSSIAN AGENCY
FOR PATENTS AND TRADEMARKS

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21), (22) Application: 2000131713/06, 18.12.2000
(24) Effective date for property rights: 18.12.2000
(46) Date of publication: 20.11.2002
(98) Mail address:
123060, Moskva, a/ja 369, VNIINM, OIS

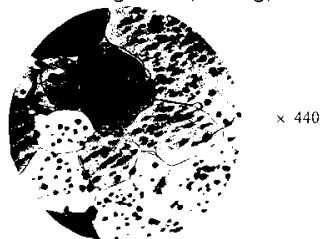
(71) Applicant:
Federal'noe gosudarstvennoe unitarnoe
predpriatie "Vserossijskij
nauchno-issledovatel'skij institut
neorganicheskikh materialov im. akademika
A.A.Bochvara"
(72) Inventor: Reshetnikov F.G.,
Bibilashvili Ju.K., Milovanov O.V., Mikhhev
E.N., Loktev A.M., Kuleshov A.V., Molchanov
V.L., Pimenov Ju.V., Panjushkin
A.K., Goloveshkin A.V., Malovik V.V., Malygin
V.B.
(73) Proprietor:
Federal'noe gosudarstvennoe unitarnoe
predpriatie "Vserossijskij
nauchno-issledovatel'skij institut
neorganicheskikh materialov im. akademika
A.A.Bochvara"

(54) **PELLETIZED NUCLEAR FUEL**

(57) Abstract:

FIELD: nuclear power engineering; uranium dioxide base fuel pellets. SUBSTANCE: according to first alternative uranium dioxide pellet has in its composition 0.03 to 0.10 mass percent of aluminum and 0.01 to 0.05 mass percent of silicon both distributed in the form of oxides over boundaries of uranium dioxide grains in the form of easy-melting eutectic; according to second alternative uranium dioxide pellet has in its composition, mas.%: aluminum, 0.03-0.10; silicon, 0.01-0.05; and niobium, 0.05-0.15; aluminum and silicon being distributed in the form of oxides over boundaries of uranium dioxide grains in the form of easy-melting eutectic and niobium, in the form oxides produces solid solution together with uranium dioxide; according to third alternative uranium dioxide pellet has in its composition 0.04-0.15 mas.% of iron, and 0.01-0.04 mas.% of silicon, both being distributed in the form of oxides mainly over boundaries of uranium dioxide grains in the form of easy-melting eutectic also incorporating in its composition iron in the form of oxides; remaining part of iron in the form of oxides produces solid solution together with uranium dioxide grains; according to fourth alternative uranium

dioxide pellet has in its composition 0.04-0.15 mas.% of iron, 0.02-0.05 mas.% of aluminum, 0.01-0.04 mas.% of silicon, and 0.05-0.15 mas.% of niobium, aluminum and silicon being distributed in the form of oxides mainly over boundaries of uranium dioxide grains in the form of easy-melting eutectic incorporating in its composition part of iron in the form of oxide; remaining part of iron and niobium in the form of oxide produce solid solution together with grain material of uranium dioxide. Invention also discloses five methods for manufacturing pelletized nuclear fuel. EFFECT: enhanced plasticity of fuel material at operating temperatures which reduces mechanical interaction between fuel pile and fuel element cladding. 31 cl, 3 dwg, 1 tbl



Характерная микроструктура таблеток из диоксида урана, содержащих пластифицирующую добавку (вариант три).

Фиг. 1

Таблетка ядерного топлива

Изобретение относится к области ядерной энергетики и может быть использовано для получения таблеток ядерного топлива на основе диоксида урана, предназначенных для изготовления тепловыделяющих сборок атомных реакторов.

К ядерному топливу современных атомных реакторов предъявляются высокие требования, в частности, по достижению высокой глубины выгорания и возможности его работы в маневренных режимах, которые связаны с резкими изменениями тепловыделения сборок и температуры твэлов. В таких условиях эксплуатации тепловыделяющих сборок оболочки твэлов испытывают значительные растягивающие напряжения за счет взаимодействия с таблетками ядерного топлива. В последнее время предпринимаются попытки оптимизировать состав и структуру материала таблеток таким образом, чтобы уменьшить механическое взаимодействие топливных таблеток и оболочки и повысить надежность тепловыделяющих сборок в условиях их работы в маневренных режимах.

Известна таблетка ядерного топлива, содержащая диоксид урана с добавками оксида гадолиния и алюмосиликатов в стекловидном или кристаллическом состоянии (см. патент США 5257298). Количество алюмосиликатной фазы в таблетках составляет от 0,001 до 0,05 мас.%, при содержании SiO_2 - от 40 до 80 мас.% и Al_2O_3 - остальное. Зерна диоксида урана с добавками имеют средний размер от 20 до 60 мкм.

Известен способ для изготовления таблеток ядерного топлива, который включает операции смешивания порошка оксида урана с добавками выгорающего поглотителя нейтронов и алюмосиликатов при количестве алюмосиликатной фазы в таблетках от 0,001 до 0,05 мас.% и при ее составе SiO_2 - от 40 до 80 мас.% и Al_2O_3 - остальное; прессование таблеток и их спекания (см. патент США 5257298).

Недостатком известной таблетки является невысокая эксплуатационная надежность твэлов при работе тепловыделяющих сборок в условиях маневренных режимов. Это, в частности, обусловлено относительно высокой температурой хрупкопластического перехода таких таблеток, что не позволяет уменьшить механическое взаимодействие таблеток и оболочки твэлов. Под температурой хрупкопластического перехода понимается минимальное значение температуры, при которой в испытаниях таблеток на сжатие при скорости деформирования 0,1-1 мм/мин отмечается остаточная деформация.

Известен способ для изготовления таблеток ядерного топлива, который включает получение порошка, содержащего делящееся вещество на основе оксидов урана, получение порошка вещества, содержащего от 10 до 60 мас.% Al_2O_3 и SiO_2 - остальное, смешивание этих порошков при содержании второго порошка в смеси от 0,1 до 0,8 мас.%, прессование таблеток и их спекание при температуре выше 1500°C, но ниже температуры, при которой происходит значительное испарение SiO_2 (см. патент

США 4869866). Этот способ является наиболее близким к предлагаемым в настоящей заявке.

Известна таблетка ядерного топлива, которая включает кристаллические зерна на основе диоксида урана, аморфную стекловидную фазу алюмосиликата, которая покрывает большинство зерен диоксида урана, которые имеют размер от 30 до 80 мкм (см. патент США 4869866). Количество стекловидной фазы составляет от 0,1 до 0,8 мас.%, а содержание Al_2O_3 от 10 до 20 мас.%, SiO_2 - остальное. Атомное отношение кислорода к урану составляет от 1,7 до 2,25, а пористость от 2 до 10% объемных. Эта таблетка является наиболее близкой к предлагаемым в настоящем изобретении таблеткам ядерного топлива.

Недостатком известной таблетки является невысокая эксплуатационная надежность твэлов при работе тепловыделяющих сборок в условиях маневренных режимов. Это, в частности, обусловлено относительно высокой температурой хрупкопластического перехода таких таблеток, что не позволяет уменьшить механическое взаимодействие таблеток и оболочки твэлов.

Технической задачей заявляемого изобретения является повышение пластичности материала ядерного топлива при рабочих температурах ее использования и снижение за счет этого механического взаимодействия столба топливных таблеток с оболочкой твэла. Решение этой технической задачи позволит существенно повысить надежность твэлов при работе атомных электростанций в маневренных режимах и обеспечит достижение высокого выгорания.

Поставленная задача достигается тем, что по первому варианту выполнения таблетки ядерного топлива из диоксида урана она содержит алюминия от 0,03 до 0,10 мас.% и кремния от 0,01 до 0,05 мас.%, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики.

При этом в частных случаях осуществления первого варианта таблетки размер зерен диоксида урана составляет от 10 до 20 мкм; таблетка содержит от 0,3 до 10 мас.% гадолиния или от 0,3 до 0,8 мас.% эрбия в виде оксидов.

Поставленная задача достигается тем, что по второму варианту выполнения таблетки ядерного топлива диоксида урана она содержит алюминия от 0,03 до 0,10 мас.%, кремния от 0,01 до 0,05 мас.% и от 0,05 до 0,15 мас.% ниобия, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики, а ниобий в форме оксидов образуют твердый раствор с диоксидом урана.

При этом в частных случаях осуществления второго варианта таблетки размер зерен диоксида урана составляет от 12 до 30 мкм; таблетка содержит от 0,3 до 10 мас.% гадолиния или от 0,3 до 0,8 мас.% эрбия в виде оксидов.

Поставленная задача достигается также тем, что по третьему варианту выполнения таблетки ядерного топлива диоксида урана она содержит железа от 0,04 до 0,15 мас.%, алюминия от 0,02 до 0,05 мас.% и кремния от 0,01 до 0,04 мас.%, причем алюминий и

кремний в форме оксидов распределены в основном по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики, в состав которой в форме оксидов входит также железо, а остальная часть железа в форме оксидов образует твердый раствор с материалом зерен диоксида урана.

При этом в частных случаях осуществления третьего варианта таблетки размер зерен диоксида урана составляет от 10 до 20 мкм; таблетка содержит от 0,3 до 10 мас.% гадолиния или от 0,3 до 0,8 мас.% эрбия в виде оксидов.

Поставленная задача достигается также тем, что по четвертому варианту выполнения таблетки ядерного топлива диоксида урана она содержит железа от 0,04 до 0,15 мас.%, алюминия от 0,02 до 0,05 мас.% и кремния от 0,01 до 0,04 мас.% и от 0,05 до 0,15 мас.% ниобия, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены в основном по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики, в состав которой в форме оксидов входит также часть железа, а остальная часть железа и ниобий в форме оксидов образуют твердый раствор с материалом зерен диоксида урана.

При этом в частных случаях осуществления четвертого варианта таблетки размер зерен диоксида урана составляет от 12 до 30 мкм; таблетка содержит от 0,3 до 10 мас.% гадолиния или от 0,3 до 0,8 мас.% эрбия в виде оксидов.

Поставленная задача достигается также тем, что по первому варианту выполнения способа получения таблеток ядерного топлива диоксида урана, содержащих алюминий от 0,03 до 0,10 мас.% и кремний от 0,01 до 0,05 мас.%, готовят порошок диоксида урана, готовят порошок, содержащий алюминий и кремний в количестве от 0,1 до 0,25 мас.% из алюмосиликата $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$, который предварительно прокаливают на воздухе при температуре от 700 до 800°C и измельчают до размера частиц менее 40 мкм, проводят перемешивание этих порошков, прессование таблеток из полученной смеси и их высокотемпературное спекание.

При этом в частных случаях осуществления первого варианта выполнения способа при приготовлении смеси порошков для прессования используют от 0,3 до 10 мас.% гадолиния или от 0,3 до 0,8 мас.% эрбия в виде оксидов.

Поставленная задача достигается также тем, что по второму варианту выполнения способа получения таблеток ядерного топлива из диоксида урана, содержащих алюминий от 0,03 до 0,10 мас.%, кремний от 0,01 до 0,05 мас.% и ниобия от 0,05 до 0,15 мас.%, в порошок диоксида урана добавляют порошок алюмосиликата $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$ в количестве от 0,1 до 0,25 мас.%, который предварительно прокаливают на воздухе при температуре от 700 до 800°C и измельчают до размера частиц менее 40 мкм, а также добавляют порошок пентаоксида ниобия, взятый в количестве от 0,1 до 0,2 мас.%, который предварительно прокаливают на воздухе при температуре от 1150 до 1250°C и измельчают до размера частиц не более 40 мкм, проводят перемешивание этих порошков, прессование таблеток из полученной смеси и их высокотемпературное спекание.

При этом в частных случаях осуществления второго варианта выполнения способа при приготовлении смеси порошков для прессования используют от 0,3 до 10 мас.% гадолиния или от 0,3 до 0,8 мас.% эрбия в виде оксидов.

Поставленная задача достигается также тем, что по третьему варианту выполнения способа получения таблеток из диоксида урана, содержащих железа от 0,04 до 0,15 мас.%, алюминия от 0,02 до 0,05 мас.% и кремния от 0,01 до 0,04 мас.%, в порошок диоксида урана добавляют порошок из комбинации оксидов Fe_2O_3 , FeO , SiO_2 и Al_2O_3 , взятый в количестве от 0,1 до 0,2 мас., при этом порошок из комбинации оксидов предварительно прокаливают на воздухе при температуре от 700 до 800°C и измельчают до размера частиц менее 40 мкм, проводят перемешивание этих порошков, прессование таблеток из полученной смеси и их высокотемпературное спекание.

При этом в частных случаях осуществления третьего варианта выполнения способа при приготовлении смеси порошков для прессования используют от 0,3 до 10 мас.% гадолиния или от 0,3 до 0,8 мас.% эрбия в виде оксидов.

Поставленная задача достигается также тем, что по четвертому варианту выполнения способа получения таблеток из диоксида урана, содержащих железа от 0,04 до 0,15 мас.%, алюминия от 0,02 до 0,05 мас.%, кремния от 0,01 до 0,04 мас.% и ниобия от 0,05 до 0,15 мас.%, в порошок диоксида урана добавляют порошок из комбинации оксидов Fe_2O_3 , FeO , SiO_2 и Al_2O_3 , взятый в количестве от 0,1 до 0,2 мас.%, при этом порошок из этой комбинации оксидов предварительно прокаливают на воздухе при температуре от 700 до 800°C и измельчают до размера частиц менее 40 мкм, готовят порошок из оксида ниобия, взятый в количестве от 0,05 до 0,15 мас.%, который предварительно прокаливают на воздухе при температуре от 1150 до 1250°C и измельчают до размера частиц не более 40 мкм, проводят перемешивание этих порошков, прессование таблеток из полученной смеси и их высокотемпературное спекание.

При этом в частных случаях осуществления четвертого варианта выполнения способа при приготовлении смеси порошков для прессования используют от 0,3 до 10 мас.% гадолиния или от 0,3 до 0,8 мас.% эрбия в виде оксидов.

Как следует из изложенного выше сущность изобретения заключается в том, что найдены комбинации оксидов, определены концентрации входящих в них компонентов и параметры полученного из них порошка, введение которых в топливные таблетки позволяет существенно повысить пластичность топлива при рабочих температурах. При этом эти легирующие добавки образуют легкоплавкие эвтектики по границам зерен диоксида урана, которые способствуют скольжению зерен относительно друг друга при деформировании. Введение этих оксидов способствует также в оптимальных пределах росту зерна диоксидов урана за счет активации диффузионных процессов в материале таблетки при спекании.

На фотографии фиг.1 приведена характерная микроструктура таблеток, полученная с использованием предлагаемых пластифицирующих добавок (вариант три), на которой видно формирование легкоплавкой эвтектики по границам зерен.

На фиг. 2 приведена фотография участка таблеток (вариант три) в характеристическом рентгеновском излучении, на которой показано распределение алюминия, входящего в пластифицирующую добавку, по границам зерен.

На фиг.3 приведена фотография участка поверхности таблеток (вариант четыре) в характеристическом рентгеновском излучении, на которой показано распределение железа, входящего в пластифицирующую добавку, по всему объему топливных таблеток.

Пример 1. Осуществление способа (вариант 1) получения таблеток.

Исходный порошок диоксида урана просеивают через вибросито с размером ячейки 400 мкм. Фракцию, прошедшую через сито, в количестве 4300 г отбирают для изготовления таблеток. Порошок алюмосиликата (муллита)

$3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$ прокаливают в термической печи при температуре $750^\circ C$ в течение одного часа. Прокаленную пластифицирующую добавку измельчают в ступке, просеивают через капроновое сито с размером ячейки 40 мкм, фракцию, прошедшую через сито, отбирают для изготовления таблеток. Отбирают 200 г порошка диоксида урана и 107,5 г порошка алюмосиликата (муллита) $3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$ (из расчета 0,25 мас.% на общую массу порошка для изготовления таблеток) количество порошка и смешивают в барабанном смесителе в течение 45 минут при скорости вращения барабана 35-40 оборотов в минуту. К полученной смеси добавляют 1000 г порошка диоксида урана и смешивают в барабанном смесителе в течение 45 минут при скорости вращения барабана 35-40 оборотов в минуту. Полученную смесь в количестве 1307,5 г делят на шесть равных порций по 217,9 г. Каждую порцию этой смеси смешивают с порцией порошка диоксида урана массой 6941 г каждая в семилитровом смесителе в течение 45 минут. Затем все шесть полученных партий порошка смешивают между собой вручную в течение 20 минут. Затем отбирают пробы из верхней, нижней и средней частей и направляют для анализа содержания алюминия и кремния. Содержание пластифицирующей добавки - муллита по объему порошка составило 0,25 мас.% при отклонении от среднего в пределах 0,04 мас.%. Полученную смесь порошков просеивают через вибросито с размером ячейки 400 мкм и смешивают с органической связкой. В качестве органической связки используют водный раствор поливинилового спирта в количестве 8 мас.% и глицерина в количестве 0,5 мас.%. Смешение проводят порциями в семилитровом смесителе в течение 30 минут. Из полученной смеси на прессе КО 622 Б при давлении $1,25 \text{ т/см}^2$ прессуют "шашки" диаметром 35 мм при соотношении высоты к диаметру 1:2. Полученные "шашки" измельчают в мельнице типа Fritsch и просеивают через вибросито с размером

пресс-порошок сушат при температуре $20^\circ C$ в течение 24 часов. Из пресс-порошка на прессе типа ПФ-30 при давлении 2 т/см^2 прессуют таблетки для твэлов реактора ВВЭР до плотности $5,8-6,0 \text{ г/см}^3$. Полученные таблетки загружают в молибденовые лодочки и спекают в печи ВТУ при температуре $1750^\circ C$ в среде, содержащей водород.

Пример 2. Осуществление способа (вариант 2) получения таблеток.

Исходный порошок диоксида урана просеивают через вибросито с размером ячейки 400 мкм. Фракцию, прошедшую через сито, в количестве 4300 г отбирают для изготовления таблеток. Алюмосиликат (муллит) $3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$ прокаливают в термической печи при температуре $750^\circ C$ в течение одного часа. Прокаленную пластифицирующую добавку измельчают в ступке, просеивают через капроновое сито с размером ячейки 40 мкм. Фракцию, прошедшую через сито, отбирают для изготовления таблеток. Оксид ниобия прокаливают на воздухе при температуре $1200^\circ C$, измельчают в ступке, просеивают через капроновое сито с размером ячейки 40 мкм. Фракцию, прошедшую через сито, отбирают для изготовления таблеток. Отбирают 200 г порошка диоксида урана, 107,5 г порошка алюмосиликата - муллита $3Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$ (из расчета 0,20 мас.% на общую массу порошка для изготовления таблеток) и 43 г оксида ниобия (из расчета 0,10 мас.% на общую массу порошка для изготовления таблеток) и смешивают в барабанном смесителе в течение 45 минут при скорости вращения барабана 35-40 оборотов в минуту. Полученную смесь добавляют в 1000 г порошка диоксида урана и смешивают в барабанном смесителе в течение 45 минут при скорости вращения барабана 35-40 оборотов в минуту. Полученную смесь в количестве 1307,5 г делят на шесть равных порций по 217,9 г, каждую порцию этой смеси смешивают с порцией порошка диоксида урана массой 6941 г каждая в семилитровом смесителе в течение 45 минут. Затем все шесть полученных партий порошка смешивают между собой вручную в течение 20 минут. Затем отбирают пробы из верхней, нижней и средней частей и направляют для анализа содержания алюминия, кремния и ниобия. Содержание пластифицирующей добавки - алюмосиликата по объему порошка составило 0,20 мас.% при отклонении от среднего в пределах 0,04 мас.%. Полученное значение распределения оксида ниобия по объему порошка составило 0,10 мас.% с отклонением от среднего в пределах 0,013 мас.%. Полученную смесь порошков просеивают через вибросито с размером ячейки 400 мкм и смешивают с органической связкой. В качестве органической связки используют водный раствор поливинилового спирта в количестве 8 мас.% и глицерина в количестве 0,5 мас.%. Смешение проводят порциями в семилитровом смесителе в течение 30 минут. Из полученной смеси на прессе КО 622 Б при давлении $1,25 \text{ т/см}^2$ прессуют "шашки" диаметром 35 мм при соотношении высоты к диаметру 1:2. Полученные "шашки" измельчают в мельнице типа Fritsch и просеивают через вибросито с размером

ячейки 630 мкм. Полученный пресс-порошок сушат при температуре 20°C в течение 24 часов. Из пресс-порошка на прессе типа ПФ-30 при давлении 2 т/см² прессуют таблетки для тэлов реактора ВВЭР до плотности 5,7-6,0 г/см³. Полученные таблетки загружают в молибденовые лодочки и спекают в печи ВТУ при температуре 1750°C в среде, содержащей водород.

Пример 3. Осуществление способа получения таблеток (вариант 3).

Готовят исходный порошок диоксида урана, как в примере 1. В качестве пластифицирующей добавки используют порошок, состоящий из комбинации оксидов Fe₂O₃, FeO, SiO₂ и Al₂O₃, при содержании в нем (без учета массы кислорода) железа 70%, кремния 12% и алюминия 18%. Эту добавку прокачивают в термической печи при температуре 750°C в течение одного часа, измельчают в ступке, просеивают через капроновое сито с размером ячейки 40 мкм. Фракцию, которая прошла через сито, отбирают для изготовления таблеток. Отбирают 200 г порошка диоксида урана и 45 г порошка пластифицирующей добавки (из расчета 0,10 мас.% на общую массу порошка для изготовления таблеток) смешивают в барабанном смесителе в течение 45 минут при скорости вращения барабана 35-40 оборотов в минуту. Проводят смешение полученной смеси с остальной частью порошка диоксида урана, как в примере 1. После приготовления смеси отбирают пробы из верхней, нижней и средней частей и направляют для анализа содержания железа. Содержание железа (пластифицирующей добавки) по объему порошка составило 0,063 мас.% при отклонении от среднего в пределах 0,013 мас.%. Проводят подготовку порошка для прессования, прессование таблеток и их спекание, как в примере 1.

Пример 4. Осуществление способа получения таблеток (вариант 4).

Готовят исходный порошок диоксида урана, как в примере 1. В качестве пластифицирующей добавки используют порошок из комбинации оксидов Fe₂O₃, FeO, SiO₂ и Al₂O₃ при содержании в нем (без учета массы кислорода) железа 70%, кремния 12% и алюминия 18%. Пластифицирующую добавку прокачивают в термической печи при температуре 750°C в течение одного часа, измельчают в ступке, просеивают через капроновое сито с размером ячейки 40 мкм. Фракцию порошка, прошедшую через сито, отбирают для изготовления таблеток. Оксид ниобия прокачивают на воздухе при температуре 1200°C, измельчают в ступке, просеивают через капроновое сито с размером ячейки 40 мкм. Фракцию порошка, прошедшую через сито, отбирают для изготовления таблеток. 200 г порошка диоксида урана, 45 г порошка пластифицирующей добавки и 43 г порошка оксида ниобия смешивают в барабанном смесителе в течение 45 минут при скорости вращения барабана 35-40 оборотов в минуту. Проводят смешивание полученной смеси с остальной частью порошка диоксида урана, как в примере 1. Из верхней, нижней и средней частей приготовленной смеси отбирают пробы порошка и направляют их для анализа содержания железа и ниобия.

Содержание железа (пластифицирующей добавки) по объему порошка составило 0,063 мас.% при отклонении от среднего в пределах 0,013 мас.%, а ниобия, соответственно, 0,18 и 0,03 мас.%. Проводят подготовку порошка для прессования, прессование таблеток и их спекание, как в примере 1.

Пример 5. Осуществление способа получения таблеток (вариант 1 с гадолинием).

Готовят порошок диоксида урана, как в примере 1. Порошок оксида гадолиния просеивают через сито с размером ячейки 100 мкм. Фракцию, прошедшую через сито, берут для изготовления таблеток. Порошок диоксида урана в количестве 43000 г и порошок оксида гадолиния в количестве 2150 г смешивают в вихревом смесителе в течение 3 минут. Полученную смесь порошков смешивают с алюмосиликатом по схеме в соответствии с примером 1. Проводят подготовку порошка для прессования, прессование таблеток и их спекание, как в примере 1.

Пример 6. Осуществление способа получения таблеток (вариант 1 с эрбием).

Готовят порошок диоксида урана и порошок алюмосиликата, как в примере 1. Порошок оксида эрбия просеивают через сито с размером ячейки 100 мкм. Фракцию, прошедшую через сито, берут для изготовления таблеток. Порошок диоксида урана в количестве 200 г, 107,5 г порошка алюмосиликата и 250 г порошка оксида эрбия смешивают в барабанном смесителе в течение 45 минут при скорости вращения барабана 35-40 оборотов в минуту. Полученную смесь порошков смешивают с основной частью порошка диоксида урана по схеме в соответствии с примером 1. Проводят подготовку порошка для прессования, прессование таблеток и их спекание, как в примере 1.

Подготовка полученных таблеток к исследованиям и проведение исследований их свойств осуществлялось с помощью известных методик. Так массовую долю железа, кремния, алюминия и ниобия определяли спектральным и химическим методами, параметры микроструктуры определяли с помощью оптической микроскопии. Механические испытания по определению пластичности таблеток определяли на машине модели 1246-P-2/2300-1 при температуре от 20 до 900 °C в вакууме. Определение фазового состава таблеток проводилось рентгенографическим методом в камерах типа РКЦ-86 на кобальтовом излучении. Распределение легирующих добавок в спеченных таблетках из диоксида урана определяли с помощью микроанализатора "CAMEBAX" по характеристическому рентгеновскому излучению.

Результаты измерения свойств таблеток, полученных в соответствии с шестью приведенными выше примерами и в соответствии с заявляемыми четырьмя вариантами реализации способов, приведены в таблице, а также на фиг.1 - 3.

Определение содержания легирующих элементов в заявляемых таблетках показало, что содержание алюминия и кремния соответствует введенному при приготовлении смеси. Анализ микроструктуры показал, что алюминий и кремний в виде оксидов образуют

с диоксидом урана легкоплавкие эвтектики на границах зерен диоксида урана (см. фиг.1 и 2). В таблетках, выполненных по второму варианту, ниобий в виде пентаоксида входит в состав твердого раствора диоксида урана и равномерно распределен по объему таблетки. В таблетках, выполненных по варианту 3, алюминий, кремний и часть железа (от 30 до 60 мас. %) в виде оксидов образует с диоксидом урана легкоплавкую эвтектику, которая в виде тонкой пленки толщиной около одного микрона разделяет зерна диоксида урана (см. фиг.1 в фиг.3). Другая часть железа в форме оксида образует с диоксидом урана твердый раствор и равномерно распределена по объему таблетки. В таблетках, выполненных по варианту 4, характеристики распределения алюминия, кремния и железа соответствовали варианту 3, а дополнительно введенный ниобий в форме оксида образует с диоксидом урана твердый раствор и равномерно распределен по объему таблетки. Исследования пластической деформации заявляемых таблеток (см. данные таблицы) показали существенное повышение пластических свойств материала таблеток. Так у таблеток, изготовленных в соответствии с изобретением, температура хрупкопластического перехода снижается до 650-860°C по сравнению со значением 1200 °C для обычных таблеток из диоксида урана без пластифицирующих добавок, а относительная пластическая деформация таблеток при температуре 1200°C составляет от 5 до 12%. Повышение пластичности материала ядерного топлива при рабочих температурах его использования позволит существенно снизить механическое взаимодействие столба топливных таблеток с оболочкой твэла, особенно при работе атомных станций в маневренных режимах.

Введение пластифицирующих добавок не приводит к каким-либо заметным негативным изменениям параметров таблеток. Так, например, плотность и пористость таблеток соответствует требованиям к ядерному топливу (см. данные таблицы). Повышение параметров пластичности топлива достигается как влиянием пленки легкоплавкой эвтектики на границах зерен, так и оптимальным размером зерна диоксида урана. Средний размер зерна диоксида урана, полученный в конкретных примерах осуществления способа, приведен в таблице. Диапазон изменения диаметра зерна для таблеток, полученных в соответствии с вариантами реализации способа, находился в пределах от 10 до 30 мкм (см. данные таблицы).

Таким образом, проведенные исследования показывают, что таблетки ядерного топлива, выполненные в соответствии с вариантами изобретения, существенно превосходят стандартное топливо по показателю пластичности и соответствуют другим основным требованиям, предъявляемым к ядерному топливу. Практическое использование предлагаемого топлива позволит существенно повысить надежность твэлов при работе атомных электростанций в маневренных режимах и повысить глубину выгорания.

Формула изобретения:

1. Таблетка ядерного топлива из диоксида урана содержит алюминий от 0,03 до 0,10 мас. % и кремний от 0,01 до 0,05 мас. %, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики с диоксидом урана.

2. Таблетка по п. 1, отличающаяся тем, что размер зерен диоксида урана составляет от 12 до 20 мкм.

3. Таблетка по п. 1 или 2, отличающаяся тем, что она содержит от 0,3 до 10,0 мас. % гадолиния в виде оксидов.

4. Таблетка по п. 1 или 2, отличающаяся тем, что она содержит от 0,3 до 0,8 мас. % эрбия в виде оксидов.

5. Таблетка ядерного топлива из диоксида урана содержит алюминий от 0,03 до 0,10 мас. %, кремний от 0,01 до 0,05 мас. % и ниобий от 0,05 до 0,15 мас. %, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики с диоксидом урана, а ниобий в форме оксидов образует твердый раствор с диоксидом урана.

6. Таблетка по п. 5, отличающаяся тем, что размер зерен диоксида урана составляет от 12 до 30 мкм.

7. Таблетка по п. 5 или 6, отличающаяся тем, что она содержит гадолиний от 0,3 до 10,0 мас. % в виде оксидов.

8. Таблетка по п. 5 или 6, отличающаяся тем, что она содержит эрбий от 0,3 до 0,8 мас. % в виде оксидов.

9. Таблетка топлива из диоксида урана содержит железо от 0,04 до 0,15 мас. %, алюминий от 0,02 до 0,05 мас. % и кремний от 0,01 до 0,04 мас. %, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики с диоксидом урана и частью оксида железа, а остальная часть железа в форме оксида образует твердый раствор с диоксидом урана.

10. Таблетка по п. 9, отличающаяся тем, что размер зерен диоксида урана составляет от 10 до 20 мкм.

11. Таблетка по п. 9 или 10, отличающаяся тем, что она содержит гадолиний от 0,3 до 10,0 мас. % в виде оксидов.

12. Таблетка по п. 9 или 10, отличающаяся тем, что она содержит эрбий от 0,3 до 0,8 мас. % в виде оксидов.

13. Таблетка ядерного топлива из диоксида урана содержит железо от 0,04 до 0,15 мас. %, алюминий от 0,02 до 0,05 мас. %, кремний от 0,01 до 0,04 мас. % и ниобий от 0,05 до 0,15 мас. %, причем алюминий и кремний в форме оксидов распределены в основном по границам зерен диоксида урана в виде легкоплавкой эвтектики с диоксидом урана и частью оксида железа, а остальная часть железа и ниобий в форме оксидов образуют твердый раствор с диоксидом урана.

14. Таблетка по п. 13, отличающаяся тем, что размер зерен диоксида урана составляет от 12 до 30 мкм.

15. Таблетка по п. 13 или 14, отличающаяся тем, что она содержит гадолиний от 0,3 до 10,0 мас. % в виде оксидов.

16. Таблетка по п. 13 или 14, отличающаяся тем, что она содержит эрбий

частиц не более 40 мкм, проводят перемешивание этих порошков, прессование таблеток из полученной смеси и их высокотемпературное спекание.

24. Способ по п. 23, отличающийся тем, что при приготовлении смеси порошков для прессования таблеток используют гадолиний от 0,3 до 10,0 мас. % в виде оксидов.

25. Способ по п. 23, отличающийся тем, что при приготовлении смеси порошков для прессования таблеток используют эрбий от 0,3 до 0,8 мас. % в виде оксидов.

26. Способ получения таблеток из диоксида урана, содержащих железо от 0,04 до 0,15 мас. %, алюминий от 0,02 до 0,05 мас. % и кремний от 0,01 до 0,04 мас. %, в соответствии с которым готовят порошок диоксида урана и порошок из смеси оксидов Fe_2O_3 , FeO , SiO_2 и Al_2O_3 в количестве от 0,1 до 0,2 мас. %, при этом эту смесь оксидов предварительно прокаливают на воздухе при температуре от 700 до 800°C и измельчают до размера частиц менее 40 мкм, проводят перемешивание этих порошков, прессование таблеток из полученной смеси и их высокотемпературное спекание.

25 27. Способ по п. 26, отличающийся тем, что при приготовлении смеси порошков для прессования таблеток используют гадолиний от 0,3 до 10,0 мас. % в виде оксидов.

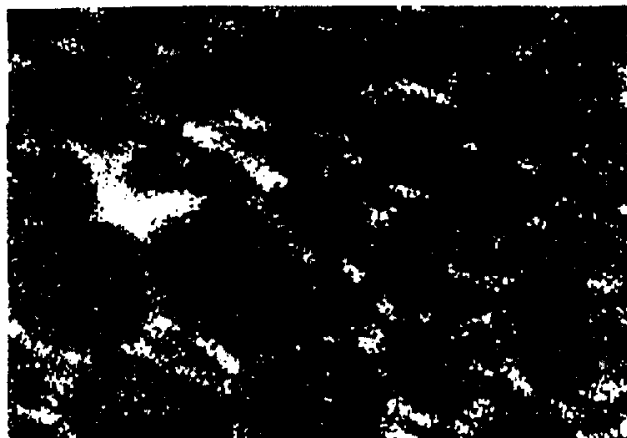
28. Способ по п. 26, отличающийся тем, что при приготовлении смеси порошков для прессования таблеток используют эрбий от 0,3 до 0,8 мас. % в виде оксидов.

29. Способ получения таблеток из диоксида урана, содержащих железо от 0,04 до 0,15 мас. %, алюминий от 0,02 до 0,05 мас. %, кремний от 0,01 до 0,04 мас. % и ниобий от 0,07 до 0,15 мас. %, в соответствии с которым готовят порошок диоксида урана, порошок из смеси оксидов Fe_2O_3 , FeO , SiO_2 и Al_2O_3 в количестве от 0,1 до 0,2 мас. %, при этом эту смесь оксидов предварительно прокаливают на воздухе при температуре от 700 до 800°C и измельчают до размера частиц менее 40 мкм и готовят порошок оксида ниобия в количестве от 0,1 до 0,2 мас. %, который предварительно прокаливают на воздухе при температуре от 1150 до 1250°C и измельчают до размера частиц не более 40 мкм, проводят перемешивание этих порошков, прессование таблеток из полученной смеси и их высокотемпературное спекание.

30. Способ по п. 29, отличающийся тем, что при приготовлении смеси порошков для прессования таблеток используют гадолиний от 0,3 до 10,0 мас. % в виде оксидов.

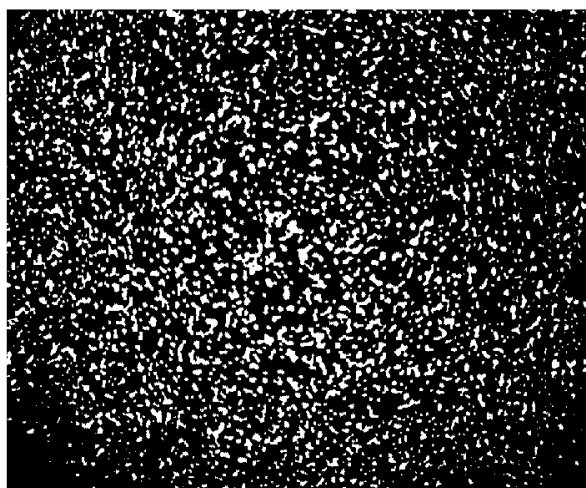
55

Параметры таблеток с пластифицирующими добавками						
Наименование параметра, размерность величины	Номер примера осуществления способа					
	1	2	3	4	5	6
Содержание элементов в таблетке, масс. %						
AL	0.095	0.076	0.014	0.014	0.095	0.095
SI	0.032	0.026	0.007	0.007	0.032	0.032
FE	-	-	0.043	0.043	-	-
NB	-	0.07	-	0.07	-	-
GA	-	-	-	-	4.3	-
ER	-	-	-	-	-	0.35
Средний размер зерна, мкм	18	23	15	22	15	16
Температура хрупко-пластичного перехода, °C	850	800	700	650	860	850
Относительная пластическая деформация при 1200°C, г/см ³	5	7	9	12	5	5
Плотность, г/см ³	10.58	10.59	10.57	10.56	10.45	10.52
Пористость, %об	Менее 1					



Фотография участка таблетки из диоксида урана, содержащей пластифицирующую добавку (вариант три), полученная в характеристическом рентгеновском излучении алюминия.

Фиг. 2



Фотография участка таблетки из диоксида урана, содержащей пластифицирующую добавку (вариант четыре), полученная в характеристическом рентгеновском излучении железа.

Фиг.3

RU 2 1 9 3 2 4 2 C 2

RU 2 1 9 3 2 4 2 C 2