

УДК 621.039.542.33

Вязкость разрушения таблеток толерантного топлива из дисилицида триурана

**Р.Б. Сивов, В.Е. Рукосуев, Е.Н. Михеев, А.В. Лысиков, О.А. Бахтеев,
В.В. Новиков, Л.А. Карпюк**

**АО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара», Москва
VERukosuev@bochvar.ru,**

В настоящее время активно ведутся работы по исследованию свойств дисилицида триурана U_3Si_2 , перспективного кандидата на роль толерантного ядерного топлива (топлива, устойчивого к аварийным ситуациям). Механические свойства важны для оценки работоспособности и взаимодействия топлива с оболочкой при нормальных, переходных и аварийных условиях работы реактора. В работе исследованы упругие характеристики, микротвердость и вязкость разрушения таблеток из дисилицида триурана с разной плотностью. Построены зависимости изученных упругих и механических свойств от плотности таблеток. Проведено сравнение механических свойств с полученными ранее аналогичными характеристиками для топливных таблеток из диоксида урана. Установлено, что все характеристики, за исключением коэффициента Пуассона, находятся в линейной зависимости от плотности образцов. Модуль упругости таблеток из дисилицида триурана значительно меньше, чем у диоксида урана. В то же время микротвердость и вязкость разрушения таблеток U_3Si_2 больше, чем у диоксида урана.

Ключевые слова: дисилицид триурана, ядерное топливо, вязкость разрушения.

Fracture toughness of triuranium disilicide tolerant fuel pellets.

**R.B. Sivov, V.E. Rukosuev, E.N. Mikheev, A.V. Lysikov, O.A. Bakhteev,
V.V. Novikov, L.A. Karpyuk**

**JSC « A. A. Bochvar High-tech Research Institute of Inorganic Materials», Moscow
VERukosuev@bochvar.ru**

Currently, work is underway to study the properties of triuranium disilicide (U_3Si_2), a promising candidate for the role of accident tolerant fuel (ATF). Mechanical properties are important for evaluating the interaction between fuel and cladding under normal, transient, and accident conditions of reactor operation. Elastic characteristics, microhardness, and fracture toughness of triuranium disilicide pellets with different densities have been studied in this work. Dependences of the studied elastic and mechanical properties on the density of the pellets are constructed. The mechanical properties are compared with the previously obtained analogous characteristics for uranium dioxide fuel pellets. It has been established that all characteristics, with the exception of the Poisson's ratio, are linearly dependent on the density of the samples. The modulus of elasticity of triuranium disilicide pellets is much lower than that of uranium dioxide. At the same time, the microhardness and fracture toughness of U_3Si_2 pellets are higher than those of uranium dioxide.

Key words: triuranium disilicide, nuclear fuel, fracture toughness

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время активно ведутся работы по исследованию свойств дисилицида триурана U_3Si_2 , перспективного кандидата на роль толерантного ядерного топлива (топлива, устойчивого к аварийным ситуациям), обладающего рядом преимуществ перед штатным топливом на основе диоксида урана: значительно большей теплопроводностью и пониженной теплоемкостью, а также более высокой плотностью и ураноемкостью.

Топливо с высокой теплопроводностью и низкой теплоемкостью работает при более низкой температуре и, таким образом, имеет меньшую запасенную энергию, накопленную в активной зоне реактора, тем самым повышая его безопасность и устойчивость к аварийным ситуациям. Повышенная ураноемкость топлива позволит увеличить количество эффективных суток работы реактора и удлинить топливный цикл без увеличения обогащения топлива выше 5 %, что приведет к значительной экономии при производстве, транспортировке и переработке твэлов.

Дисилицид триурана по электронному строению ближе к интерметаллидам [1], чем к более традиционному керамическому ядерному топливу, такому как диоксид урана, поэтому его механические свойства, важные для оценки работоспособности и взаимодействия топлива с оболочкой при нормальных, переходных и аварийных условиях работы, могут отличаться от

общепринятых. Данные характеристики также зависят от таких параметров материала, как плотность и размер зерна, которые определяются в том числе технологией изготовления. Таким образом, полученные значения механических свойств необходимо сравнить с аналогичными у диоксида урана, чтобы в дальнейшем можно было оценить возможную разницу в устойчивости к условиям эксплуатации.

В настоящей работе исследовали упругие характеристики, микротвердость и вязкость разрушения таблеток из дисилицида триурана с разной плотностью и проводили сравнение с полученными ранее аналогичными характеристиками для топливных таблеток из диоксида урана [2].

ПАРАМЕТРЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследование проводили на спеченных таблетках из дисилицида триурана. В таблице 1 приведены плотность и средний эффективный диаметр зерна исследованных таблеток. Плотность таблеток определяли методом гидростатического взвешивания в воде аналогично методике СТК-66 [3]. Анализ микроструктуры проводили с помощью металлографического оптического микроскопа Leica DMI5000 и электронного микроскопа с детектором обратно-рассеянных электронов Phenom Pure по аналогии с методиками 323.000.815 МВИ [4] и ОИ 001.619 [5].

Таблица 1

Плотность и средний эффективный диаметр зерна таблеток U_3Si_2

№ таблетки	Плотность, г/см ³	Средний эффективный диаметр зерна, мкм
1	11.10	45
2	11.29	34
3	11.36	41
4	11.43	38
5	11.55	43

Модуль Юнга (модуль упругости), модуль сдвига и коэффициент Пуассона таблеток определяли при комнатной температуре на установке МУЗА аналогично методике 323.000.752 МВИ [6] с использованием ультразвукового резонансного метода, который заключается в возбуждении продольных ультразвуковых колебаний в образце и измерении его собственной резонансной частоты.

Модуль Юнга рассчитывали по формуле:

$$E = 4h^2 f^2 k_f \rho, \quad (1)$$

где h – высота таблетки, м; f – собственная резонансная частота колебаний, с⁻¹; k_f – коэффициент формы, зависящий от отношения высоты к диаметру образца; ρ – плотность таблетки, кг/м³.

Модуль сдвига рассчитывали по формуле:

$$G = 4h^2 f^2 \rho. \quad (2)$$

Коэффициент Пуассона определяли на основе соотношений (1) и (2) по формуле:

$$\nu = \frac{E}{2G} - 1. \quad (3)$$

Микротвердость и вязкость разрушения таблеток определяли с помощью микротвердомера Mitutoyo HM-211 по аналогии с методикой 323.000.896 МВИс [7]. Микротвердость измеряли по Виккерсу с максимально прилагаемой на образец нагрузкой 1 кгс. Вязкость разрушения определяли путем нанесения отпечатков на поверхность образца (индентирования) с последующим измерением длины диагоналей и образовавшихся трещин. Для расчета вязкости разрушения по параметрам поверхностных радиальных трещин использовали формулу

$$K_{1c} = \frac{0,035H_V a^{1/2}}{3} \left(\frac{3E}{H_V}\right)^{2/5} \left(\frac{l}{a}\right)^{-1/2}, \quad (4)$$

где H_V – микротвердость таблетки, Па;
 E – модуль Юнга таблетки,

Pa ; a – половина средней длины диагоналей отпечатка, м;

l – средняя длина четырех поверхностных радиальных трещин, выходящих из вершин отпечатка, м [2, 8].

Для измерения упругих характеристик торцы таблеток шлифовали до получения образцов с правильной цилиндрической формой. Для определения микротвердости и вязкости разрушения таблетки разрезали на отрезном станке, запрессовывали в смолу и подвергали шлифовке и полировке.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты определения модуля Юнга, модуля сдвига и коэффициента Пуассона таблеток U_3Si_2 приведены в таблице 2. Зависимости модулей Юнга и сдвига от плотности в исследованном диапазоне близки к линейным. Средние величины модулей Юнга (~130 ГПа) и сдвига (~55 ГПа) таблеток хорошо коррелируют с литературными данными [9, 10]. В то же время коэффициент Пуассона (0,19-0,20) не зависит от плотности и практически одинаков для всех образцов, что также соответствует литературным данным [1, 9, 11].

Таблица 2

Упругие характеристики таблеток U_3Si_2

№ таблетки	E, ГПа	G, ГПа	ν
1	122	51	0,19
2	128	54	0,19
3	129	54	0,19
4	131	55	0,20
5	133	56	0,19

Упругие характеристики таблеток из диоксида урана имеют более высокие значения ($E \sim 200$ ГПа, $G \sim 75$ ГПа, $\nu \sim 0,3$) [12-15], чем определенные для дисилицида триурана. Из этого можно сделать вывод, что дисилицид триурана характеризуется меньшим сопротивлением к упругой деформации и изменению формы, чем диоксид урана, что подтверждается высокой хрупкостью слитков и таблеток U_3Si_2 .

Известно, что при измерении микротвердости при малых нагрузках существует область, в которой получаемые значения микротвердости завышены [16]. Поэтому необходимо определить оптимальную нагрузку индентирования, по

достижении которой микротвердость почти перестает изменяться, в дальнейшем крайне слабо зависит от приложенного усилия и становится пригодной для характеристики материала. В связи с этим для образца № 4 построили диаграмму нагружения, отображающую зависимость микротвердости от нагрузки (рис. 1). Отмечены типичные повышенные значения в области небольших нагрузок с последующей стабилизацией величины микротвердости со значения нагрузки ~0,5 кгс (при среднем значении микротвердости образца ~6,05 ГПа). Таким образом, установлено, что для таблеток U_3Si_2 измерение микротвердости следует проводить

при нагрузке 0,6 кгс, при которой также проводят измерения и для таблеток из диоксида урана [2, 7].

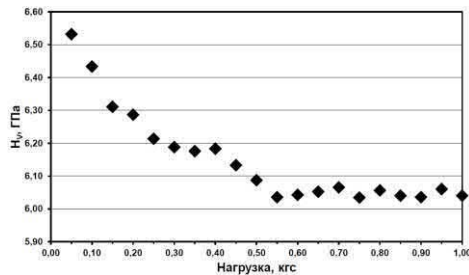


Рис. 1 – Зависимость микротвердости от нагрузки для таблетки U_3Si_2 (№ 4)

При определении микротвердости отпечатки на поверхности образца наносили из центра по четырем диаметральному направлениям с углом между ними в 45° . В результате не обнаружено зависимости микротвердости от координаты нанесения отпечатка, что говорит об изотропности механических свойств таблеток. Зависимость микротвердости от плотности таблеток U_3Si_2 представлена на рис. 2.

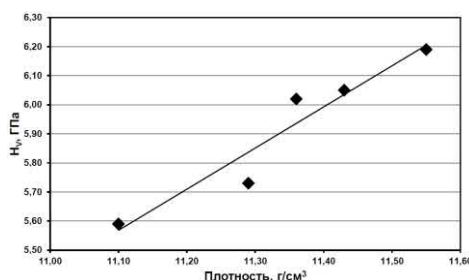


Рис. 2 – Зависимость микротвердости от плотности таблеток U_3Si_2

Установлено, что с увеличением плотности таблеток повышается их микротвердость, причем зависимость в исследованном диапазоне близка к линейной. Экспериментально определенная микротвердость таблеток U_3Si_2 хорошо коррелирует с литературными данными [17, 18] и немного выше значений, характерных для таблеток из диоксида урана с соответствующим размером зерна (5,80 ГПа) [2].

Определение вязкости разрушения таблеток производили посредством их индентирования при нагрузке 0,8 кгс в различных участках поверхности. Данная нагрузка выбрана исходя из того, что она должна превышать нагрузку при измерении микротвердости, но в то же время не приводит к излишнему растрескиванию поверхности образца и образованию несимметричных отпечатков со сколами и паутиной из трещин [2].

Для расчета по формуле (4) использовали измеренные для соответствующих образцов величины модуля Юнга и микротвердости. Зависимость вязкости разрушения от плотности таблеток U_3Si_2 приведена на рис. 3.

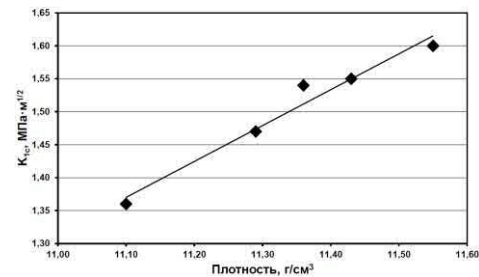


Рис. 3 – Зависимость вязкости разрушения от плотности таблеток U_3Si_2

С увеличением плотности таблеток повышается их вязкость разрушения, причем зависимость в исследованном диапазоне прямо пропорциональна. При исследовании микроструктуры не было обнаружено явной зависимости размера зерна от плотности таблеток U_3Si_2 (таблица 1). Таким образом, рост вязкости разрушения с повышением плотности, по-видимому, может быть объяснен тем, что при этом также увеличиваются модуль Юнга и микротвердость таблеток. Определенные в работе величины вязкости разрушения таблеток U_3Si_2 коррелируют с литературными данными [18] и выше, чем у таблеток UO_2 со сравнимым размером зерна (1,26 МПа·м^{1/2}) [2].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе проведено исследование упругих свойств, микротвердости и вязкости разрушения таблеток дисилицида триурана, получены их численные значения и выполнено сравнение с аналогичными характеристиками для штатного топлива из диоксида урана. Все характеристики, за исключением коэффициента Пуассона, находятся в линейной зависимости от плотности образцов. Модуль упругости таблеток из дисилицида триурана значительно меньше, чем у диоксида урана. В то же время величины микротвердости и вязкости разрушения таблеток U_3Si_2 больше, чем у диоксида урана. Таким образом, рассмотренные механические свойства топливных таблеток U_3Si_2 значительно отличаются от UO_2 , что обязательно необходимо учитывать при обосновании возможности применения нового вида топлива.

Результаты выполненной работы будут использованы в качестве оценочных характеристик прочностных свойств при производстве, транспортировке и снаряжении твэлов толерантного топлива U_3Si_2 , а также при верифика-

ции программных расчетных кодов для обоснования работоспособности, безопасности и обеспечения лицензирования толерантного топлива U_3Si_2 ВВЭР и ТВС-КВАДРАТ для отечественных и зарубежных потребителей.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wang T., Qiu N., Wen X. e.a. *First-principles investigations on the electronic structures of U_3Si_2* . – *J. Nucl. Mater.*, 2016, v. 469, p. 194-199.
2. Новиков В.В., Сивов Р.Б., Михеев Е.Н., Федотов А.В. *Вязкость разрушения топливных таблеток ВВЭР и PWR из диоксида урана с разным размером зерна*. – *Атомная энергия*, 2015, т. 118, вып. 2, с. 91-96.
3. *СТК-66-2017 Топливные таблетки. Методика измерений плотности и пористости с использованием гидростатического взвешивания*. – М.: АО «ТВЭЛ», 2017. – 25 с.
4. *323.000.815-2017 МВИ Методика измерений параметров пористости топливных таблеток*. – М.: АО «ВНИИНМ», 2017. – 35 с.
5. *ОИ 001.619-2006 Параметры микроструктуры таблеток ядерного топлива. Методика выполнения измерений*. – М.: ФГУП ВНИИНМ, 2007. – 41 с.
6. *323.000.752 МВИ Определение модуля упругости и коэффициента Пуассона оксидных урановых и уран-гадолиниевых таблеток типа ВВЭР*. – М.: ОАО «ВНИИНМ», 2010. – 11 с.
7. *323.000.896-2017 МВИс Топливные урановые и уран-гадолиниевые оксидные таблетки. Методика испытаний для определения вязкости разрушения методом микроиндентирования*. – М.: АО «ВНИИНМ», 2017. – 16 с.
8. Niihara K. *A fracture mechanics analysis of indentation-induced Palmqvist crack in ceramics*. – *J. Mater. Sci. Lett.*, 1983, v. 2, p. 221-223.
9. Carvajal-Nunez U., Saleh T.A., White J.T. e.a. *Determination of elastic properties of polycrystalline U_3Si_2 using resonant ultrasound spectroscopy*. – *J. Nucl. Mater.*, 2018, v. 498, p. 438-444.
10. Frazer D., Maiorov B., Carvajal-Nunez U. e.a. *High temperature mechanical properties of fluorite crystal structured materials (CeO_2 , ThO_2 , and UO_2) and advanced accident tolerant fuels (U_3Si_2 , UN, and UB_2)*. – *J. Nucl. Mater.*, 2021, v. 554, 153035.
11. Mohamad A., Ohishi Y., Muta H. e.a. *Thermal and mechanical properties of polycrystalline U_3Si_2 synthesized by spark plasma sintering*. – *J. Nucl. Sci. Technol.*, 2018, v. 55, No 10, p. 1141–1150.
12. *SCDAP/RELAP5/MOD3.1 Code Manual Volume IV: MATPRO – A Library of materials properties for Light-Water-Reactor accident analysis*. – Idaho National Engineering Laboratory. 1993 – 681 pp.
13. Sauter F., Leclercq S. *Modeling of the non-monotonous viscoplastic behavior of uranium dioxide*. – *J. Nucl. Mater.*, 2003, v. 322, p. 1-14.
14. Pujol M.C., Idiri M., Havela L. e.a. *Bulk and Young's modulus of doped UO_2 by synchrotron diffraction under high pressure and Knoop indentation*. – *J. Nucl. Mater.*, 2004, v. 324, p. 189-197.
15. Hall A.R. *Elastic moduli and internal friction of some uranium ceramics*. – *J. Nucl. Mater.*, 1970, v. 37, p. 314-323.
16. Gong J., Wang J., Guan Z. *Indentation toughness of ceramics: A modified approach*. – *J. Mater. Sci.*, 2002, v. 37, p. 865-869.
17. Harp J.M., Lessing P.A., Hoggan R.E. *Uranium silicide pellet fabrication by powder metallurgy for accident tolerant fuel evaluation and irradiation*. – *J. Nucl. Mater.*, 2015, v. 466, p. 728-738.
18. Metzger K.E., Knight T.W., Roberts E. e.a. *Determination of mechanical behavior of U_3Si_2 nuclear fuel by microindentation method*. – *Prog. Nucl. Energy*, 2017, v. 99, p. 147-154.

Поступила в редакцию / Received 16.10.2024

Поступила после рецензирования / Revised 13.01.2025

Принята к публикации / Accepted 19.06.2025