

IBK- 357



CS06RA905

IBK-357

B.Djurić, A.Mihajlović,  
Dj.Drobnjak

MOGUĆNOSTI UPOTREBE  
METALNOG URANA KAO GORIVA  
ZA TEŠKOVODNE REAKTORE

**INSTITUT ZA NUKLEARNE NAUKE „BORIS KIDRIČ“**  
**BEŃGRAD-VINĀA**

IBK - 357

HEMIJA I METALURGIJA

IBK-357

B.Djurić, A.Mihajlović,  
Dj.Drobnjak

MOGUĆNOSTI UPOTREBE  
METALNOG URANA KAO GORIVA  
ZA TEŠKOVODNE REAKTORE

INSTITUT ZA NUKLEARNE NAUKE "BORIS KIDRIČ"

BEOGRAD - VINČA

Novembar 1965.

# MOGUĆNOST UPOTREBE METALNOG URANA KAO GORIVA ZA TEŠKOVODNE REAKTORE

Branko Djurić, Aleksandar Mihajlović i Djordje Drobnjak

## OPŠTA RAZMATRANJA

Dosadašnja upotreba metalnog urana kao goriva u nuklearnim reaktorima pokazala je da metalni uran ima i niz nepovoljnih osobina, koje su u mnogome ograničile njegovu primenu. Međutim, određene prednosti koje poseduje metalni uran, kao što su velika gustina i sa njom povezan povoljan faktor konverzije i niski troškovi proizvodnje gorivnih elemenata, dovode do toga da se on još uvek vrlo ozbiljno razmatra pri razradi pojedinih reaktorskih koncepcija.

Na osnovne osobine metalnog urana ne može se u velikoj meri uticati u pravcu njihovog poboljšanja, a da se pri tome ne unesu nove nepoželjne osobine, tako da buduća primena metalnog urana kao goriva zavisi umnogome i od mogućnosti projektovanja određene koncepcije gorivnog elementa, koja će naglasiti pozitivne osobine metalnog urana i smanjiti negativan uticaj štetnih osobina.

Pokušaćemo da na osnovu raspoloživih podataka procenimo mogućnosti upotrebe metalnog urana kao goriva za teškovođne reaktorske sisteme. Mora se odmah napomenuti da takvih podataka u literaturi ima vrlo malo. Glavni akcent u ovom pregledu bačen je na najnovije podatke, i u tom cilju citirani su i neki još ne objavljeni radovi.

## Ekonomski aspekti

Kao polazna tačka za ocenjivanje mogućnosti primene metalnog goriva u teškovođnim reaktorima može da posluži ekonomska analiza kanadskih autora<sup>1</sup>, koja, mada primenjena na specifične uslove, može da ima opšti značaj. Izračunavane su ukupne cene nuklearne elektrane, odnosno energije koja bi se iz nje dobijala, polazeći od izvesnih pretpostavki. Radi se o postrojenju od 450 MW(e). Reaktor je sa cevima pod pritiskom. Moderator teška voda treba da omogući povećanje stepena sagorevanja do te mere da se izbegne reprocesing goriva. Cene su izračunavane za različite vrste rashladnog sredstva (tečna teška voda, ključala teška voda, ključala obična voda i organski rashladjivač) i za razna goriva (prirodni uran dioksid, obogaćeni uran dioksid, prirodni metalni uran). Za košuljicu je predviđena legura cirkonijum-niobijum. Za predviđeni stepen sagorevanja (9-12000 MWD/t U za prirodna goriva) odn. oko 25000 za 1,42% obogaćeni uran dioksid), ekonomski je najpovoljnije gorivo sa prirodnim uranom.

Ova analiza ukazuje na realne mogućnosti primene metalnog urana, ukoliko se postigne za metalni uran relativno visoki stepen sagorevanja od oko 10000 MWD/t U. Ova cifra nije neophodno donja granica jer bi možda niži stepen sagorevanja uz manje reaktorsko jezgro (niži kapitalni troškovi, manja količina teške vode) takodje moglo da bude povoljno rešenje.

Slični uslovi važe i za slučaj reaktorskog tipa sa sudom pod pritiskom, čak ovaj može da ima i izvesnih prednosti<sup>2</sup>, o čemu će da bude reči kasnije.

## METALNI URAN KAO GORIVO U TEŠKOVODNIM REAKTORIMA

Na postizanje zadovoljavajućeg ponašanja goriva u reaktoru utiče čitav niz faktora, koji se mogu podeliti u dve grupe: oni koji su zavisni od osnovnih osobina urana i oni koji su zavisni od projekta gorivnog elementa, odnosno reaktorskog sistema.

Za teškovodne reaktore posebno su kritični bubrenje pri velikim stepenima sagorevanja i korozija.

Kao prvo biće razmatrane neke osnovne osobine urana koje su od značaja za ponašanje u reaktoru, a zatim će biti izložene izvesne projektne koncepcije koje su interesantne za primenu metalnog urana kao goriva.

### OSOBINE METALNOG URANA

Višegodišnji intenzivni rad na proučavanju metalnog urana, koji je sprovedjen u velikom broju zemalja, rezultovao je u velikom broju vrlo iscrpnih radova, kako o njegovim opštim osobinama, tako i o osobinama koje su od naročitog interesa za ponašanje u reaktoru. Ograničićemo se u ovom pregledu samo na one osobine koje su od značaja za primenu urana kao goriva za teškovodne reaktore. Više radova koji vrlo detaljno i sveobuhvatno obrađuju razne osobine urana citirano je u literaturi na kraju ovog pregleda<sup>3,4,5,6.</sup>

#### Struktura urana

Metalni uran ima na niskim temperaturama ortorombičnu alfa strukturu. To je jedna u pogledu fizičkih osobina anizotropna faza, koja nema u potpunosti metalni karakter. Izvestan broj međjatomskih veza su kovalentne. Na  $668^{\circ}\text{C}$ <sup>7</sup>

prelazi u tetragonalnu beta fazu. Ova temperatura se smatra kao granica do koje metalni uran sme da bude zagrejan u reaktoru, jer je prelaz u beta fazu povezan sa velikim zapreminskim primenama, koje mogu da dovedu do pucanja zaštitne košuljice. Iz razloga sigurnosti, temperatura goriva ne bi trebalo da prelazi  $600^{\circ}\text{C}$ , što je veliki nedostatak metalnog urana kao goriva.

Na temperaturama iznad  $775^{\circ}\text{C}$ , uran prelazi u prostorno centriranu kubnu gama fazu, sa tipičnim metalnim karakteristikama, koje su u principu izvanredno povoljne za uslove pod kojima se nalazi gorivo u reaktoru (izotropnost, velika termička provodljivost, itd.) Legiranjem sa gama faza može zadržati do sobne temperature. Međutim, dodatak legirajuće komponente snižava reaktivnost goriva, tako da legirana goriva dolaze u obzir samo pri velikim obogaćenjima urana.

#### Termička provodljivost

Mada struktura alfa urana nema potpuno metalni karakter, termička provodljivost mu je znatno veća nego kod keramičkih goriva. Ova prednost u izvesnoj meri umanjuje nedostatak koji proizilazi iz nemogućnosti rada na temperaturama iznad  $600^{\circ}\text{C}$ .

#### Mehaničke osobine

Mehaničke osobine urana nisu najpogodnije za uslove rada u reaktoru. On je krt, naročito posle ozračivanja i to dovodi do stvaranja manjih i većih pukotina pri termičkim naprezanjima. Koncentracija naprezanja oko pukotina može da izazove pucanje zaštitne košuljice. Za vreme ozračivanja uran postaje plastičan, što ima uticaja na rast

i puzanje, o čemu će biti reči kasnije.

Mehaničke osobine se mogu popraviti legiranjem.

Gustina i faktor brze fisije

Glavna prednost metalnog urana u odnosu na ostala goriva je njegova velika gustina i ona, pored niskih troškova proizvodnje, predstavlja glavni argument u prilog razmatranja mogućnosti njegove primene u raznim reaktorskim sistemima. Gustina metalnog urana iznosi oko  $19 \text{ gr/cm}^3$ , što je znatno više od gustine urandioksida ( $9,66 \text{ gr/cm}^3$ ) i uran karbida ( $12,97 \text{ gr/cm}^3$ ). Rezultat toga je znatno viši faktor konverzije u slučaju metalnog urana, zbog povoljnijeg faktora brze fisije. Pri određenim uslovima (gorivo u obliku šipke, teška voda kao moderator) metal ima oko dva puta veći faktor brze fisije nego oksidno gorivo. Povećanje stepena sagorevanja je u ovom slučaju za oko 10-20% veće kod metalnog goriva. Povećanje reaktivnosti ne mora da bude iskorišćeno za povećanje stepena sagorevanja, već može takođe da se iskoristi za smanjenje zapremine reaktorskog suda<sup>8</sup>.

Bubrenje

Prilikom fisije urana, 10-15% fisionih produkata čine plemeniti gasovi. Njihova rastvorljivost u metalnom alfa uranu je praktično zanemarljiva, tako da se ne mogu ugraditi u kristalnu rešetku, već stvaraju mehure koji dovode do bubrenja. Verovatno se vrlo mali mehuri prilično ravnomerno nukleiraju u celoj zapremini urana. Kritični momenat za kretanje je izgleda kretanje ovih mehura kroz metal i spajanje u veće mehure. Prema novijim shvatanjima<sup>9</sup>, svaka prepreka kretanju mehura smanjiće bubrenje. Kao barijere za kretanje mehura korišćeni su vrlo sitni precipitanti druge faze,

ravnomerno rasporedjeni u uranovoj matrici. Engleski istraživači razvili su u tom cilju tzv. podešeni (adjusted) uran sa oko 1000 ppm gvoždja i aluminijuna, koji se kao teško rastvorni disperguju u obliku intermetalnih jedinjenja<sup>9</sup>. U Francuskoj su istražene legure urana sa molibdenom, gde se livenjem ili pogodnim termičkim tretiranjem postiže fina precipitacija ravnotežne alfa-gama faze<sup>10,17,18</sup>. Postoje eksperimentalni podaci koji pokazuju da i u ovakvim materijalima dolazi do bubrenja, i to u podešenom uranu oko 1% za 1000 MWD/t<sup>11</sup> i u leguri U-1 tež.% Mo 3,2% za 10500 MWD/t<sup>10</sup>. Detaljnija analiza teorije i eksperimentalnih podataka o bubrenju data je na drugom mestu<sup>12</sup>.

Postoji ideja da su dva kritična faktora koji utiču na finoću dispersije druge faze, i time posredno na bubrenje, brzina sagorevanja (odn. broj događaja fisije u jedinici vremena) i temperatura. Ta dva fenomena imaju suprotan efekat i pri određenim uslovima rada reaktora bi se mogla uspostaviti dinamička ravnoteža. Postoji verovatnoća da bi se pod pogodnim uslovima režima goriva u reaktoru mogla uspostaviti takva ravnoteža koja bi smanjila brzinu bubrenja<sup>13</sup>.

### Rast i puzanje

Pod uticajem neutronske zračenja i učestanih promena temperature, dolazi do rasta urana u određenim kristalografskim pravcima. Ovo može da ima katastrofalne posledice pri upotrebi urana kao goriva. Posledice rasta se mogu izbeći ukoliko se metal nalazi u obliku polikristalnog sitnozrnog agregata koji nema teksture (preferentne usmerenosti zrna). Minimalne količine teksture dobijaju se u livenom uranu, ili pogodno termički tretiranom. Svaka mehanička obrada unosi određenu teksturu, koja se kasnije ne može više potpuno ukloniti.



Jedna od posledica rasta u reaktoru je povećanje brzine puzanja urana.

Detaljni pregled literature o rastu i puzanju urana u reaktoru dat je na drugom mestu<sup>12</sup>.

### Korozija

Jedan od glavnih razloga što metalni uran do sada nije našao upotrebu u teškovođnim reaktorima je njego<sup>širu</sup>va slaba otpornost prema koroziji u vodi. U tom pogledu on je inferioran u odnosu na uran dioksid. Iz razloga bezbednosti reaktora nije dovoljno pouzdati se u zaštitnu košuljicu, jer dimenzione promene do kojih u reaktoru dolazi mogu da izazovu prskanje košuljice, u kom slučaju uran ostaje direktno izložen uticaju vode.

Glavni produkt reakcije između vode i urana je uran dioksid. Međutim, važan je i uticaj oslobodjenog vodonika: on prodire u metal stvarajući hidrid, koji ima veliku zapreminu i dovodi do bubrenja. Ova reakcija je naročito efikasna na nižim temperaturama (do 200°C)<sup>8</sup>. Ukoliko se radi o prodiranju vode kroz košuljicu kroz vrlo male rupe, može da se desi da stvoreni uran dioksid spreči dalju koroziju.

Jedan od načina da se poveća koroziona stabilnost urana je legiranje. Pokušane su razne legure, kao na primer U-5% Zr- 1,5%Nb<sup>14</sup>. Kao i uvek kad se radi o legiranju urana, to je povezano sa smanjenjem reaktivnosti goriva.

U poslednje vreme je nadjeno da legura U<sub>3</sub>Si ima vrlo dobru korozionu stabilnost i postoji mišljenje da ta legura, kombinovana sa dobrom košuljicom predstavlja vrlo perspektivno rešenje<sup>8,15</sup>.

## PROJEKTOVANJE GORIVNOG ELEMENTA

Kao što se iz prethodnog poglavlja vidi, niz nepoželjnih osobina metalnog urana mogu se do izvesnog stepena otkloniti. Ali to poboljšanje osobina ima svojih granica iznad kojih se ne može ići. Dalje mogućnosti se međjutim, mogu naći u novim, poboljšanim karakteristikama gorivnih elemenata i reaktorskog sistema. U daljem tekstu je dat pregled najnovijih pokušaja u tom pravcu. Mnogi od njih predstavljaju vrlo privlačna rešenja, ali za sada postoji vrlo malo eksperimentalnih provera.

Prema današnjem stanju razvoja, kao metalno gorivo za teškovođne reaktore dolazi u obzir podešeni i slabo legirani uran. Gorivni element može da bude u obliku šipke ili cevi. Na osnovu zahteva reaktorske fizike i prenosa toplote, debljina šipke bi trebalo da bude oko 12 mm, a debljina zida cevi oko 8 mm, sa spoljnim prečnikom od oko 50 mm. Kao najpogodniji materijal za košuljicu dolazi u obzir cirkaloid. Maksimalna radna temperatura goriva bila bi između 450 i 600°C. Ovakav gorivni element bio bi interesantan ukoliko se može postići stepen sagorevanja od preko 10000 MWD/t U<sup>15</sup>. Cena goriva trebalo bi da bude ispod 40 \$ kg U.<sup>1,15</sup>

### Uticaj reaktorskog sistema

Efekat veće gustine metalnog urana bolje se iskorišćuje kod reaktora sa cevima pod pritiskom, gde su šipke gusto složene. Ovaj sistem je ekonomski vrlo povoljan, naročito kad se uzme u obzir da veća gustina može znatno da smanji dimenzije cevi pod pritiskom<sup>15</sup>. Iz istog razloga povoljnije je gorivo u obliku šipki, nego u obliku cevi.

Međutim, gusto pakovanje gorivnih elemenata ima za posledicu slabije odvodjenje toplote. Pojava bubrenja može znatno da utiče na protok rashladne tečnosti, što može da dovede do pregrevanja. Moguće oštećenje jednog elementa lako se prenosi na susedni<sup>15</sup>.

Zato je po mišljenju švedskih autora<sup>2,15</sup> povoljniji sistem sa sudom pod pritiskom, u kome su šipke goriva na većem rastojanju, a između njih je slobodan protok rashladne tečnosti. U tom slučaju bubrenje ne utiče znatno na protok. Moguće je takodje upotrebiti šipke većeg prečnika, odnosno cevi veće debljine zidova, koje su jeftinije. Šipke mogu biti dugačke, jer manje krivljenje nema uticaja. Ovakav sistem je vrlo fleksibilan i omogućava da se u njega mogu staviti i različiti tipovi gorivnih elemenata.

Mada su zbog ograničenog toplotnog fluksa kod metalnog goriva, povoljniji sistemi sa ključalom vodom od sistema sa vodom pod pritiskom<sup>8</sup>, treba uzeti u obzir da u ovom drugom slučaju može da se postigne veća specifična snaga<sup>15</sup>.

#### Konstrukcija gorivnog elementa

Postoji više raznih koncepcija, koje su uglavnom usmerene na smanjenje bubrenja i opasnosti od korozije.

Postoji ideja da cevni gorivni elementi budu samo sa spoljne strane zaštićeni košuljicom, dok bi eventualne dimenzione promene mogle slobodno da se akomodiraju prema unutrašnjosti. Ocenjeno je da bi ovakvi gorivni elementi od podešenog urana mogli podneti povećanje zapremine od 10% usled bubrenja, koje se očekuje pri stepenu sagorevanja od 10000 MWD/t U<sup>16</sup>. Tu postoji problem što cevni gorivni elementi pokazuju mehaničku nestabilnost pri većim stepenima sagorevanja<sup>15</sup>.

Bubrenje je slabije izraženo na temperaturama ispod  $450^{\circ}\text{C}$ . U cevnim gorivnim elementima se može temperatura održavati ispod  $450^{\circ}\text{C}$  a da se ipak postigne zadovoljavajuća produkcija toplote. Međutim, uvek postoji opasnost od prekoračivanja te temperature, što bi dovelo do pojačanog bubrenja<sup>15</sup>.

Kod gorivnih elemenata u obliku šipke moguće bi bilo smanjiti bubrenje čvrstom košuljicom koja bi pritiskivala gorivnu šipku. Podeseni uran je pogodniji za ovakav tip elementa. Korisno bi bilo da pri tome šipka ima unutrašnju šupljinu. Postoji vrlo malo podataka o takvom tipu gorivnog elementa<sup>8,15</sup>. Postoji čak ideja da bi takav gorivni element mogao da izdrži temperature beta fazne oblasti i zapreminske promene skopčane sa faznom transformacijom<sup>15</sup>.

Dispergovanje čestica urana u nefisibilnu matriču takodje smanjuje zapreminske promene usled zračenja<sup>8</sup>, ali znatno smanjuje reaktivnost goriva.

Što se tiče korozivne stabilnosti, tu pored ranije pomenutih ideja o legiranju postoji i mogućnost da se između jezgra i košuljice postavi sloj koroziono otporne legure ( $\text{U}_3\text{Si}$ ), ili sloj aluminijuma, koji bi zbog svoje plastičnosti osim zaštite jezgra imao i ulogu da zaustavi kretanje pukotina<sup>15</sup>.

Rupičasta korozija kroz košuljicu nije velika opasnost za bezbednost reaktora. Potrebno je samo sprečiti širenje pukotine uzduž šipke, što se postiže difuzionom vezom između goriva i košuljice<sup>8</sup>. U svakom slučaju potreban je sistem za brzo detektovanje oštećenja i brzo zamenjivanje oštećenog elementa<sup>15</sup>.

## ZAKLJUČAK

Postoje ozbiljni ekonomski razlozi za primenu metalnog urana u teškovodnim reaktorima, pre svega zbog njegove velike gustine, odnosno visokog konverzionog faktora, i zbog niskih troškova proizvodnje gorivnih elemenata. Glavne prepreke su bubrenje pri velikim stepenima sagorevanja i opasnost od korozije. Postoje veliki izgledi da se primenom odredjenih projektnih koncepcija i upotrebom legiranjem poboljšanog urana postigne zadovoljavajuća stabilnost metalnog urana u uslovima rada reaktora.

## LITERATURA

1. G.A. Pon, W.B. Lewis, L.R. Haywood, D.B. Primeau, G.J. Philips, and E.E. Merlo, Third United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, A/Conf. 28/P/10 (1964).
2. H. Mogard et al. "Third United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, A/Conf. 28/P/608 (1964)
3. A.N. Holden: "Physical Metallurgy of Uranium". Addison-Wesley Publ. Co., Reading, U.S.A., (1958).
4. P. Pascal (ed): "Nouveau Traité de Chimie Minérale - Tome XV, Uranium". Masson et Cie, Paris (1960).
5. W.D. Wilkinson: "Uranium Metallurgy". Interscience Publishers, New York (1962).
6. J.H. Gittus: "Uranium". Butterworths, London (1963).
7. B. Blumenthal, J. Nucl. Materials 2 (1960) 23.
8. G. Ostberg: "Properties of Metallic Uranium". Advanced Course on Fuel Elements for Water Cooled Power Reactors Including Superheat, organized by the Netherlands Norwegian Reactor School, Norway (1965) (neobjavljeno).
9. R.S. Barnes, R.G. Bellamy, B.R. Butcher, and P.G. Mardon Third United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, A/Conf. 28/P/145. (1964).
10. M. Englander et al.: Third United Nations Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, A/Conf. 28/P/97 (1964).

11. J.H. Gittus, V.W. Eldred, A. Studdard, G. Slattery and F. Chatterley, Symposium on Irradiation Damage in Solids and Reactor Materials, Venice (1962).
12. Dj. Lazarević: "Razvoj goriva na bazi metalnog urana prirodnog izotopskog sastava". IBK-294 (1965).
13. Dj. Lazarević: "Uticaj brzine sagorevanja na stabilnost goriva na bazi metalnog urana prema bubrenju". IBK-296 (1965).
14. J.E. Draley, S. Greenberg, and W.E. Ruther, ANL-5530 (1957).
15. H. Mogard: "Design Views on Metallic Fuel Elements for Water Cooled Power Reactors". Advanced Course on Fuel Elements for Water Cooled Power Reactors Including Superheat, organized by The Netherlands' Norwegian Reactor School, Norway (1965) (neobjavljeno).
16. G. Ostberg, privatna informacija.
17. M. Englander, J.A. Stohr, u "Properties of Reactor Materials and the Effects of Radiation Damage", D.J. Littler (ed). Butterworths, London (1962) p. 483.
18. J.P. Mustelier, H. Mikailoff, J.L. Ratier, D. Gondal, J. Bloch, u "Properties of Reactor Materials and the Effects of Radiation Damage", D.J. Littler (ed). Butterworths, London (1962) p. 505.

Izdavač:  
Institut za nuklearne nauke „Boris Kidrič“  
Poštanski fak 522  
Beograd - Vinča