

ФЕДЕРАЛЬНОЕ АГЕНТСТВО ПО ОБРАЗОВАНИЮ
Государственное образовательное учреждение высшего профессионального образования
«ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ»

В.И. Бойко, Г.Н. Колпаков, О.В. Селиваникова

ТОПЛИВНЫЕ МАТЕРИАЛЫ В ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКЕ

Учебное пособие

Издательство
Томского политехнического университета
2008

УДК 621.039.531(075.8)

ББК 31.46я73

Б77

Бойко В.И.

Б77

Топливные материалы в ядерной энергетике: учебное пособие / В.И. Бойко, Г.Н. Колпаков, О.В. Селиваникова. – Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 2008. – 186 с.

ISBN 5-98298-264-4

Рассматриваются вопросы создания топлива для ядерных реакторов. С этой целью вместе с технологиями изготовления топлива приводятся теоретические сведения о строении вещества, индивидуальных свойствах топливных материалов и их поведении при облучении в реакторе. Обсуждается проблема выбора топлива, его состава и обогащения для реакторов различного назначения, работающих на тепловых и быстрых нейтронах. Приводимые данные о топливе сопровождаются необходимыми сведениями по безопасности обращения с ними.

Пособие разработано в рамках реализации Инновационной образовательной программы ТПУ по направлению «Атомная энергетика, ядерный топливный цикл, безопасное обращение с радиоактивными отходами и отработанным ядерным топливом, обеспечение безопасности и противодействие терроризму» и предназначено для обеспечения подготовки магистров по программе «Физико-технические проблемы атомной энергетики».

УДК 621.039.531(075.8)

ББК 31.46я73

Рекомендовано к печати Редакционно-издательским советом
Томского политехнического университета

Рецензент

Доктор технических наук,
профессор Северной государственной технологической академии
А.С. Буйновский

ISBN 5-98298-264-4

© Бойко В.И., Колпаков Г.Н., Селиваникова О.В., 2008

© Томский политехнический университет, 2008

© Оформление. Издательство Томского политехнического университета, 2008

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	4
1. КРАТКИЕ СВЕДЕНИЯ О СТРОЕНИИ ВЕЩЕСТВА	5
2. ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ НА ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО	16
3. УРАН	20
4. СПЛАВЫ УРАНА	38
5. ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ НА ОСНОВЕ МЕТАЛЛИЧЕСКОГО УРАНА И ЕГО СПЛАВОВ	41
6. ДИОКСИД УРАНА	49
7. ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ ИЗ ОКСИДОВ УРАНА	55
8. КАРБИДЫ УРАНА И ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ ИЗ КАРБИДОВ	62
9. ПЛУТОНИЙ И ЕГО СОЕДИНЕНИЯ	68
10. ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ ИЗ ПЛУТОНИЯ	72
11. ТОРИЙ И ЕГО СОЕДИНЕНИЯ	75
12. ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ НА ОСНОВЕ ТОРИЯ.....	79
13. ДИСПЕРСИОННОЕ ТОПЛИВО	83
14. ДИСПЕРСНЫЕ ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ	90
15. ЖИДКОЕ ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО	104
16. АЛЬТЕРНАТИВНОЕ ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО	106
17. ВЫБОР ОБОГАЩЕНИЯ ТОПЛИВА	109
17.1. Реакторы-конверторы	109
17.2. Энергетические реакторы на тепловых нейтронах	111
17.3. Реакторы на быстрых нейтронах	129
17.4. Исследовательские реакторы	169
18. ТЕХНИКА БЕЗОПАСНОСТИ	172
КОНТРОЛЬНЫЕ ВОПРОСЫ	181
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	185

ВВЕДЕНИЕ

Опыт эксплуатации ядерных реакторов различного вида и назначения показывает насколько важен выбор вида топлива, его состава и обогащения для конкретного реактора. В сущности, тип реактора и вид топлива являются взаимопределяющими. Исходя из этого, формулируются те или иные требования, предъявляемые к топливу. Согласно этим требованиям ядерное топливо должно обладать не только теплотехнической эффективностью и производить минимальное количество вредных отходов, но и соответствовать тем требованиям, которые обычно предъявляют к конструкционным материалам. Сюда относятся доступность технологии изготовления, хорошая тепло- и электропроводность, радиационная стойкость, совместимость, длительная прочность в условиях высоких радиационных и температурных полей и прочие. Более того, в последнее время уже ставится в связь вид топлива и безопасность ядерного реактора.

В данном учебно-методическом пособии рассматриваются различные виды топлива для ядерных установок. При этом повышенное внимание уделяется топливу как конструкционному материалу. С этой целью кратко рассмотрено строение веществ, поведение их при облучении, свойства делящихся нуклидов и топлив на их основе, технологии и методы изготовления и обработки топливных сердечников ТВЭЛ, затраты и эффективность.

Обсуждается проблема выбора вида топлива и его обогащения для основных видов действующих реакторов.

В пособии намеренно мало внимания уделено конструкциям ТВЭЛов и ТВС, так как они описаны уже в многочисленной литературе. В тоже время изложение сведений о топливе мы старались соотнести с вопросами эффективности реактора, его управления и безопасности. Такой подход возник на кафедре физико-энергетических установок ТПУ, когда ей предложили подготовить специалистов ТВЭЛЬНОГО производства, а также сформулировать задачи, которые решают работающие на нем инженеры. Для учебных целей подобный подход, как мы покажем, также важен, так как в конечном счете ведет к правильному пониманию прогресса в ядерной энергетике и ядерной технологии.

ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО – это материал, содержащий делящийся нуклид в количестве, достаточном для организации цепной реакции деления (ЦРД). Как правило, в состав ядерного топлива входит также изотоп воспроизводства.

1. КРАТКИЕ СВЕДЕНИЯ О СТРОЕНИИ ВЕЩЕСТВА

В зависимости от температуры и давления вещества могут находиться в твёрдом, жидком или газообразном состояний.

Твёрдое состояние характеризуется тем, что расстояние между частицами имеет величину порядка их размера, а сами частицы совершают колебательные движения относительно положения равновесия. По этой причине твёрдые вещества сохраняют объём и форму и сопротивляются деформированию.

Распределение точек равновесия частиц в твёрдых веществах может быть упорядоченным (кристаллы) или беспорядочным (аморфные вещества).

Совершенный кристалл является абстракцией и на практике никогда не встречается. Обычно в кристалле имеются локальные или распределённые по объёму дефекты.

Существует четыре типа связей, возникающих между атомами и приводящих к образованию стабильных микроструктур [9]:

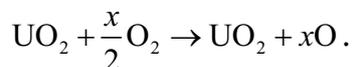
- ионная,
- ковалентная,
- металлическая,
- вандерваальсова.

В случае ионной связи составляющими кристаллической решетки являются ионы с противоположными электрическими зарядами, с полными электронными оболочками, которые взаимодействуют в основном через электростатические силы притяжения. Электрические силы отталкивания, а также квантовые силы между электронными оболочками и ядрами препятствуют бесконечному сближению ионов с противоположными по знаку зарядами, что приводит к возникновению дистанции равновесия.

Вследствие электростатической природы связи число ионов, которые могут окружать данный ион, зависит в основном от ионного радиуса партнеров. Этот тип связи иногда моделируют с помощью сфер различного диаметра.

Некоторые простые кристаллические ионные структуры показаны на рис. 1.1 [9]. Структуру типа фторида кальция имеет, например, диоксид урана UO_2 . Ионы урана образуют ГЦК (гранцентрированный куб), а ионы кислорода образуют свой куб внутри решетки урана. Таким образом, каждый ион урана окружен восемью ионами кислорода (коорди-

нация 8), в то время как кислород имеет на первой сфере координации четыре иона урана. Вследствие такого размещения ионов в решетке типа флюорита избыток анионов при изготовлении UO_2 может занять положение в центре исходной ячейки, что приводит к возникновению нестехиометрической структуры:



Эта структура (подтверждённая экспериментально) приводит к увеличению расстояния между ионами кислорода внутри элементарной ячейки. Кристаллическая решетка искажается.

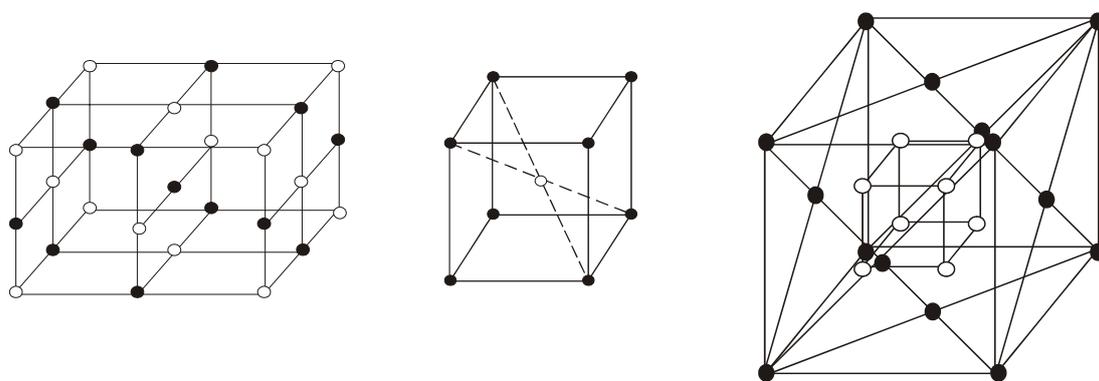


Рис. 1.1. Типичные структуры ионных кристаллов [9]

Ионные соединения, как правило, имеют повышенную температуру плавления. При введении этих соединений в растворители с большой диэлектрической константой они диссоциируют. В расплавленном состоянии ионные соединения характеризуются проводимостью ионного типа. В твёрдом состоянии они плохо проводят электричество и тепло. Ионная связь определяет и другие особые свойства: расслаивание, отсутствие ковкости и т. п.

Ковалентная связь возникает между нейтральными атомами в результате превращения некоторых электронов оболочки в общие для обоих партнеров. Такие связи через пары электронов встречаются чаще всего в органических соединениях.

В неорганических соединениях ковалентные связи наблюдаются в молекулах, образованных из одинаковых атомов, или в соединениях элементов IV группы периодической системы. На рис. 1.2 изображены некоторые структуры с ковалентными связями [9]. Типичными для ковалентных кристаллов являются направленные ориентированные в пространстве связи, количественно соответствующие валентностям составляющих атомов. По этой причине в таких системах ковалентные силы действуют внутри молекулы, а взаимодействие молекул между собой определяется силами другой природы. Например, в случае графита ковалентная связь приводит к

возникновению слоистой структуры атомов углерода (плоская гексагональная решетка), причем между слоями действуют вандерваальсовы силы (электростатические силы поляризации второго порядка).

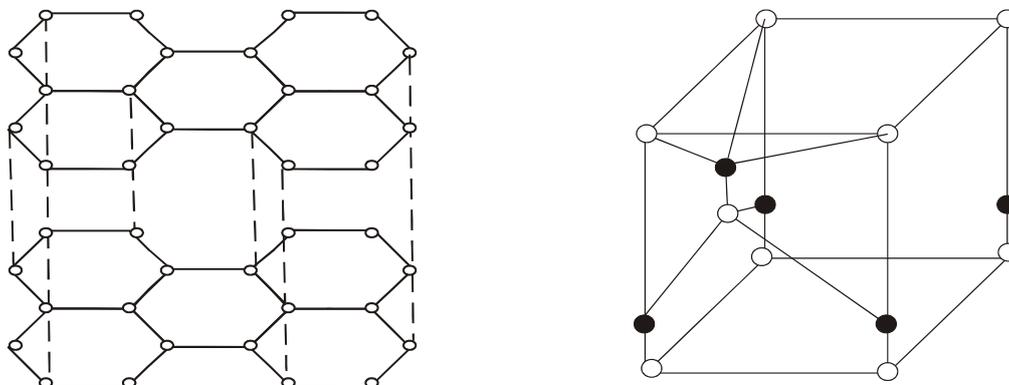


Рис. 1.2. Типичные структуры ковалентных кристаллов

Существует небольшое количество соединений, которые имеют чисто ковалентные связи, – это алмаз, нитрид алюминия (AlN) и AlP, имеющий структуру вюрцита.

Металлическая структура (или просто металлы) отличается от остальных некоторыми физическими свойствами:

- механической прочностью и ковкостью;
- повышенной электро- и теплопроводностью;
- непрозрачностью в видимой зоне электромагнитного спектра и т. п.

Металлическая структура может быть представлена как ионная решётка, распределённая в газе из квазисвободных электронов. Связь между ионами и свободными электронами даёт правильное размещение ионов в кристаллической решетке, а повышенная подвижность электронов придаёт металлу повышенную тепло- и электропроводность. Такой вид структуры имеет компактную большой плотности решетку, что определяет особые механические свойства металлов. Наиболее часто встречающимися структурами металлов являются:

- кубическая гранецентрированная (ГЦК),
- кубическая объёмцентрированная (ОЦК),
- гексагональная.

Многие металлы полиморфны. Например, уран в обычных условиях имеет комплексную структуру и переходит в простую структуру (ОЦК) только при $T > 1033 \text{ K}$.

Одной из отличительных особенностей металлических структур является способность образовывать сплавы. Сплавы отличаются от химических соединений тем, что сохраняют некоторые свойства составляющих их компонентов, и представления о валентности здесь трудноприменимы.

Существует большое число разновидностей сплавов, характеризующихся различными свойствами. Классификацию сплавов производят делением металлических элементов на четыре клана: T_1 , T_2 , B_1 и B_2 . Такое распределение показано в табл. 1.1. Элементы из группы T_1 сильно электроположительны. Группа T_2 охватывает переходные элементы. В группе B разделение на две категории менее чётко. Группа B_1 содержит элементы с более металлическим характером, в то время как в B_2 группируются элементы со слабым металлическим «характером».

Таблица 1.1

Классификация элементов по их способности образовывать сплавы

T_1	T_2										B_1			B_2	
Li Be															
Ma Mg											Al Si			S	
Kr Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	
Rb Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	
Cs Ba	La	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	
лантаноиды и актиноиды															

Отсюда бинарные сплавы могут быть разделены на четыре категории:

a – сплавы между элементами класса T ;

b – сплавы между элементами класса T и B ;

v – сплавы между элементами класса B ;

z – сплавы, в которых одним из компонентов является неметалл.

По мере перехода от сплавов категории *a* к сплавам категории *z* их свойства трансформируются, становясь все менее металлическими и приобретая всё более характер химического соединения.

Сплавы могут быть распределены на три категории, часто встречающиеся среди используемых в ядерных реакторах:

1. Механические смеси, в которых компоненты взаимно не растворяются.
2. Твёрдые растворы, в которых компоненты растворяются частично или полностью и которые делятся на три группы:
 - а) твёрдые растворы замещения,
 - б) твёрдые растворы внедрения,
 - в) твердые растворы вычитания, имеющие место при сильном химическом взаимодействии между компонентами.
3. Интерметаллические соединения.

Разновидности твёрдых растворов приведены на рис. 1.3 и в табл. 1.2.

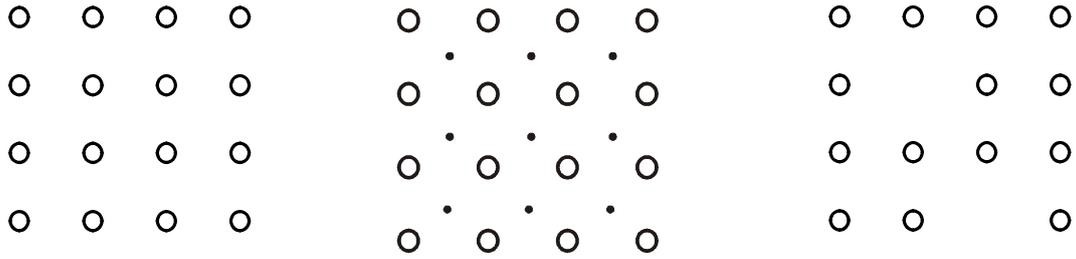


Рис. 1.3. Разновидности твёрдых растворов [8]

Таблица 1.2

Примеры сплавов внедрения (случай 2-б) [9]

Zr Н	Th – N	Th – C
Tu Н	Zr – N	Zr – C
Ti Н	U – N	Hf – C
	Nb – N	U – C
	Ti – N	Nb – C
	W – N	Ti – C
	Mo – N	W – C
	Mn – N	Mo – C
	Fe – N	V – C
		Fe – C

Агрегатное состояние вещества зависит от температуры и давления, а в случае сплавов, и от состава вещества. Представление об этих сложных соотношениях получают с помощью *фазовых диаграмм состояния*.

Диаграмма состояния однокомпонентной системы показана на рис. 1.4.

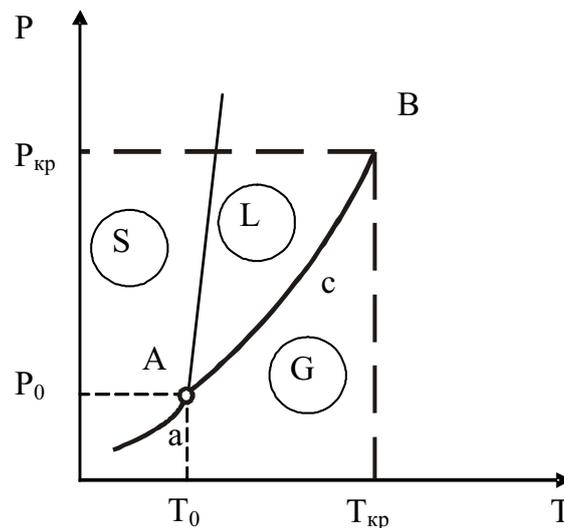


Рис. 1.4. Диаграмма для чистого вещества [9]

Кривые *a*, *b* и *c* разграничивают три зоны, соответствующие трём агрегатным состояниям: твёрдому (*S*), жидкому (*L*) и газообразному (*G*).

Кривая *b*, отделяющая твёрдую фазу от жидкой, выражает зависимость температуры плавления от давления. Кривая *c*, отделяющая жидкую фазу от газообразной, соответствует давлению равновесия между испарением и конденсацией. Кривая *a*, которая отделяет твёрдую фазу от газообразной, соответствует давлению равновесия сублимации. Точка пересечения *A* трёх кривых определяет «тройную» точку сосуществования трёх фаз (при условиях $P = P_0$, $T = T_0$). Точка *B*, наивысшая на кривой *c*, называется критической: при $P = P_{кр}$, $T = T_{кр}$. Кипящая жидкость и насыщенные пары не различаются как отдельные фазы.

Многокомпонентные системы обычно представляют с помощью *диаграмм равновесия*, которые графически выражают соотношение между температурой, составом и физическим состоянием системы в условиях равновесия.

На рис. 1.5 изображена диаграмма равновесия системы висмут–кадмий, типичная для сплавов типа механических смесей. Диаграмма показывает, что по мере повышения концентрации кадмия температура отвердевания смеси снижается по кривой *AB*. На диаграмме можно выделить так называемую «эвтектическую точку» при 144 °С и массовой концентрации висмута ~ 40 %.

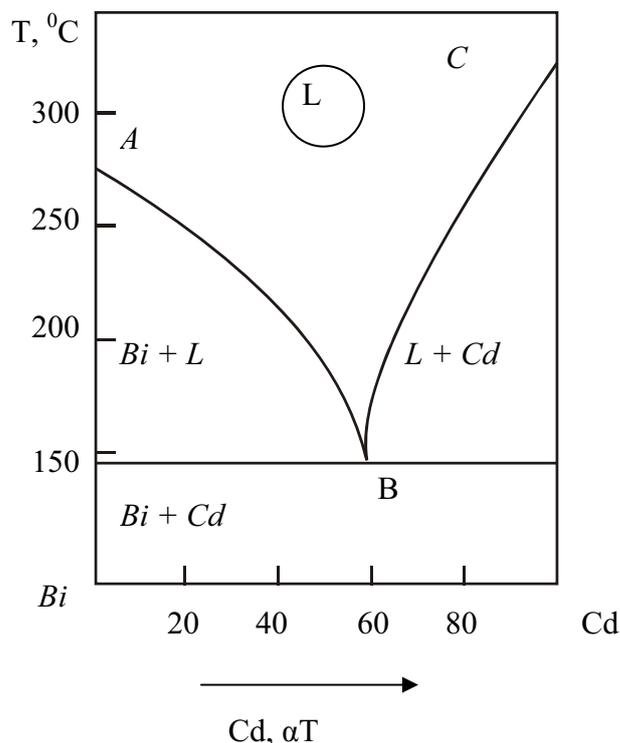


Рис. 1.5. Диаграмма системы висмут–кадмий [9]

Показательным примером для сплавов типа твёрдый раствор является система уран–цирконий (рис. 1.6).

При температуре выше 900 °С Zr_{β} и U_{γ} полностью растворяются в любой пропорции, образуя твёрдый раствор или (при температуре выше точки плавления) жидкость, однородную на атомном уровне.

Ниже 900 °С, вследствие смены фаз (Zr переходит в фазу α , а U – в фазу β или α), наблюдается только частичная растворимость в твёрдом состоянии и система становится более компактной. К этой же категории относится сплав $Zr-Ti$, имеющий большую механическую устойчивость при повышенных температурах, а также сплав $U-Th$.

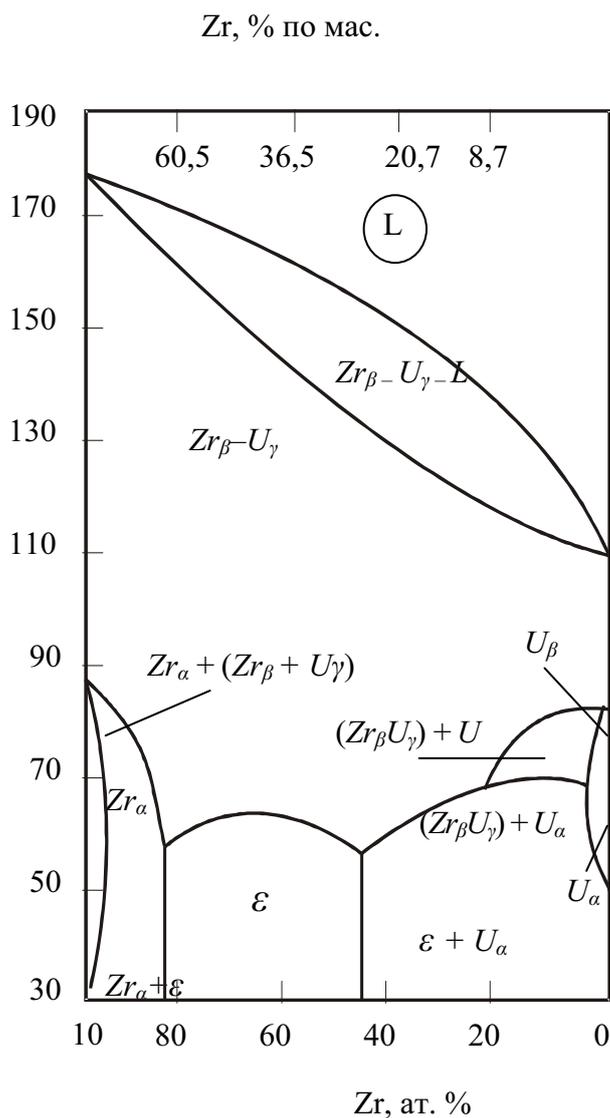


Рис. 1.6. Системы (U-Zr) [9]

Примером категории сплавов, являющихся химическими соединениями или интерметаллидами, служит система $U-C$. Участки её диаграммы показаны на рис. 1.7. На диаграмме видны соединения UC , UC_2 , U_2C_3 .

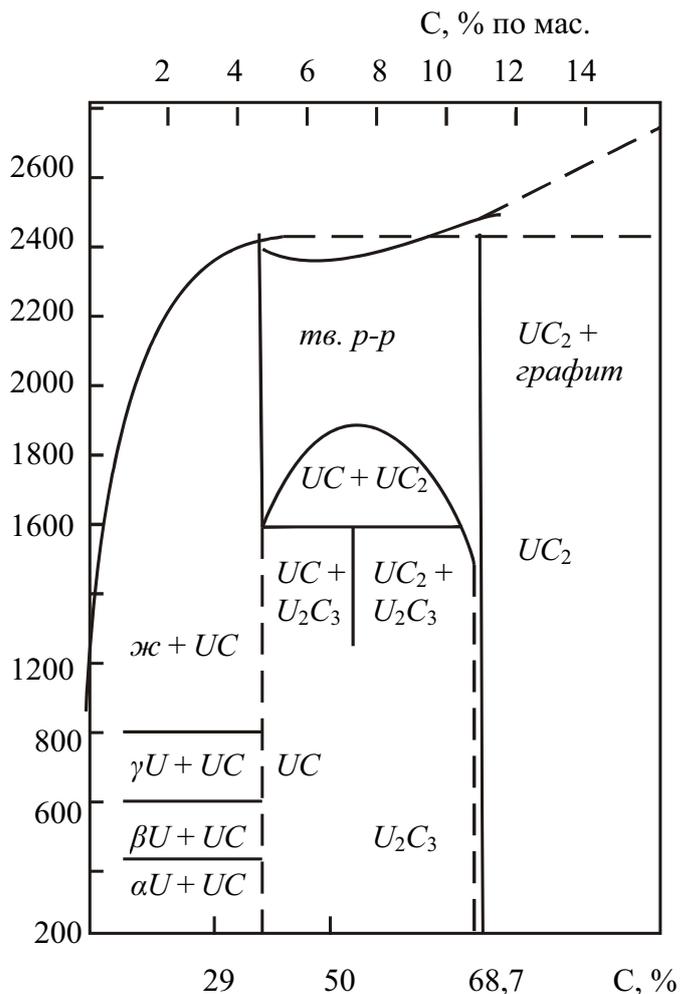


Рис. 1.7. Диаграмма U-C [9]

Установлено, что существует связь между диаграммами состояния и свойствами сплавов (правило Н.С. Курнакова). Согласно этому правилу, наблюдаются четыре основных закономерности изменения физико-механических свойств сплавов в зависимости от типа диаграмм состояния.

Согласно рис. 1.8, а, для механических смесей свойства сплавов изменяются по прямолинейному закону (аддитивно) и их значения находятся в интервале свойств чистых металлов, образующих смесь.

Если образуется непрерывный ряд твёрдых растворов (рис. 1.8, б), то изменение свойств сплавов происходит по криволинейному закону, причём в этом случае свойства сплава значительно превышают свойства чистых металлов. Если же при сплавлении компонентов образуются ограниченные твердые растворы, то в той области диаграммы, где образуются однофазные твёрдые растворы, свойства изменяются по криволинейной зависимости, а в области двухфазной – по прямой линии (аддитивно) (рис. 1.8, в). Если при сплавлении компонентов образуется химическое соединение, то на диаграмме изменению свойств состава

химического соединения соответствует перелом (сингулярная точка), т. е. максимальные или минимальные величины свойств (рис. 1.8, *з*). Описанную закономерность Н.С. Курнакова используют при разработке новых сплавов. Тем не менее, указанный закон выполняется лишь при равновесии фаз. При нарушении равновесия описанная закономерность не выполняется. Кроме бинарных сплавов, на практике используют и более сложные сплавы, в частности, тройные. Добавление третьего компонента многократно расширяет возможности получения сплавов с заданными свойствами.

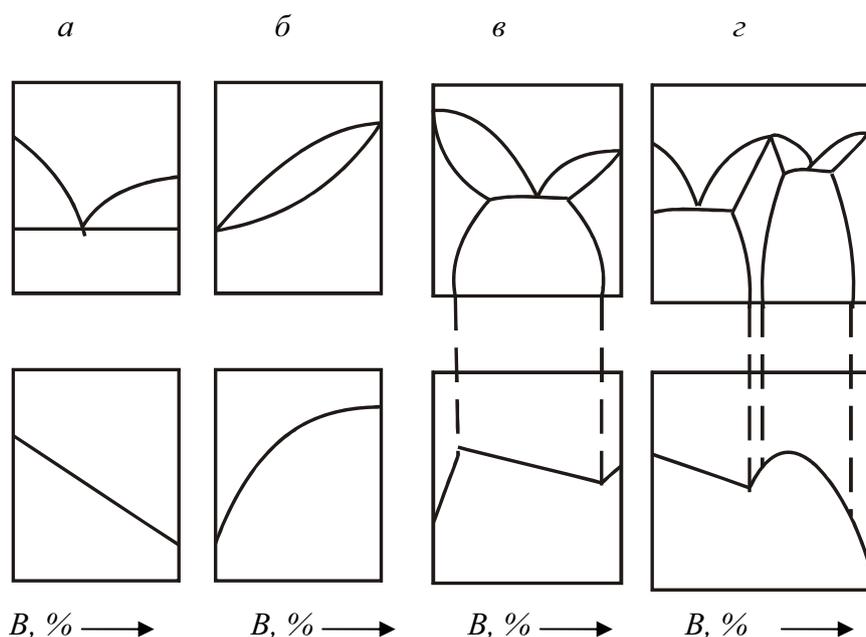


Рис. 1.8. Связь между типами диаграмм состояний и физико-химическими свойствами (закон Н.С. Курнакова)

Диаграммы состояния тройных сплавов строят на плоском треугольнике, называемом «концентрационным» [9]. Треугольник представляет собой сечение диаграммы состояния при одной определённой температуре. Если же рассматривать всю область температур, в которой происходит кристаллизация, то диаграмма состояния тройных систем представляет собой трёхгранную призму (рис. 1.10).

В вершинах концентрационного треугольника указывают компоненты (чистые металлы), образующие сплавы. Составы двойных сплавов откладывают на сторонах треугольника, составы тройных – внутри треугольника. Каждый из углов треугольника соответствует 100%-му соединению одного из трёх компонентов. Чем ближе к данному углу расположена рассматриваемая точка, тем выше содержание соответствующего элемента. На рис. 1.9 приведены точки диа-

граммы K и M . Обычно отсчёт точек ведут по часовой стрелке. Например, точке K соответствует 10 % компонента A , 20 % компонента B и 34 % компонента C . Для анализа фазовых превращений, протекающих в тройных сплавах, применяют как изотермические (горизонтальные) разрезы, так и политермические (вертикальные) разрезы полной диаграммы (призмы).

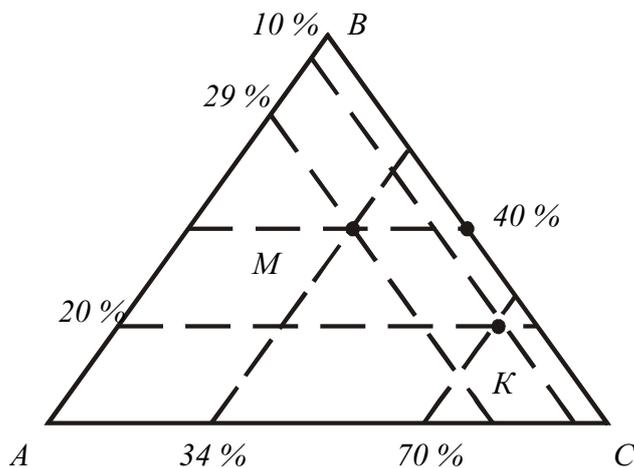


Рис. 1.9. Диаграмма тройной системы [8]

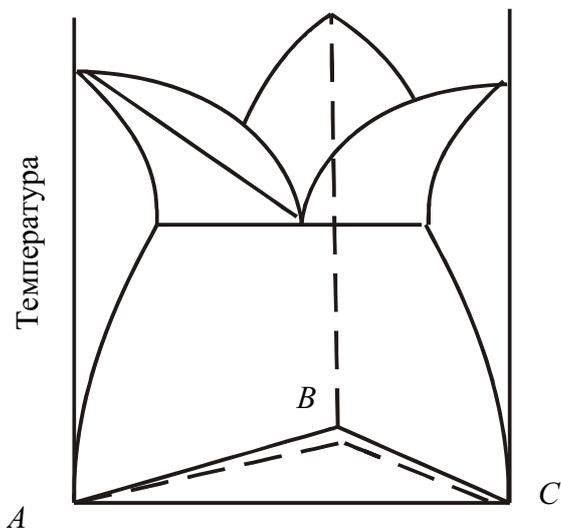


Рис. 1.10. Пространственная диаграмма состояний тройной системы ABC

Кроме того, что свойства материалов зависят от применяемых для их получения технологий (химических и металлургических), упомянутые свойства зависят также и от видов операций по изготовлению конкретных изделий (формовки, прессования, спекания, термической и механической обработки и т.п.). Поэтому процессы изготовления изделий тщательно изучают с целью выявления их влияния на конечный про-

дукт и его свойства. На этапе изготовления изделий возможно даже получение новых свойств материалов.

Так, например, природа некоторых исходных материалов такова, что они не могут образовывать химические соединения. Это могут быть металлы с сильно различающимися температурами плавления или вещества с сильно различающимися свойствами, такие как керамика и металл.

Современная техника позволяет в таких случаях получить желаемую систему с помощью порошковой металлургии. Для этого компоненты превращают в порошки, механически смешивают, прессуют и спекают. Порошковая металлургия особо эффективна при производстве ядерных топливных материалов.

2. ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ НА ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО

Ядерное топливо в работающем реакторе подвержено мощному воздействию различных видов излучений:

1. Нейтроны ($E_{\max} = 10$ МэВ, $E_{\text{ср}} = 2$ МэВ).
2. Осколки деления, аккумулирующие почти всю энергию деления (см. табл. 2.1.).

Таблица 2.1

Наиболее вероятные кинетические энергии осколков деления, МэВ [5]

Делящееся ядро	Энергия лёгкого осколка	Энергия тяжёлого осколка	Суммарная энергия
^{233}U	96	65,5	160,5
^{235}U	98,5	67,5	166,0
^{239}Pu	100	71,5	171,5

3. Мгновенные кванты деления, а также гамма-кванты, нейтроны и заряженные частицы, испускаемые возбужденными осколками деления. При этом средняя энергия возбуждения легкого осколка около 11 МэВ, тяжёлого – около 9 МэВ.

Наибольшее воздействие на топливные материалы оказывают первые два вида излучений, нейтроны и особенно осколки деления.

Быстрые нейтроны, плотность потока которых может достигать $10^{19} \text{ м}^{-2} \text{ с}^{-1}$, взаимодействует с ядрами вещества, передавая им свою энергию. Таким образом, возникают «ядра отдачи», энергия которых может значительно превышать энергию связи в кристаллической решётке, равную для многих веществ всего 25...50 эВ. Так, например, если начальная энергия нейтрона равна средней энергии спектра деления (2 МэВ), то значения максимальной энергии, передаваемой одним нейтроном, иллюстрируются табл. 2.2.

Таблица 2.2

Значения энергии, передаваемой быстрым нейтроном, МэВ

$E_{\max} = \frac{4mM}{(M+m)^2} E_n$	2,0	0,72	0,56	0,28	0,12	0,033
Ядро – мишень	H	Be	C	M	Cu	U

m – масса нейтрона, M – масса ядра, E_n – 2 МэВ.

Ядра отдачи, получив значительную энергию, смещаются из положения равновесия и могут сместить соседние атомы. Таким образом возникают так называемые точечные дефекты решетки, вакансии и междоузельные атомы. Число смещенных атомов на один первичный при начальной энергии нейтрона 1 МэВ равно:

- для железа – 390 штук,
- для бериллия – 440 штук,
- для углерода – 900 штук.

Группа смещенных атомов называется «кроудион» (англ. crowd – толпа). Ядра отдачи, в особенности первичные, обладая высокой энергией, могут попутно её рассеивать, взаимодействуя с электронной оболочкой соседних атомов и вызывая *ионизацию вещества*.

Воздействие осколков деления на вещество более разрушительно, чем нейтронов. Осколки деления, а иногда и ядра отдачи, имея высокую энергию (см. табл. 2.1 и 2.2), образуют в веществе целые области с нарушенной структурой или решёткой. Такие области с нарушенной структурой называются либо пиками смещения, либо тепловыми пиками [1].

Пик смещения – это область торможения быстрой тяжёлой частицы (осколка или ядра отдачи). Окружающее вещество разогревается до жидкого или даже до газообразного состояния. При охлаждении вещество восстанавливает свою решетку, но атомы уже занимают новые позиции. Температура разогрева в области пика смещения может достигать нескольких тысяч градусов, а время процесса менее 10^{-10} с.

Тепловой пик – это тоже область торможения быстрой тяжёлой частицы (осколка, ядра отдачи или смещенного атома). Энергии торможения здесь не хватает для расплавления вещества, поэтому протекает местная термообработка, например, фазовый переход.

Величина температуры разогрева в области пика связана со временем передачи энергии от налетающей частицы атомам решётки. Эта связь такова, что, чем меньше время энергообмена, тем выше температура в области пика. На рис. 2.1 показано распределение температуры в объеме металла в зависимости от времени передачи энергии.

Размеры пиков смещения и тепловых пиков примерно одинаковы. В поперечнике их размер равен 2...4 атомных расстояния в решетке, а длина – порядка длины пробега частицы (рис. 2.1, а).

Длина пробега осколков в различных веществах приведена в табл. 2.3.

В случае ядерного топлива пики смещения и тепловые пики, образуемые осколками деления, называют иногда общим термином «пик деления». Это связано с тем, что вследствие малого пробега осколков, пики локализируются вблизи точки, где произошло деление.

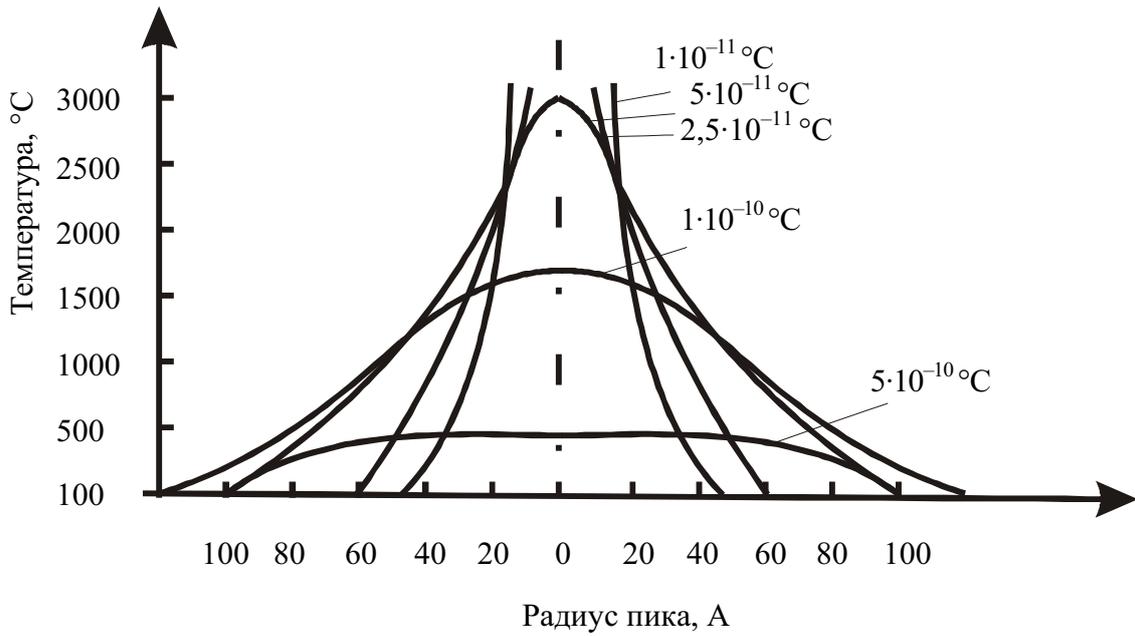


Рис. 2.1. Распределение температуры в металле в области пика смещения при взаимодействии с быстрым нейтроном

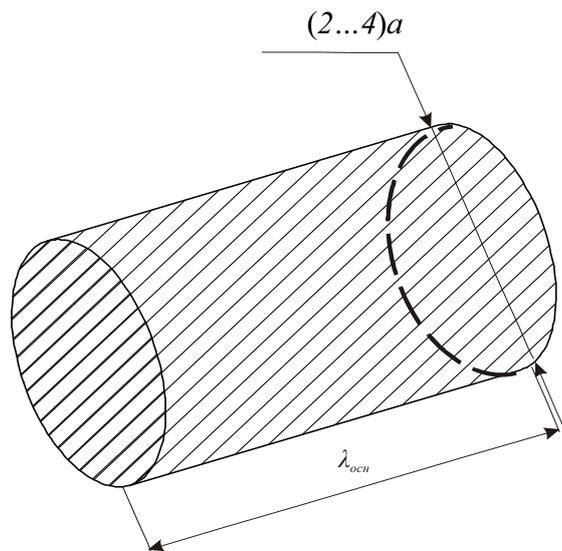


Рис. 2.1, а. Пик смещения

Таблица 2.3

Пробег осколков деления в различных материалах

Материал	Средний пробег	
	мг/см ²	мкм
Уран	12,6	6,8
Двуокись урана	10,0	9,4
Цирконий	5,8	9,1
Железо	5,2	6,7
Алюминий	3,7	13,7

Дефекты в веществах, обусловленные пиками смещения и тепловыми пиками, носят название *комплексных дефектов*. Основываясь на закономерностях образования точечных (см. выше) и комплексных дефектов, рассчитывается, в частности, ресурс работы конструкционных материалов в активной зоне реактора.

В целом облучение оказывает существенное действие на материалы, ухудшает их прочностные свойства (происходит радиационное охрупчивание), изменяются теплофизические свойства, активизируется коррозия (вследствие эффекта ионизации). В ядерном топливе облучение вызывает, в свою очередь, целый ряд специфических эффектов (радиационная ползучесть, радиационный рост и т. д.).

Дефекты, возникающие под действием облучения, не сохраняются в течение времени, а могут видоизменяться, а также взаимодействовать друг с другом. Так, во время облучения устанавливается динамическое равновесие между возникновением и исчезновением дефектов. В этом процессе большое значение имеет температура. Хорошо известен процесс *отжига дефектов* и восстановления первоначальной структуры вещества. Этим эффектом пользуются, нагревая вещество до температуры, превышающей ту, при которой происходило облучение ($T_{\text{нагр.}} > T_{\text{обл.}}$).

Кроме того, в облучаемом материале может происходить *аннигиляция дефектов*, которая протекает при взаимодействии вакансий и смещенных атомов. Такому явлению способствует как *диффузия дефектов*, так и сам процесс облучения.

Отметим, однако, что 100 % восстановления свойств облучаемого материала добиться невозможно, и дефекты по мере увеличения времени облучения накапливаются.

3. УРАН

Природный металлический уран – это смесь радиоактивных изотопов:

$$^{238}\text{U} - 99,282 \%$$

$$^{235}\text{U} - 0,712 \%$$

$$^{234}\text{U} - 0,006 \%$$

Кроме того, имеется целый ряд искусственных изотопов урана, являющихся продуктами ядерных превращений: $^{227-233}\text{U}$, ^{236}U , ^{237}U , ^{239}U , ^{240}U . В качестве делящихся нуклидов используют два: ^{233}U , ^{235}U . Ядерные характеристики этих изотопов приведены в табл. 3.1 и 3.2.

Таблица 3.1

Ядерные характеристики некоторых изотопов урана делящихся на тепловых нейтронах

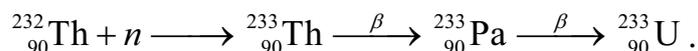
Нуклид	$\sigma_{\text{и}}$, барн	$\sigma_{\text{г}}$, барн	$a = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$	ν	η
^{235}U	383	382	0,174	2,54	2,08
^{233}U	578	525	0,10	2,62	2,31
Природный уран	7,68	4,18	–	–	1,34

Таблица 3.2

Характеристики некоторых радиоактивных изотопов урана

Нуклид	Характер излучения	$T_{1/2}$, лет	Конечный продукт распада	Энергия распада $E_{\rho} = E_{\alpha} \left(1 + \frac{m_{\alpha}}{M} \right)$, МэВ
^{235}U	α	$8,8 \cdot 10^8$	^{207}Pb	–
^{233}U	α	$1,6 \cdot 10^5$	^{225}Ra	–
^{238}U	α	$4,5 \cdot 10^9$	^{206}Pb	4,20

Искусственной изотоп ^{233}U нарабатывается в реакторе из природного изотопа ^{232}Th по реакции:



Природный уран может служить основой для изготовления ядерного топлива для «тепловых» реакторов или использоваться как топливное сырьё в «быстрых» реакторах.

Слабообогащённый (по изотопу ^{235}U) **уран** может выполнять двойную роль топлива и сырья одновременно в двухцелевых реакторах на тепловых нейтронах.

Сильнообогащённый уран почти исключительно используется как топливо для быстрых реакторов.

Независимо от изотопного состава и обогащения структура металлического урана имеет три модификации: α , β и γ [1]. Фаза αU кристаллизуется в орторомбическую систему, очень редкую для металлов, и является стабильной до $663\text{ }^\circ\text{C}$ (рис. 3.1). Решётку αU можно представить ещё как гофрированные слои атомо. Так как связь атомов в слоях (ковалентная) сильнее, чем связь между слоями, то с повышением температуры «гофры» сглаживаются и αU переходит в βU с тетрагональной (примитивной) структурой, существующей в области температур $663\dots 764\text{ }^\circ\text{C}$ (рис. 3.2). Фаза γU , представляющая кубическую гранецентрированную структуру, стабильна от $764\text{ }^\circ\text{C}$ до точки плавления. Температура плавления урана $T_{\text{пл.}} = 1130 \pm 1\text{ }^\circ\text{C}$. Вследствие сложной структуры αU характеризуется сильной анизотропией физических свойств (табл. 3.3, рис. 3.3). Особенно это относится к коэффициенту линейного расширения и модулю Юнга.

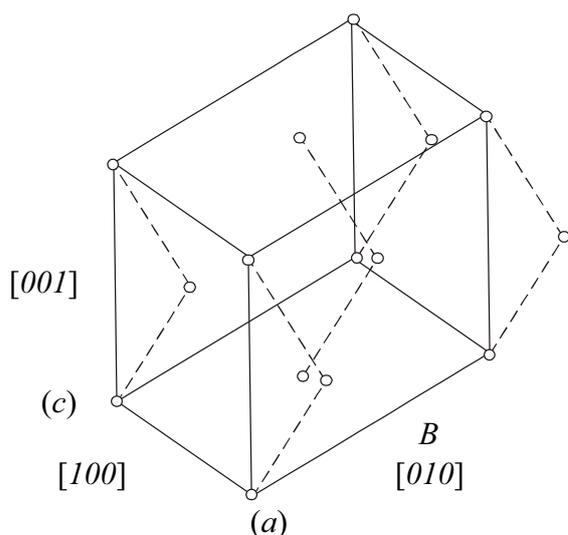


Рис. 3.1. Структура α -урана

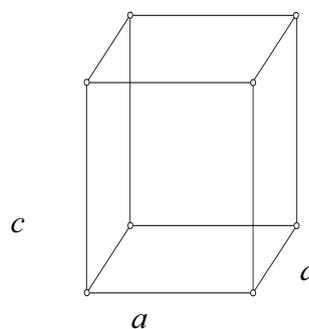


Рис. 3.2. Структура β -урана

Таблица 3.3

Физические свойства урана [9]

1. Плотность		19130 кг/м ³	
2. Температура плавления		1130 ± 1 °С	
3. Теплопроводность:	а) при 350 К	25,95 Вт/(м·К)	
	б) при 670 К	32,65 Вт/(м·К)	
4. Коэффициенты теплового расширения между 25 и 125 °С:			
	а) в направлении /100/	21,17·10 ⁻⁶ °С ⁻¹	
	б) в направлении /010/	-1,5·10 ⁻⁶ °С ⁻¹	
	в) в направлении /001/	23,2·10 ⁻⁶ °С ⁻¹	
5. Коэффициент объёмного расширения		45,8·10 ⁻⁶ °С ⁻¹	
6. Кристаллическая структура:			
α U-орторомбическая	a = 2,852 Å	b = 5,865 Å	c = 4,955 Å
β U-тетрагональная	a = 10,759 Å	c = 5,656 Å	
γ U-ГЦК	a = 3,524 Å		

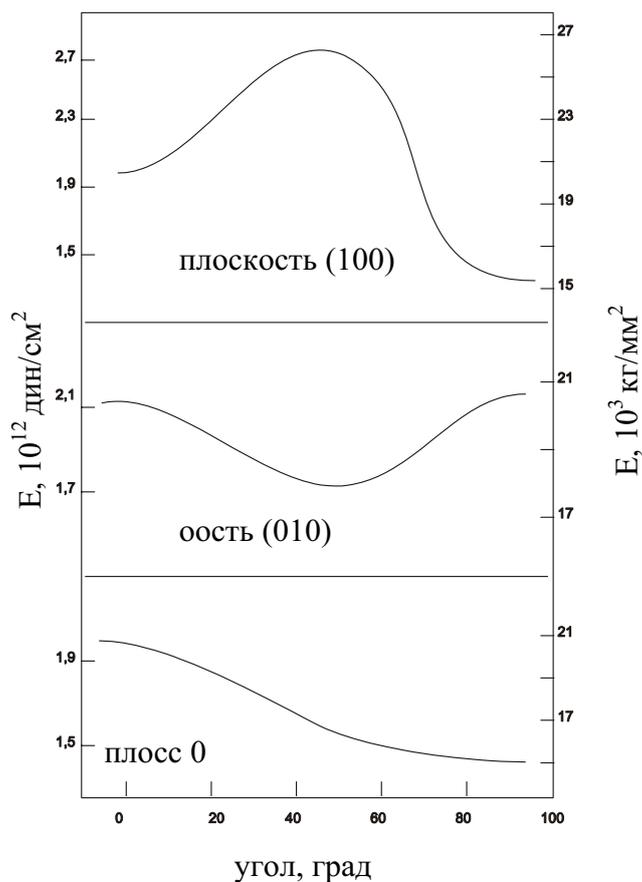


Рис. 3.3. Зависимость модуля Юнга урана от кристаллографического направления при 25 °С

Если теплофизические свойства урана определяются его кристаллической структурой, то механические свойства образца почти целиком определяются способом изготовления. Так, структура плавленого слитка неоднородна и зёрна α U имеют некоторую преимущественную ориентацию (текстуру). ТВЭЛы из текстурированного урана подвержены размерной нестабильности при эксплуатации в реакторе. Медленно охлаждённый из γ -фазы уран имеет крупные (0,5...3,0 мм) зёрна. При повышении скорости охлаждения урана из γ -фазы в α -фазу уран закаливается. Если зёрна мельче, прочностные свойства повышаются [1,2].

Механические свойства урана очень чувствительны также к примесям. Этим широко пользуются, улучшая свойства урана путём создания сплавов (о сплавах урана смотри ниже, п.4).

Металлический уран химически активен и во многих отношениях сравним с магнием. При повышенной температуре он реагирует с азотом. С водородом уран образует гидрид UH_3 , который разлагается при 350 °С.

Более устойчивый уран в атмосфере CO_2 , что позволило применить этот газ в качестве теплоносителя в газографитовых магноксowych реакторах, где топливом служит природный металлический уран (Великобритания, Франция).

Уран взаимодействует с водой с образованием гидроксида $U(OH)_2$, из которого получается UO_2 с выделением водорода. В кипящей воде (100 °С) скорость коррозии достигает 2,7 мг/(см²·ч). Водяной пар реагирует с ураном при температуре 150 °С и выше, при этом скорость коррозии катастрофически растёт с температурой и при 400 °С достигает 210...230 г/(см²·ч). Образующиеся водород и гидрид урана вызывают его распухание.

Ряд металлов (Zr, Mo, Nb, Cr, Ti) образуют с ураном (в γ -фазе) сплавы. С жидкометаллическими теплоносителями (Na, K, Li) уран не взаимодействует.

В связи с тем, что в качестве оболочечных материалов часто используют алюминий и нержавеющую сталь, следует отметить, что с этими веществами уран плохо совместим. Так, при контакте с алюминием при 300 °С за 2000 часов возникает слой интерметаллида UAl_3 , толщиной 0,025 мм. В случае нержавеющей стали (IXI8H10T) слой интерметаллида толщиной 0,03...0,04 мм образуется за 1 год эксплуатации при 500 °С [1]. Для предотвращения взаимодействия топлива (уран) и оболочки (Al, нерж.сталь) применяют прослойку из Ni или легкоплавкого Na.

Коррозионное поведение урана в некоторых теплоносителях дано в табл. 3.4.

Таблица 3.4

Скорость коррозии урана $10^{-2}, \frac{\text{кг}}{\text{м}^2 \cdot \text{ч}}$ [9].

Температура, °С	Воздух	Вода	Жидкий натрий
50	–	0,066	–
70	–	0,45	–
90	–	1,00	–
100	0,56	2,7	–
183		139,0	–
200	10,90	–	1,11
300	21,80	–	–
400	118,00	–	–
500	157,00	–	1,39
600	–	–	4,3

Скорость коррозии облученного урана намного больше, чем необлученного. Порошок урана на воздухе обладает сильной пирофорностью и повышенной токсичностью. Уран поражает, главным образом, почки. Концентрация урана, считающаяся опасной для организма, равна $0,05 \text{ мг/м}^3$. Альфа-радиоактивность урана при его проникновении в организм представляет собой дополнительную токсичность. Максимально допустимое количество в воздухе соответствует активности $1 \cdot 10^{-8} \dots 3 \cdot 10^{-8} \text{ мкКи/л}$. Существенным недостатком металлического урана является то, что в чистом виде, как топливо, для ядерных реакторов он неприменим. При облучении в активной зоне реактора образец металлического урана быстро теряет свои, и так не очень высокие, коррозионные механические (прочностные) свойства, изменяются его форморазмеры и даже целостность. Причиной этому служит целый ряд специфических эффектов и, в частности:

- твёрдое распухание,
- термоциклирование,
- газовое распухание,
- радиационный рост,
- радиационная ползучесть или сверхползучесть.

Твёрдое распухание урана происходит вследствие того, что в процессе деления одного ядра (атома) образуется более 2 атомов (осколков деления). Но, так как размеры атомов в природе примерно одинаковы, то процесс сопровождается увеличением объёма вещества (топлива). В «чистом» виде твёрдое распухание наблюдается при сравнительно низких температурах топлива, когда поведение «газовых» осколков не отличается от поведения «твёрдых». Хотя надо иметь ввиду и влияние других процессов, не связанных с накоплением осколков.

Таким образом, твёрдое распухание урана обусловлено простым накоплением осколков.

В первом приближении изменение плотности топлива ($\Delta\rho$), при твердом распухании является линейной функцией выгорания (В):

$$\Delta\rho \% = 15 В, \text{ где } [В] = \text{г/см}^3.$$

Отклонение от коэффициента пропорциональности 15 имеет место лишь в области малых выгораний и до значений $В = 1 \text{ г/см}^3$ не зависит от вида топлива, типа решетки, способа изготовлений ТВЭЛа. При значениях В выше 1 г/см^3 появляются новые эффекты, когда учесть величину твёрдого распухания уже сложно. В этих условиях пользуются еще одним упрощенным способом оценки изменения плотности урана. По выходу и молярному объёму каждого элемента–осколка подсчитывают общее изменение плотности урана на 1 % выгорания. Такой упрощенный анализ даёт результат изменения объёма урана:

$$3 \% \Delta V \text{ на } 1 \% \text{ выгорания.}$$

Термоциклирование или циклическая термообработка (ц.т.о.), означающие периодический разогрев и охлаждение, является наиболее типичным процессом, которому подвержено ядерное топливо (ТВЭЛ) в реакторе. Чем большее число циклов разогрева и охлаждения выдерживает топливо (ТВЭЛ), тем выше маневренность атомного энергоблока. Ц.т.о. в α -фазе приводит к изменению объёма (циклированному росту) только текстурированного урана. Орторомбические кристаллы вытягиваются в $[100]$ или α -направлении и сокращаются в $[001]$ или c -направлении. Если зёрна α -урана ориентированы случайно, то эффект отсутствует. Однако при одновременном действии облучения и ц.т.о. прямого соответствия между ростом и ц.т.о. не наблюдается. Ускорение роста при ц.т.о. происходит также при наличии напряжений в уране (сжимающих и растягивающих), рис. 3.4.

Наиболее резкие формоизменения, образование складок и даже трещин на поверхности наблюдается при циклических переходах урана через точки аллотропических превращений: $\alpha \leftrightarrow \beta$ и $\beta \leftrightarrow \gamma$. Могут также образовываться поры на границах зёрен. Эти явления обусловлены разницей в объёмном расширении α - и β -фаз урана, равной 1 %. α -фаза менее прочна, чем β -фаза, вследствие чего практически деформируется как при нагревании, так и охлаждении, что приводит к образованию складок и пор.

Испытания показали, что ц.т.о. при облучении в реакторе приводит к сильному изменению формы образца, изменение же объёма составляет 2...5 %.

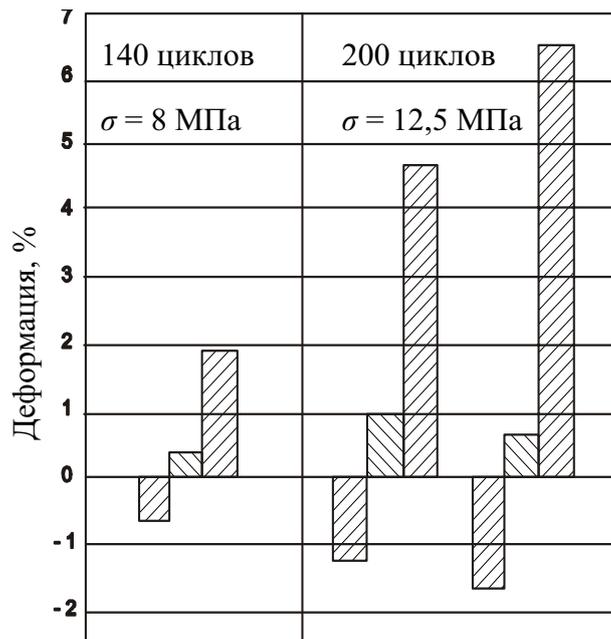


Рис. 3.4. Неправленный рост текстурированного [010] урана при ц.т.о. с растягивающим напряжением и без него [5]

Радиационный рост урана – это изменение форморазмеров образца из чистого металлического урана при облучении в реакторе. Явление радиационного роста наблюдается при температурах ниже 400 °С, а наибольшие показатели имеет при 200 °С.

Изменение размеров, обнаруженные экспериментально, могут быть проанализированы с помощью соотношения [9]:

$$L = L_{\infty} \exp(Gf),$$

где L_{∞} – начальная длина;

L – длина образца после того, как часть f атомов расщепится;

G – коэффициент радиационного роста или постоянная удлинения:

$$G = \frac{\ln \frac{L}{L_0}}{f},$$

для малых деформаций:

$$G = \frac{\Delta L}{L_0 f}.$$

Отсюда, коэффициент радиационного роста G – есть макроскопическая мера атомного переноса на микроскопическом уровне вследствие актов деления.

Максимальный рост происходит в кристаллографическом направлении [010], эквивалентное изменение идёт по направлению [100],

а в направлении [001] не происходит никаких размерных изменений. Так, например, при степени выгорания 0,2 % (1850 МВт·сут/т), удлинение материала в направлении [010] равно 100 %.

Таблица 3.5

Коэффициенты прироста размеров облученного урана при 100 °С и глубины выгорания 0,1 %

Кристаллографические направления	Коэффициент удлинения	Коэффициент теплового расширения, $10^{-6}/^{\circ}\text{C}$		
		25...125 °С	25...525 °С	25...650 °С
[100]	-420 ± 20	21,7	26,5	36,7
[010]	$+420 \pm 20$	-1,5	-2,4	-9,3
[001]	0 ± 20	23,2	23,9	34,2

Из сказанного вытекает, что для уменьшения явлений радиационного роста (впрочем, как и роста при ц.т.о.), необходимо выбирать такие способы обработки (производства) ТВЭЛ из урана, которые избегают текстурирования, способствуют измельчению зёрен и их произвольной ориентации (см. рис. 3.5).

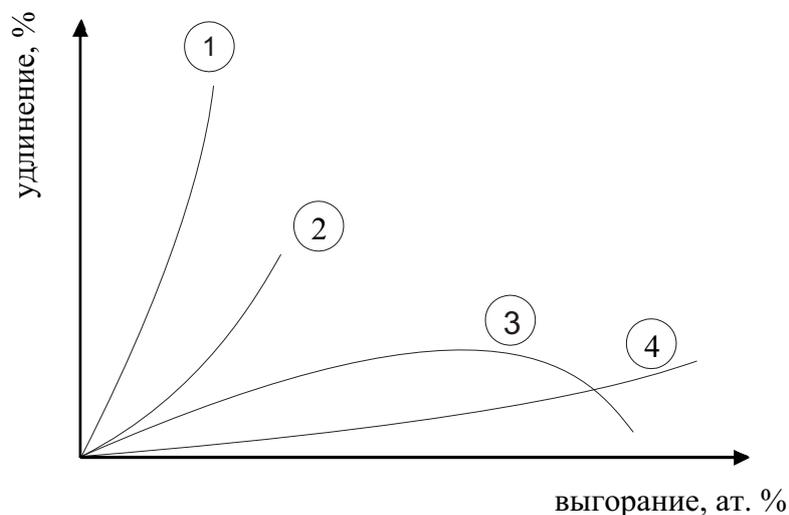


Рис. 3.5. Влияние технологии изготовления образца урана на его формоизменение при облучении в реакторе [1]:

1 – прокатка при 300 °С; 2 – то же при 600 °С; 3 – то же при 300 °С и закалкой из γ -фазы; 4 – то же при 300 °С и закалкой из β -фазы

Причины радиационного роста урана могут быть объяснены с теоретических позиций, основывающихся на существовании пиков деления и различных механизмов процесса [1].

1. Термомеханическая теория объясняет радиационный рост урана возникновением термонапряжений в веществе, окружающем пик деления, и анизотропией пластических свойств α -урана. Сжимающие термонапряжения создают условия для перехода атомов из одного слоя в другой, что и приводит к росту.

Таким образом, механизм роста по термомеханической теории таков:
пик деления \rightarrow сжатие вследствие термонапряжений \rightarrow переход атомов вследствие анизотропии пластичности.

2. Теория Котрелла является развитием термомеханической теории и объясняет радиационный рост анизотропией коэффициента расширения α -урана. Поскольку объём пика деления не может увеличиться, так как его окружает холодные слои кристалла, то возникает локальная пластическая деформация и переход атомов. Формула механизма по Котреллу такова:

пик деления \rightarrow пластическая деформация \rightarrow переход атомов вследствие анизотропии коэффициента расширения кристалла.

3. Теория коррелятивных ударов основана на представлении о различном расположении (различной плотности) атомов по осям решетки. В связи с этим ударные процессы происходят коррелятивно, т. е. в зависимости от энергии и направления удара. Наибольшего числа ударов и переходов следует ожидать в направлении, где наибольшая плотность атомов. Механизм процесса, вытекающий из теории коррелятивных ударов, таков:

удар \rightarrow различная плотность атомов \rightarrow коррелятивный переход.

4. Диффузионная теория радиационного роста основана на анизотропии коэффициента диффузии вакансий и смещенных атомов. Новые слои атомов возникают в направлении, где наибольший коэффициент диффузии. Поскольку вакансии вычитаются и в другом направлении размеры уменьшаются, то механизм процесса таков:

пик деления \rightarrow анизотропия коэффициента диффузии \rightarrow переход с образованием нового слоя атомов.

5. Теория Бакли дает наилучшее согласие с опытом. Согласно Бакли, радиационный рост обусловлен образованием в поле упругих напряжений, создаваемых пиками деления, далеко отстоящих друг от друга групп вакансий и смещенных атомов. Эти группы дефектов формируются вследствие их диффузии на разных плоскостях кристалла. Исходя отсюда, механизм радиационного роста по Бакли таков:

Пик деления \rightarrow напряжения в металле \rightarrow диффузия дефектов.

Внешними признаками радиационного роста образца являются образование шероховатости (эффект апельсиновой корки), а также (при

высоких выгораниях) образование складок (эффект жёванности) на первоначально гладкой поверхности.

Радиационная ползучесть урана в условиях облучения в реакторе также, как и ц.т.о. и р.р. приводит к изменению форморазмеров образца. Существо явления можно понять, рассмотрев вначале явление обычной термической ползучести. Как известно, она возникает под действием трёх факторов:

- механического напряжения в образце,
- повышенной температуры,
- времени эксплуатации.

Для большинства материалов, как кристаллических структур, на шкале деформаций ε можно выделить три области, зависящие от величин внешних напряжений σ (рис. 3.6).

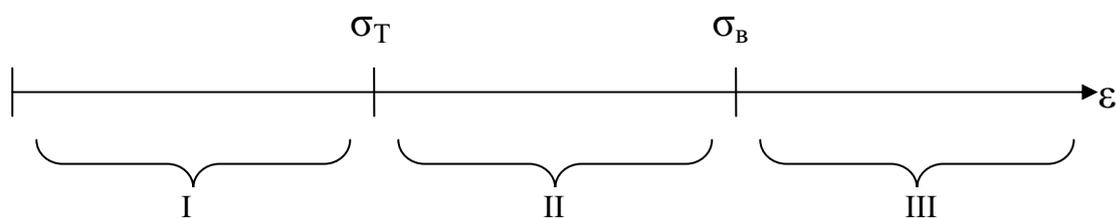


Рис. 3.6. Шкала деформаций для кристаллической структуры

Это область упругих деформаций I, имеющая верхней границей σ_T – предел текучести; область упруго-пластических деформаций II с верхней границей σ_B – пределом прочности; область пластических деформаций III, которая существует в области напряжений, превышающих (σ_B) предел прочности материала. Работа металлических изделий допускается в упругой и частично в упругопластичной областях. Для пластичного материала $\sigma_T \neq \sigma_B$. Для хрупкого материала $\sigma_T = \sigma_B$. Крайняя степень пластичной деформации – это разрушение образца и таким образом снятие напряжения.

Прочностные свойства металлов может характеризовать также кривая «напряжение – деформация» (рис. 3.7).

Следуя рис. 3.7, в области I происходит скольжение атомных слоев только в одной системе или только одноимённых граней кристалла (область упругих деформаций). В области II скольжение атомных слоев происходит во вторичных системах или других гранях и одновременно идёт накопление узлов дислокаций¹. Это упругопластическая область. В области III в результате действия высоких напряжений происходит

¹ См. в справочнике термин «дислокация».

накопление узлов дислокаций с образованием трещин. Происходит частичное снятие напряжений, кривая выходит на «насыщение».

Действие температурного и временного факторов в явлении ползучести взаимосвязано и может быть описано рис. 3.8.

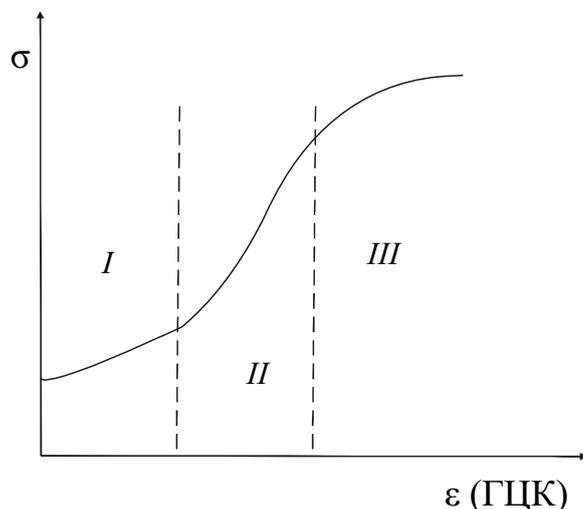


Рис. 3.7. Кривая «напряжение – деформация» для кристаллической структуры типа гранецентрированный куб

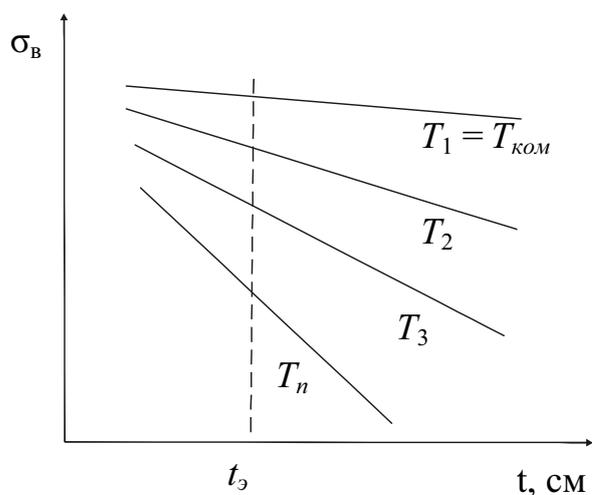
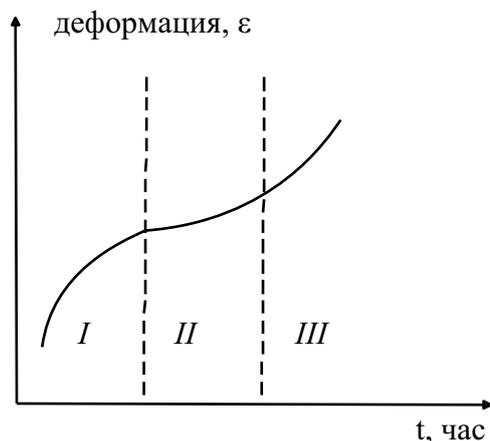


Рис. 3.8. Изменение предела прочности металлов зависимости от температуры и времени работы ($T_1 < T_2 < T_3 < T_4$)

Из рисунка видно, что чем выше температура, тем меньше величина разрушающего напряжения при одном и том же времени эксплуатации (t_3). При комнатной температуре фактором времени можно пренебречь.

Количественно ползучесть описывается её пределом (предел ползучести), численно равным напряжению, вызывающему заданную величину деформации (например 0,1 %) при данной температуре за определенное время работы (например 100 часов) и обозначается как $\sigma_{0,1/100}$. Термиче-

ская ползучесть возникает, как правило, при повышенных температурах, когда происходят изменения в структуре металлов. Для большинства из них это температуры порядка $0,3 \dots 0,4 T$ плавления. Кроме того, при высоких температурах облегчается скольжение дислокаций вследствие интенсификации процессов диффузии. В связи с этим индивидуальной характеристикой материала может служить кривая ползучести, рис. 3.9.



*Рис. 3.9. Кривая ползучести:
I – неустановившаяся ползучесть,
II – установившаяся ползучесть, III – ускоренная ползучесть*

Как показывает опыт, облучение весьма значительно изменяет пластичность и механические свойства поликристаллического урана. При больших выгораниях происходит резкое уменьшение пластичности ($\sigma_T \leftrightarrow \sigma_B$) и снижение прочности (т. е. уменьшение σ_B), см. рис. 3.10.

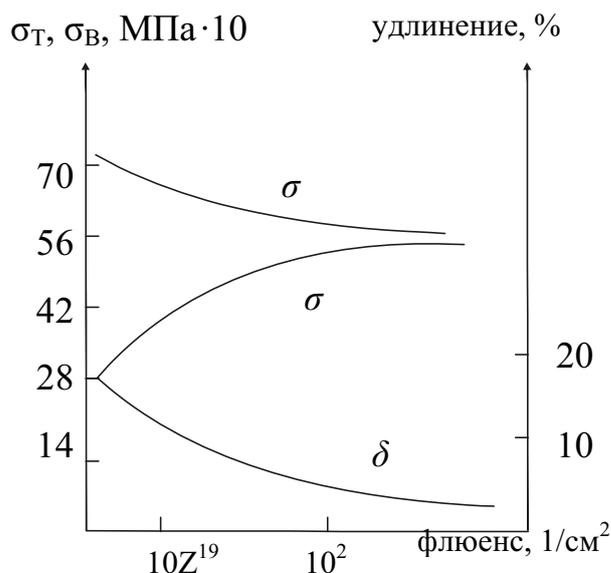


Рис. 3.10. Изменение предела текучести (σ_m), прочности (σ_B) и относительного удлинения (δ) поликристаллического урана при облучении [2]

Если приложить к урановым образцам внешнее напряжение (σ), меньшее предела текучести (σ_T), то форма образцов в процессе облучения (т. е. в условиях дрейфа величин σ_T и σ_B) будет меняться. Это явление получило название **радиационной ползучести**. Таким образом, радиационная ползучесть аналогична термической ползучести, однако имеет абсолютную величину в 50...100 раз большую. Если не принимать специальных мер по поддержанию внешнего напряжения на безопасном уровне, то под действием ползучести образец будет стремиться изменить свою форму, чтобы уменьшить возрастающее напряжение. Поскольку радиационный рост урана может также давать вклад в суммарную деформацию образцов, это учитывают при расчётах результирующей скорости ползучести. Так, в модели Робертса и Котрелла предполагается, что в некоторых зёрнах поликристаллического образца сумма внешнего напряжения (σ) и внутренних напряжений, возникающих вследствие различной ориентации растущих зёрен, может превысить предел текучести (σ_T), что приведёт к местной пластической деформации. Результирующая скорость радиационной ползучести (ε) окажется равной:

$$\varepsilon \sim \left(\frac{\sigma}{\sigma_T} \right) G,$$

где G – коэффициент радиационного роста поликристалла. Несмотря на простоту, формула даёт разумное совпадение с экспериментом [2].

Газовое распухание урана (свеллинг) вследствие облучения наблюдается при температурах 350...500 °С и сопровождается значительным увеличением объёма материала (см. рис. 3.11). Центральную роль здесь играют газовые осколки деления Кг, Хе или так называемые благородные радиоактивные газы (БРГ).

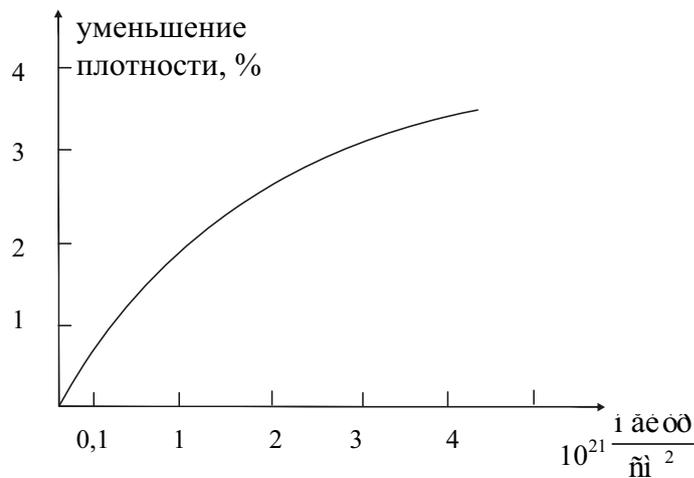


Рис. 3.11. Изменение объёма урана при газовом распухании [2]

Например, в 1 см³ урана при 1 % выгорания образуется 4,73 см³ инертного газа, находящегося при нормальных условиях. Если изменить условия, то картина меняется: а) при $t = 575$ °С и изменении выгорания от 0,2 до 0,5 % прирост объёма образца составит соответственно 1 и 7 %; б) при температурах $t = 700...800$ °С и изменении выгорания от 0,27 до 0,30 % увеличение объёма урана, вследствие газового распухания, составляет 11,5 и 84,5 % соответственно. Таким образом, газовое распухание является наиболее опасным с точки зрения радиационной стойкости урана по сравнению с ТР, РР, ц.т.о.

На рис. 3.12 показано, что существует довольно узкий интервал температур, в котором распухание α -урана происходит особенно энергично.

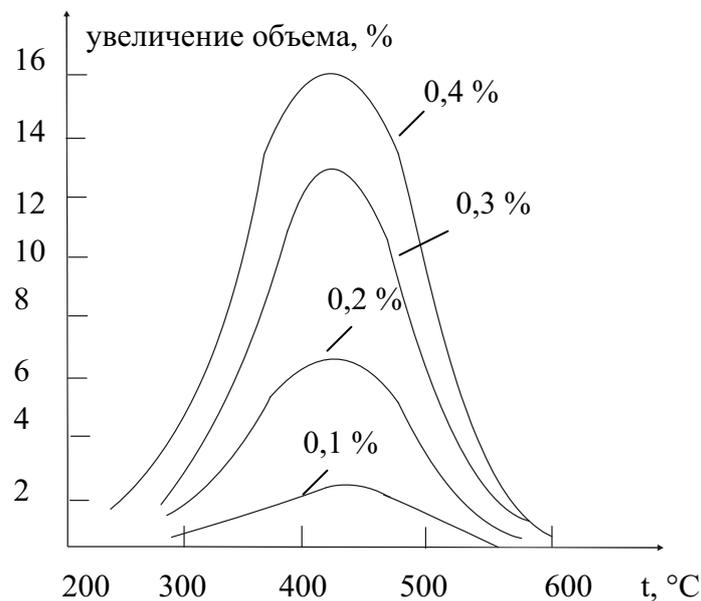


Рис. 3.12. Температурная зависимость газового распухания урана при различных выгораниях [2]

Количественно распухание урана при облучении характеризуется параметром распухания:

$$S = \frac{\Delta V/V}{\Delta m/m},$$

где $\Delta V/V$ — увеличение объёма; $\Delta m/m$ — выгорание. Зависимость распухания урана от выгорания показана на рис. 3.13.

Атомы криптона и ксенона, образующиеся при делении урана, практически нерастворимы в α -уране. Обладая достаточной подвижностью в решетке (коэффициент диффузии $D = 10^{-13}$ см²/с при $t = 600$ °С), газовые атомы могут относительно легко передвигаться и накапливаться в порах. С увеличением концентрации (выгорания) атомы газа встречаются друг

с другом, образуя комплексы. Учитывая отсутствие химической связи между атомами, такие комплексы могут быть стабильными лишь при дополнительной адсорбции вакансии. Некоторые авторы считают, что зародышем является комбинация из двух атомов газа с одной вакансией.

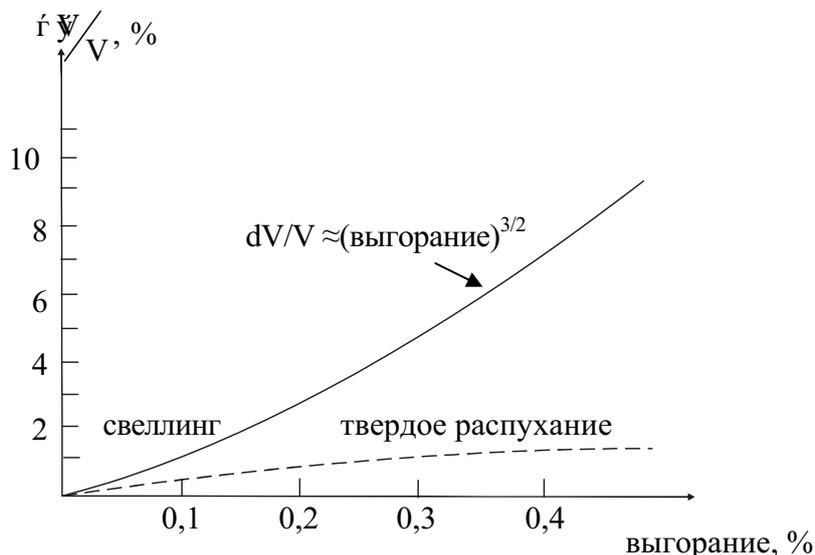


Рис. 3.13. Зависимость распухания урана от выгорания [10]

Такие стабильные зародыши начинают далее расти, поглощая вновь образующиеся газовые атомы и вакансии. В свою очередь, вакансии создаются в большом количестве вследствие соударения осколков деления с атомами среды. Пока концентрация образовавшихся зародышей невелика, будут образовываться новые центры, но затем вероятность адсорбции вновь образующихся осколков имеющимися центрами конденсации будет преобладать над вероятностью образования новых центров.

Таким образом, возникает почти стабильное распределение пузырьков, которое характеризуется их размером (радиус r_0) и средним расстоянием ($2r_0$). Они связаны зависимостью:

$$r_1^\sigma = \frac{3Dr_0^2 a^2}{2Gz},$$

где G – скорость роста атомной концентрации газовых атомов; $a = 3 \cdot 10^{-8}$ см – среднее межатомное расстояние в уране; D – коэффициент диффузии газовых атомов (10^{-13} см²/с); z – числовой коэффициент (~ 4), связанный с геометрией решетки урана.

Рассмотрим условие равновесия пузырька, содержащего газ под давлением:

$$P_2 = \frac{3nKT}{4\pi R^3},$$

где T – температура; R – радиус пузырька. Давление газа в пузырьке уравнивается [2, 9]:

$$P_z = P_L + \frac{1}{3} \sum_i \sigma_{ij},$$

где $P_L = \frac{2\gamma}{R}$ – давление Лапласа (капиллярное давление), определяющееся энергией поверхностного натяжения материала, γ (для урана $\gamma = 1000$ эрг/см²); σ_{ij} – компонент тензора упругих напряжений вокруг пузырька, препятствующих его дальнейшему расширению.

За счёт диффузионного потока вакансий к пузырьку его объём увеличивается, и если бы количество газа в пузырьке оставалось неизменным, давление в нём падало, решетка вокруг пузырька переходила бы в растянутое состояние ($\sum \sigma_{ij} < 0$) и пузырёк становился бы центром притяжения растворённых атомов инертного газа. Наоборот, если рассмотреть только поток атомов газа ($R = \text{const}$), то можно показать, что решетка вокруг пузырька сжималась бы, и это стимулировало бы появление потока вакансий. В реальном случае к пузырьку подходят как вакансии, так и атомы растворённого газа, в результате чего пузырёк подрастает, сохраняя в то же время внутреннее давление. Предполагая, что концентрация газа (отношение числа атомов газа к числу вакансий), а значит, давление P_z остаётся неизменным в процессе облучения, то при росте среднего радиуса внутреннее напряжение вокруг пузырька растёт. Когда сдвиговая компонента этого напряжения превысит критическое напряжение разрыва межатомных связей, около пузырьков зародятся микротрещины, дающие начало хрупкому разрушению материала. Именно такая картина возможна потому, что среднее расстояние между пузырьками меньше, чем среднее расстояние между дислокациями, в результате чего вероятность снятия напряжений путем пластической деформации мала.

Развитая система трещин, в свою очередь, позволяет газу вытекать из маленьких пор (где лапласовское давление велико) в крупные с последующим их ростом. Так может возникнуть *катастрофическое распухание*.

Зависимость выхода газовых продуктов деления (г.п.д.) от распухания при высоком выгорании металлического топлива показана на рис. 3.14.

Из рис. 3.14 видно, что когда распухание топлива превышает 20 %, выход газовых продуктов становится очень высоким. Причиной этого является то, что в этих условиях газовые пузырьки на границах зёрен соединяются, что и облегчает выход из топлива газовых продуктов. С дальнейшим ростом распухания скорость выхода г.п.д. уменьшается. Это открытие явилось основой для создания так называемого управляемого ТВЭЛа с урано-

вым топливом для реактора EBR-II. В таком ТВЭЛе между топливом и оболочкой находится натрий, который обеспечивает хороший тепловой контакт. Толщина его слоя достаточна, чтобы позволить топливу распухать на величину, большую 20 %. Натрий при этом вытесняется в специальную полость (газосборник) объемом 5...20 % внутритвэльного пространства.

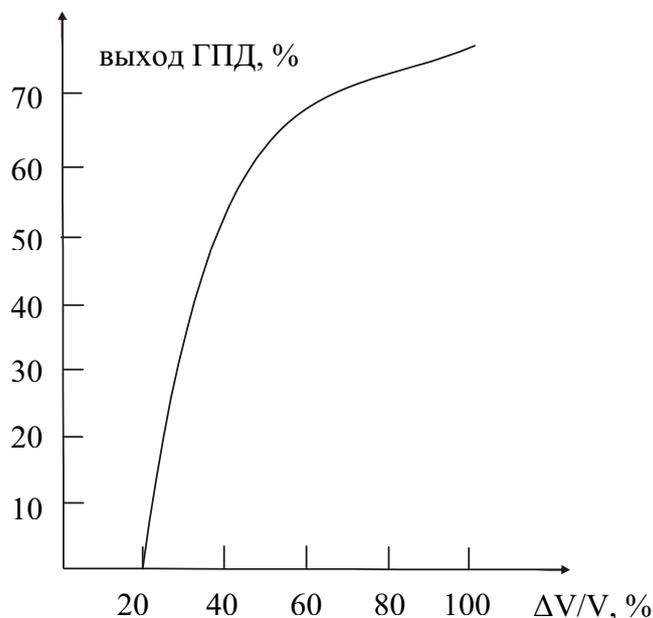


Рис. 3.14. Зависимость выхода г.п.д. от распухания металлического топлива при высоких выгораниях [10]

Меры противодействия газовому распуханию урана:

1. Использование негерметичных ТВЭЛ (без оболочки). В этом случае нужна система удаления продуктов деления из теплоносителя, что практически затруднено.
2. Создание герметичных ТВЭЛ:
 - а) герметичные ТВЭЛы с непрерывным отводом г.п.д. в отдельную систему газоудаления. Этот метод реализован для неметаллических ТВЭЛ реактора «Dragon» (Англия);
 - б) герметичные ТВЭЛы с локализацией г.п.д. внутри оболочки в специальной полости. Такие ТВЭЛы применяются в реакторе EBR-II (см. выше);
 - в) «полугерметичные» ТВЭЛы, применяемые в реакторах на быстрых нейтронах. В этом случае требуется совместимость топлива с теплоносителем, возникает проблема очистки теплоносителя. Положительный момент состоит в том, что оболочка ТВЭЛ разгружена от внешнего и внутреннего давления.
3. Легирование урана Mo, Nb, Zr с целью повышения прочностных свойств и снижения тем самым распухания. Так, например, сплав

U + 10 % Mo не распухает при нагревании до 600 °С и выгорании 2 % (рис. 3.15).

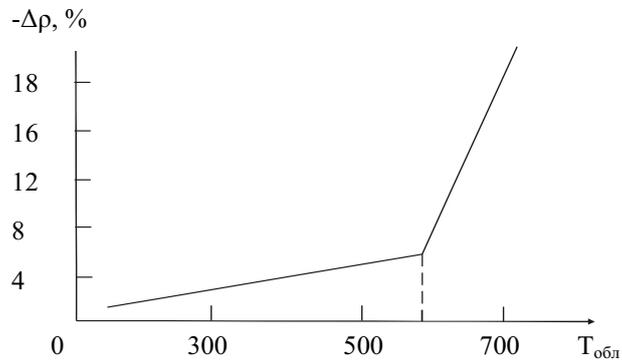


Рис. 3.15. Распухание сплава U + 10 % Mo [5]

В качестве ещё одного примера можно привести сплавы урана с малыми долями (%) железа или алюминия, закалёнными в β -фазе. Такие материалы являются стандартным топливом в *магноксowych английских реакторах*.

4. Применение конструкций ТВЭЛ с оболочкой, обеспечивающей сжатие ядерного топлива.

4. СПЛАВЫ УРАНА

Создание сплавов на основе урана было вызвано стремлением улучшить его эксплуатационные свойства и тем самым реализовать некоторые неоспоримые достоинства металлического топлива. К таким достоинствам относятся:

1. Высокая плотность, дающая хорошие бридерные свойства и являющаяся залогом высокой удельной мощности реактора.
2. Высокая степень удержания газообразных продуктов деления.
3. Более высокая, по сравнению с другими видами топлива, теплопроводность, обеспечивающая малые градиенты температур (около 100 К/см) и снижающая риск теплового удара.
4. Относительная простота изготовления сердечников ТВЭЛ, использующая металлургические технологии. Так, при прямой замене диоксида урана на металлическое топливо, по оценкам фирмы «Вэстингауз Электрик», для реактора PWR электрической мощностью 1000 МВт удаётся достичь следующих показателей:
 - а) снизить стоимость изготовления ТВЭЛ в 3 раза;
 - б) снизить в 1,5 раза стоимость переработки облученного топлива;
 - в) снизить потребное обогащение топлива с 3 до 1,8 %.

Наибольший эффект (до 12 %) может быть получен при применении металлического топлива в тяжеловодных реакторах и реакторах на быстрых нейтронах, в которых можно ожидать увеличение коэффициента воспроизводства на 0,15...0,20 единиц за счёт большей плотности топлива, а в РБН – за счёт жёсткости спектра нейтронов. Тем не менее, сплавы урана, используемые в качестве ядерного топлива, должны удовлетворять следующим требованиям:

- 1) обладать минимальным паразитным захватом нейтронов;
- 2) обеспечивать постоянство форморазмеров, прочность и пластичность в условиях облучения;
- 3) удовлетворять требованиям совместимости с материалом оболочки ТВЭЛ. Здесь не допускаются ни химическое, ни диффузионное взаимодействия;
- 4) сплав должен иметь по отношению к теплоносителю высокие антикоррозионные и антиэрозионные свойства, препятствующие вымыванию ядерного топлива из ТВЭЛа (в случае повреждения оболочки).

Известны четыре группы сплавов урана, которые могут быть использованы в качестве ядерного топлива [1, 7]:

- 1) сплавы с низким (менее 1 %) содержанием легирующих элементов;
- 2) сплавы с высоким (до 80 % и более) содержанием легирующих элементов;
- 3) металлические порошки или сплавы композиционного типа, приготовленные по порошковой технологии (см. в разделе «Дисперсионное топливо»);
- 4) легкоплавкие сплавы урана, служащие жидким топливом для жидкотопливных реакторов, которые нами здесь не рассматриваются.

Установлено, что лучшими легирующими добавками являются алюминий, хром, молибден, цирконий, ниобий, кремний. Кроме этих элементов, положительный эффект при легировании дают железо и сплав «фиссиум», содержащий 50 % Mo, 40 % Ru, 5 % Rh, 3 % Pb, 2 % Zr, 0,1 % Nb. *Фиссиум* – это смесь осколков деления урана, полученная при пирометаллургической переработке облучённого топлива.

Сплавы первой группы применяют в качестве ядерного топлива в реакторах на тепловых нейтронах, так как их основой служит естественный или слабообогащенный уран. В связи с этим, легирующие элементы должны обладать малым сечением поглощения нейтронов.

Таблица 4.1

Сплавы урана группы 1

№ п/п	Сплав	Цель легирования	Где применяется. Примечания
1.	U + (0,24 % вес.)Fe	Формирование β -фазы измельчение зерна, стойкость к распуханию, устойчивость к ц.т.о.	Стандартное топливо магнок- совых реакторов
2.	U + (0,15 – 0,50) % Al	- " -	- " -
3.	U + (0,5 – 1,5) % Si	Измельчение зерна, фиксирование β -фазы, коррозионная стойкость	–
4.	U + 0,05 % Cr	Замедление фазовых переходов. Упрочнение	–
5.	U + 0,5 % Mo U + 1,1 % Mo	Закалка β -фазы Устойчивость к радиа- ционной ползучести	Chinon I (Фр.) Chinon II (Фр.)
6.	U + 0,07 %Al + 0,03 % Fe + 0,01 %Si + 0,01 %Cr (Сикрал F ₁)	–	SL-1; SL-2
7.	U + 2 % Zr	Материал производ- ства в БР	Реактор на быст- рых нейтронах

При малом содержании легирующего элемента в сплаве первой группы кристаллическая структура металлического урана сохраняется, но можно замедлить фазовые переходы, стабилизировать технологически удобную (пластичную) β -фазу, придать урану выгодные механические и физические свойства. В этом случае, в частности, имеет место мелкокристаллическая структура с «разнонаправленными» зёрнами. Это снижает радиационный рост, набухание и повышает механические свойства при облучении. Так, предел текучести сплавов урана с небольшими количествами хрома или циркония может в 3...5 раз превышать предел текучести чистого урана при 500 °С. Сплавы естественного урана с небольшими добавками хрома (до 0,42 % вес.), молибдена (1,5...2,0 % вес.) или циркония (2,0...6,0 % вес.) имеют структуру α -урана, равномерную мелкозернистую структуру и более высокие механические свойства по сравнению с нелегированным ураном. Примеры сплавов первой группы приведены в табл. 4.1.

5. ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ НА ОСНОВЕ МЕТАЛЛИЧЕСКОГО УРАНА И ЕГО СПЛАВОВ[18]

Их реализуют в виде металлических стержней (сплошных или полых). Усложнение эксплуатации ТВЭЛов с сердечникам из металлического урана связано с изменением их структуры, механических свойств и геометрических размеров. Как уже говорилось выше, для повышения эксплуатационной надежности ТВЭЛов уран легируют сотыми долями процента Fe, Si, Al или несколькими процентами Mo, Nb, Zr. Наносят защитные покрытия на сердечники. Например, в тяжеловодном реакторе КС-150 с охлаждением углекислым газом использованы в качестве топливных сердечников урановые прутки $\varnothing 6,3$ мм, $L = 3900$ мм с защитным покрытием толщиной 0,45 мм из магниево-бериллиевого сплава.

Хорошо зарекомендовали себя на практике алюминиевые и магниевые оболочки для урановых топливных сердечников.

Плавка и литье урана осуществляются в вакууме, чтобы избежать его загрязнения газом и уменьшить опасность токсического и радиоактивного действия. Уран плавят в индукционных или дуговых печах.

Рассмотрим конструкцию и принцип действия (рис. 5.1) индукционной печи. Изложницу (7) помещают на днище печи на медной пластине (9), охлаждаемой водой. Тигель (10) соединяет с изложницей трубкой из оксида тория (11), обогащенного алундом, расположенной над изложницей. На крышке из огнеупора (5) устанавливают тигель, донное отверстие которого закрывает стержень (11). Сверху тигель закрывают крышкой (13) огнеупорной керамики (12). После достижения заданных температуры и времени выдержки стержень вынимают из донного отверстия и расплавленный уран выливается в медную изложницу.

Плавка в дуговых печах позволяет получать слитки материала с однородной структурой. Наибольшее распространение получили электроды из урана, которые вводятся в плавильную печь, охлаждаемую водой. При загорании дуги исходный материал в виде стружки или ранее отлитого слитка плавится, заполняя тигель.

Перспективен метод центробежного литья, который обеспечивает более высокое качество отливаемых сердечников. Нашел приме-

нение метод многопозиционного литья. На рис. 5.2 показана установка для литья цилиндрических сердечников в многоочковые изложницы. Тигель (1) поддерживается гальным кожухом (10). После поднятия затвора (3) с помощью механизма привода затвора (8) поток расплавленного урана направляется в графитовую изложницу (6), в отверстиях которой установлены графитовые вставки (5). Таким способом можно изготавливать цилиндрические полые и сплошные сердечники с высокой точностью по геометрическим размерам. Высокую точность дает также прецизионное литье. Уран плавят в предварительно вакуумированной индукционной печи в графитовом тигле (рис. 5.3, а), затем тигель с расплавом подают к литейным формам (рис. 5.3, б) и в печи создают избыточное давление гелия (рис. 5.3, в), под действием которого расплавленный уран заполняет формы. Торцы урановых сердечников затем обрабатывают, цилиндрическая же поверхность обработки не требует.

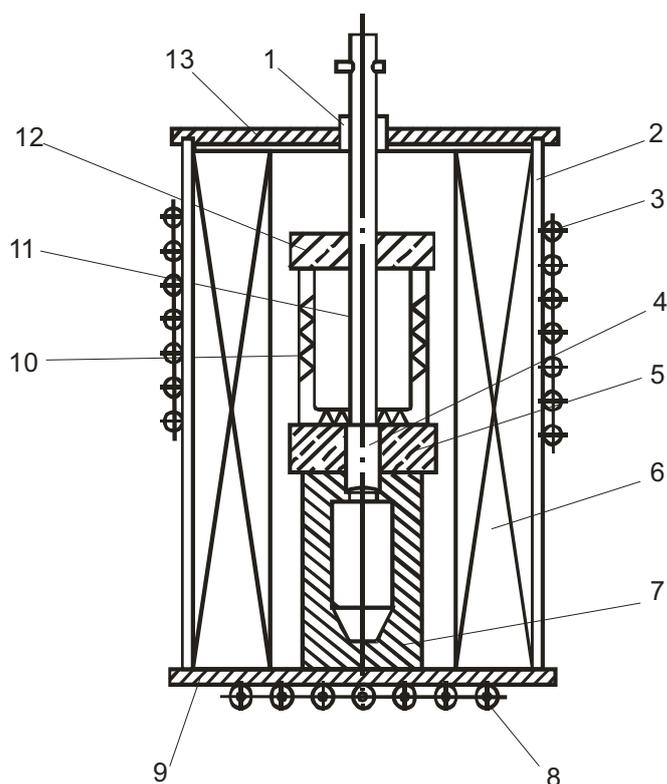


Рис. 5.1. Схема вакуумной индукционной печи для плавки урана:

- 1 – уплотнитель; 2 – кварцевая труба; 3 – индуктор;*
- 4 – трубка из оксида тория; 5 – крышка из огнеупора; 6 – изолирующие локи;*
- 7 – медная изложница; 8 – медные трубы для охлаждения водой;*
- 9 – опорная плита из меди; 10 – алундовый тигель, футерованный оксидом тория;*
- 11 – стержень из оксида тория, - обогащенный алундом;*
- 12 – крышка из огнеупорной керамики; 13 – медная крышка*

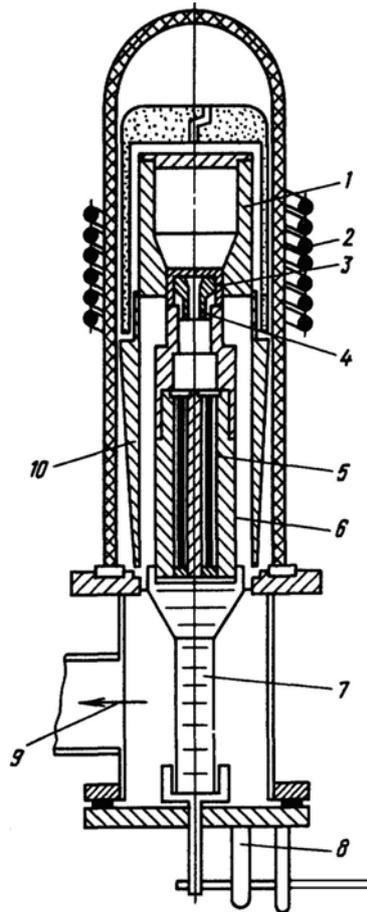
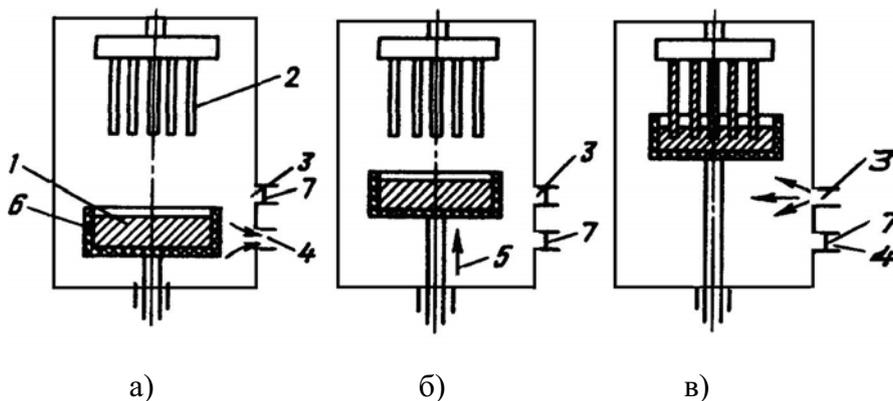


Рис. 5.2. Приспособление

для многокомпозиционного литья топливных сердечников:

- 1 – графитовый тигель с крышкой; 2 – индуктор; 3 – затвор из графита;
 4 – насадка; 5 – цилиндрические вставки из графита; 6 – графитовая изложница;
 7 – подставка для изложницы; 8 – механизм привода изложницы;
 9 – к вакуумному насосу; 10 – стальной кожух



5.3. Технологические этапы изготовления

топливных сердечников прецизионным литьем:

- 1 – расплав урана; 2 – литейные формы; 3 – груба к гелию; 4 – труба к вакууму;
 5 – подача ттигля с расплавом; 6 – графитовый тигель; 7 – клапаны

Обработка давлением. Выбор рабочей температуры для обработки давлением имеет большое значение и осуществляется с учетом существования трех аллотропических изменений урана. Уран подвергают холодной обработке при температуре до 450 °С. Деформация происходит двойникованием и вызывает упрочнение металла. После холодной обработки уран может быть отожжен при температуре выше 425 °С. Горячую обработку осуществляют в верхней части области стабильности α -фазы, т. е. в температурном интервале 450...660 °С. В этом случае деформирование обусловлено не двойникованием, а сдвигами. В диапазоне 660...770 °С уран значительно труднее обработать, так как β -фаза тверже и прочнее α -фазы и при переходе урана из α -модификации в β -модификацию усилия деформирования возрастают в 2...3 раза.

При температуре выше 770 °С уран находится в γ -модификации, характеризуемой повышенной вязкостью и пластичностью. В этой модификации урана изделиям трудно сохранять свою форму при изготовлении стержней горячей обработкой давлением при выдерживании жестко регламентированных размеров и форм.

Для предотвращения окисления урана на воздухе при повышенных температурах его нагревают в соляных ваннах. Ванны из расплавленных солей (расплавленные эвтектические сплавы углекислого калия и лития, нейтральные соли с низкой точкой плавления) создают условия для образования на поверхности металла пленки, защищающей его от окисляющего действия воздуха при дальнейшей обработке.

Прокатка осуществляется в температурном интервале 400...600 °С, т. е. в α -области. Уран может быть прокатан в стержни и пластины с большими степенями обжатия за один проход. Большое значение имеет выбор материала покрытия, предотвращающего окисляющее действие атмосферы, поскольку некоторые металлы образуют с ураном эвтектики, способные плавиться при температурах горячей обработки урана давлением.

Штамповка применяется в температурном интервале 450...650 °С при степени обжатия за один проход 10...15 %. При холодной штамповке сердечники из урана отжигают после нескольких проходов. Если не требуется высокой точности выдерживания размеров, то штамповка предпочтительна прокатке.

Волочение применяют, если необходимо изготовить из урана проволоку с однородным поперечным сечением. Большую роль здесь играет смазка. Наиболее удовлетворительный результат был получен, когда в состав смазки входила смесь из черного лака, разжижителя лака, дисульфида молибдена, мелкодисперсного оксида цинка и сала. Кроме этого состава в качестве смазывающих веществ используют медь и серебро, которые наносят распылением или другим способом.

Прессование используют при изготовлении сердечников из урана сложной формы, обычно в виде сплошных стержней диаметром 35...40 мм и труб внешним диаметром 50 мм с толщиной стенок 6...7 мм. Все виды прессования урана осуществляют при температурах, лежащих в α - и γ -областях. В условиях повышенных температур и давлений уран быстро истирается и налипает на инструмент. Поэтому поверхность прессования покрывают слоем меди толщиной 0,03...0,05 мм, легко удаляемой травлением. Скорость перемещения пуансона лежит в диапазоне 0,25...1,25 м/мин. Матрицы рекомендуются изготавливать из карбида хрома. При прессовании урана в γ -области скорость пуансона должна быть выше 5 м/мин. Шероховатость поверхности сердечников, полученных прессованием в этой области, выше, чем при прессовании в α -области.

Ковка урана применяется при температурах, лежащих в γ -области или в верхней части α -области. Вследствие малых усилий деформирование в γ -области при температурах 700...900 °С предпочтительнее.

Механическая обработка топливных сердечников должна производиться с учетом склонности урана к наклепу и окислению. Во избежание сильного наклепа рекомендуется снимать толстую стружку (глубина резания не менее 0,6 мм), применяя твердосплавный режущий инструмент и минеральное масло или водную эмульсию в качестве охлаждающей жидкости. Мелкая влажная стружка может самовозгораться, поэтому количество стружки в отходах должно быть минимальным. Механическую обработку урана нередко ведут, используя для охлаждения струю холодного аргона.

Проводятся исследования по определению остаточных напряжений от термомеханической обработки в поверхностном слое топливного уранового сердечника. Для этого был применен метод нейтронной дифракции. Энергодисперсионное измерение с помощью трехосного спектрометра остаточных напряжений в цилиндрических стержнях из сплава U + 0,75 % Ti, подвергавшихся различным термомеханическим обработкам (термообработка, ротационная правка), показало меньшую чувствительность анизотропии текстуры и эффектам ослабления, чем распространное измерение сканированием.

Топливные сердечники из порошка урана также широко применяют при изготовлении ТВЭЛов.

Прессование холодным способом и спекание. Прессование порошка урана производят с помощью гидравлического пресса, помещенного в камеру, заполненную сухим аргоном. Выбор давления зависит от размеров и формы частиц порошка, а также желаемых свойств готового топливного сердечника. При прессовании получают брикеты достаточной прочности, необходимой для дальнейшей механической обработки.

Вид применяемой формы зависит от конфигурации топливного элемента. Так, из металлического урана методом холодного прессования изготавливают «сотовое» изделие. После прессования брикеты спекают в специальных вакуумных печах, нагреваемых электрическим током.

Прессование горячим способом производят при меньших давлениях по сравнению с холодным прессованием для получения такой же плотности сердечника. Кроме того, горячим прессованием можно изготовить сердечники сложной конфигурации благодаря перемещению в форме прессуемых частиц и в поперечном направлении. Горячее прессование осуществляют поэтапно: сначала приготавливают металлический порошок урана, затем его прессуют в матрице из сплава инконеля при температуре $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ в течение 15 мин под давлением 137 МПа (рис. 5.4).

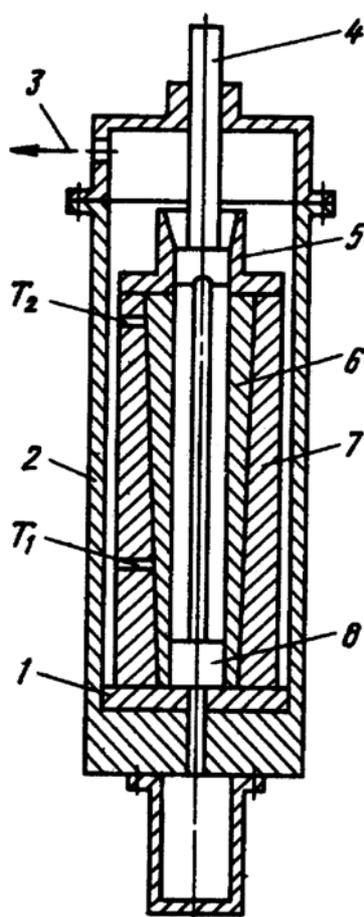


Рис. 5.4. Схема устройства формы для горячего прессования в вакуумной камере:
 1 – нижняя пластина; 2 – кожух; 3 – к вакуумному насосу;
 4 – верхний пуансон; 5 – направляющая для пуансона;
 6 – внутренняя часть матрицы; 7 – наружная часть матрицы;
 8 – нижний пуансон; T_1 и T_2 – каналы для термопар

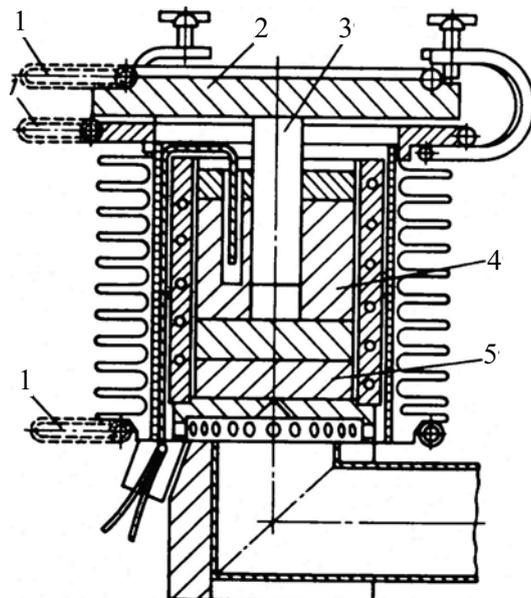


Рис. 5.5. Приспособление для горячего прессования:
 1 – медные водоохлаждаемые трубки; 2 – верхняя плита;
 3 – пуансон из сплава нимоник; 4 – пресс-форма; 5 – донная плита

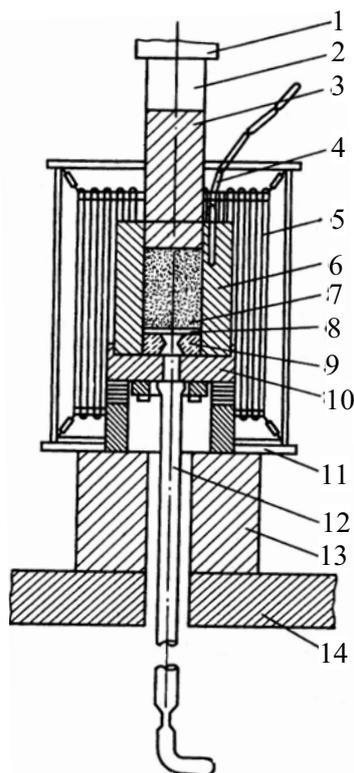


Рис. 5.6. Приспособление для горячего выдавливания топливных сердечников:
 1 – шток пресса; 2 – подкладка из сплава нимоник; 3 – пуансон; 4 – термопары;
 5 – нагревательный элемент; 6 – пресс-форма; 7 – порошок урана;
 8 – диск для уплотнения порошка; 9 – пресс-инструмент для выдавливания;
 10 – плита пресс-формы из сплава нимоник; 11 – опора; 12 – трубка
 из стекла пирекс; 13 – поддерживающий блок; 14 – стол пресса

На рис. 5.5 представлена конструктивная разновидность приспособления для горячего прессования, позволяющего получать урановые сердечники диаметром до 25 мм и длиной до 100 мм. Плотность таких сердечников, спрессованных при температуре 780 °С и десятиминутной выдержке под давлением 132 МПа, достигает 18,7...18,9 г/см³.

Гидростатическое прессование применяют при изготовлении сердечников в виде брикетов однородной плотности. Для этого порошок урана заключают в оболочку из резины и специальных пластмасс, затем подвергают обжатию в жидкости под давлением.

Горячее выдавливание, осуществляемое непосредственно в γ -фазе, позволяет получать сердечники трубчатой формы с различной толщиной стенок и длиной до 1200 мм. Заготовками для выдавливания служат брикеты, изготовленные прессованием. Выдавливание сердечников производят на специальном приспособлении (рис. 5.6) при температуре 800 °С и скорости выдавливания около 2 м/с.

6. ДИОКСИД УРАНА

В настоящее время диоксид урана очень широко применяется в качестве ядерного топлива в легководных реакторах и в большинстве тяжеловодных. Твердый раствор оксидов урана и плутония применяют в качестве топлива для быстрых реакторов. Рассмотрим некоторые характеристики диоксида урана, которые обеспечивают его работоспособность в реакторе.

Основные достоинства диоксида урана – его повышенная, по сравнению с металлическим топливом, термическая и радиационная стабильность. Первая обеспечивается высокой температурой плавления ($T_{пл} = 2880\text{ }^{\circ}\text{C}$) и отсутствием фаз, вторая – кубическим строением решетки (типа CaF_2), см. рис. 1.1. Плотность диоксида невелика, $10,07\text{ г/см}^3$ (металлический уран – $18,5\text{ г/см}^3$, карбид урана – $13,6\text{ г/см}^3$). Несмотря на это, в современных тяжеловодных реакторах CANDU диоксид урана используется в необогащенном состоянии.

Диоксид урана, имеющий кубическую кристаллическую решетку, может накапливать избыточное число атомов кислорода в решетке при высоких температурах (рис. 6.1). Этот эффект учитывают, записывая стехиометрический кислородный коэффициент диоксида как $(2+x)$, где обычно $x = 0 \dots 0,2$. Дополнительные атомы кислорода влияют на свойства двуокиси урана. Так, например, ползучесть, спекание и скорость диффузии увеличиваются при отклонении от стехиометрического состава. При очень высоких температурах топливо может диссоциировать с образованием UO_2 и UO_3 . Последнее соединение имеет высокое давление пара и миграция UO_3 из-за температурного градиента по длине ТВЭЛа приводит к перераспределению кислорода в топливе, что, в свою очередь, влияет на коррозию оболочки. Температурная зависимость кислородного коэффициента диоксида приводит и к температурной зависимости коэффициентов теплопроводности и к термическому расширению (см. рис. 6.2, 6.3).

Чрезвычайно низкая теплопроводность диоксида урана, падающая с ростом температуры, приводит к возникновению высоких градиентов температуры в топливе, достигающих $2000 \dots 4000$ град/см (для металлического урана ≈ 1000 град/см). В свою очередь, высокие температуры и градиенты температуры в диоксиде урана способствуют изменению его структуры, уплотнению и т. д. Эти эффекты рассматриваются при конструировании ТВЭЛ.

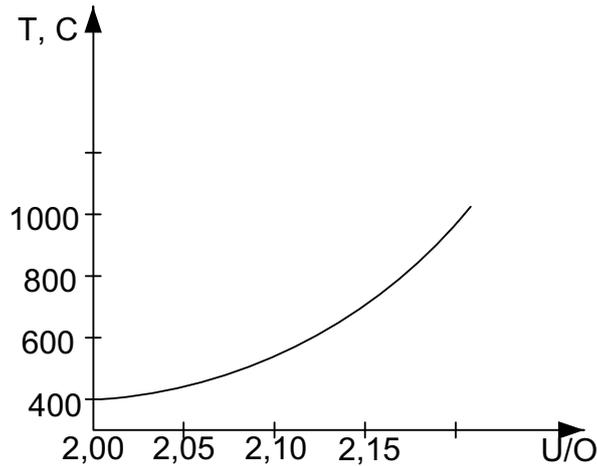


Рис. 6.1. Зависимость кислородного коэффициента диоксида урана от температуры

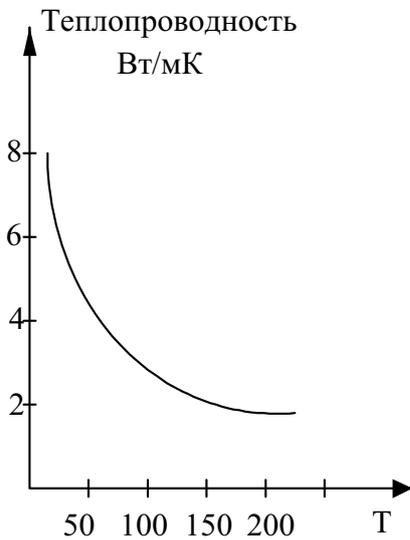


Рис. 6.2. Теплопроводность диоксида урана

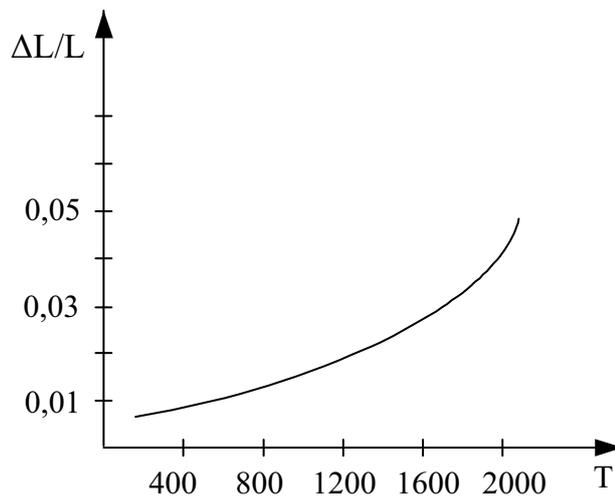
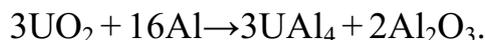


Рис. 6.3. Коэффициент термического расширения диоксида урана

Разрывная прочность диоксида урана приблизительно равна 71 МПа, а модуль упругости (модуль Юнга) $E = 2,26 \cdot 10^5$ МПа. Разрывная прочность растёт с температурой. При температуре свыше 1400 °С диоксид урана становится пластичным. Экспериментально установлено, что диоксид урана стабилен примерно до температуры 300 °С. Отмечается также его хорошая коррозионная стойкость в жидких металлах и удовлетворительная в воде. Например, образцы спеченного диоксида большой плотности, испытанные на коррозию в расплавленной смеси натрия и калия при 600 °С, уменьшили свою массу всего лишь на 0,1 мг/см² в течение 72 часов. С водой диоксид урана не реагирует до 300 °С и слабо растворяется при повышении температуры и давления (0,005 % вес. при $T = 500$ °С и $P = 2100$ кг/см²). Хорошо известна термо-

динамическая неустойчивость смеси UO_2 и Al (например в дисперсионном топливе). Реакция взаимодействия протекает по схеме:



Изменение объёма при этом составляет $\Delta V = 20 \dots 30 \%$. В то же время, смесь U_3O_8 и Al стабильна и при тех же условиях изменение объёма смеси не превышает $\Delta V = 4 \%$. По отношению к другим материалам диоксид урана имеет:

- хорошую совместимость с элементами:
нерж. сталь, Ni, Nb, Ta, Mo, W, CO_2 , Al_2O_3 , MgO, BeO;
- плохую совместимость с элементами: Al, Be, Zr, C, H_2 .

Существуют разные способы использования диоксида урана в качестве топлива:

- в виде таблеток (сплошных или с центральным отверстием);
- порошка частиц произвольной формы, используемый как при изготовлении таблеток, так и ТВЭЛ;
- порошка частиц сферической формы с размерами $50 \dots 500$ мкм (по отдельным оценкам $500 \dots 1000$ мкм).

При изготовлении ТВЭЛ таблетки и порошки размещают в тонкостенных трубках из подходящего материала, являющихся оболочкой ТВЭЛ, и герметизируют. Кроме того, порошки диоксида урана могут смешивать (шихтовать) с тонкодисперсными металлическими порошками и спекать, получая дисперсионное топливо (о дисперсионном топливе см. ниже).

Требования к таблетке:

1. Форма должна быть цилиндрической. Отношение высоты к диаметру 2:1. Объем полостей $V_n = 2 \dots 3 \% V_{общ.}$
2. Допуск на размер 0,025 мм.
3. Таблетка должна иметь закрытую пористость, плотность при этом должна соответствовать 85...95 % от теоретической. Размер пор 0,1...10,0 мкм.
4. Поры в таблетке могут быть заполнены каким-либо теплопроводящим газом, например азотом.

Требования к порошку:

1. Порошок идеален, если состоит из мелких частиц правильной формы, не имеющих на поверхности адсорбированных газов.
2. Идеальная поверхность частиц порошка должна быть по возможности высокой (она может достигать $4 \text{ м}^2/\text{г}$). Однако существует ограничение на размер (менее 0,5 мкм) во избежание пирофорности.
3. Для лучшей текучести при заполнении в оболочку применяют 1...2 % связки (полиэтилен-гликоль, парафин, метакрилат полиметила в сухом виде или растворе).

4. Для удаления «связки» изделие прокаливают до температуры 800 °С в инертной атмосфере.

Требования к сферическому порошку:

1. Размер сфер 50...500 мкм. Частицы одного размера дают максимальную эффективную плотность топлива при уплотнении 74 % от теоретической. Добавка частиц с диаметром, меньшим в 7 раз, позволяет увеличить плотность композиции до 90 % от теоретической.
2. Так, как при уплотнении применяют вибрацию, при которой поверхность сфер должна быть достаточно прочной. С этой целью частицы оплавливают.
3. Сферы могут иметь 2-, 3-слойное покрытие из SiC и C, препятствующее выходу осколков деления и распуханию.

Действие облучения на UO_2 . Структурные и объёмные изменения.

По сравнению с чистым металлическим ураном и его сплавами диоксид урана обладает гораздо более высокой радиационной стойкостью. Тем не менее, при относительно небольших выгораниях (до 10^{18} дел/см³) наблюдается слабое увеличение периода решетки UO_2 и уширение рентгеновских линий, связанное с накоплением радиационных дефектов, причем повышение прироста, равное 0,16 %, достигается уже при флюенсе $(0,5...2,0) \cdot 10^{17}$ дел/см². Отжиг радиационных дефектов в UO_2 происходит в две стадии – при 200 °С и 500 °С; после нагрева до 900 °С происходит полное восстановление структуры. При больших выгораниях (~ 10 %) двуокись урана «остекловывается», т. е. переходит в аморфное состояние, хотя при низких флюенсах этот процесс незаметен. Этот результат можно интерпретировать как изменение стехиометрического состава соединения из-за уменьшения процентного содержания урана.

При больших выгораниях, как оказывается, наибольший вклад в изменение структуры дают не обычные радиационные дефекты (вакансии, междоузельные атомы и их комплексы), а изменение химического состава из-за накопления продуктов деления – как твёрдых (Mo, I, Te, Ba, Zr, La и редкоземельных элементов), так и газообразных (Xe, Kr).

Твёрдые продукты деления диффундируют в матрице, вследствие чего происходит их сегрегация (выделение) на границах зёрен или около пор. Малые значения эффективной энергии активации миграции примесей указывает либо на важную роль радиационно-стимулированной диффузии, либо на то, что миграция идёт вдоль дислокаций или по границам зёрен. Сегрегация примесей ведёт к появлению новой фазы, точный состав которой пока неизвестен.

Газообразные продукты деления, как и в металлическом топливе, приводят к газовому распуханию. Особенность распухания диоксида урана заключается в том, что, если при малых выгораниях (до $1,4 \cdot 10^{21}$ дел/см³)

его скорость составляет всего 0,16 % на каждые 10^{20} дел/см³, то, начиная с выгораний $(1,7...3,6) \cdot 10^{21}$ дел/см³, скорость составляет уже 0,7 % на каждые 10^{20} дел/см³ (см. рис. 6.4).

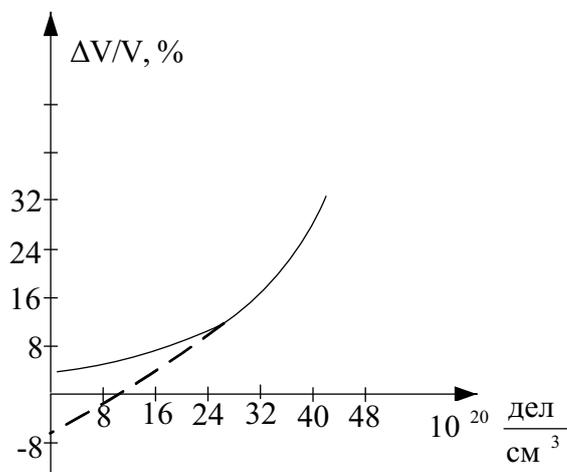


Рис. 6.4. Распухание диоксида урана под действием облучения

Если экстраполировать вторую ветвь кривой (рис. 6.4) к нулевым выгораниям, она пересечёт ось ординат в точке, соответствующей 8...10 %, что отвечает пористости исходного спеченного диоксида урана. Это говорит о том, что слабое начальное распухание UO_2 связано с заполнением пористости, существовавшей в исходном состоянии. Наряду с образованием внутренних полостей, приводящих к распуханию, важную роль, с практической точки зрения, играет газовыделение, сопровождающееся выходом газа из топлива и накоплением его внутри оболочки ТВЭЛа. Как показывает опыт, этот процесс является чисто диффузионным, т. е. не описывается обычной аррениусовской зависимостью.

Связано это, видимо, с тем, что в процессе миграции газа к поверхности происходит его захват на внутренних ловушках (точечных дефектах, дислокациях, границах зёрен) с последующим освобождением. Кривая зависимости газовой выработки от выгорания (рис. 6.5) близко напоминает кривую распухания. Это указывает на то, что скорости обоих процессов контролируются одним механизмом – захватом и удержанием газа внутренней технологической пористостью. Специальное создание такой пористости может служить одним из эффективных способов увеличения ресурса работы тепловыделяющих элементов.

Изменение физических свойств UO_2 под действием облучения. Низкотемпературная теплопроводность UO_2 монотонно уменьшается с ростом флюенса, однако отжиг при 900 °С приводит к почти полному (~ 90 %) восстановлению исходной величины. Это указывает на определенную роль в уменьшении теплопроводности радиационных дефектов. При вы-

соких температурах облучения (более 1600 °С) параллельно с радиационными эффектами идёт перекристаллизация спечённого материала, сопровождающаяся ростом столбчатых кристаллов, вследствие чего теплопроводность образцов несколько повышается, хотя это повышение и меньше ожидавшегося². Электропроводность UO₂ при облучении в интервале температур 50...90 °С также несколько снижается, хотя эффект здесь гораздо меньше, чем для чистого урана. Это связано с тем, что по своим электрическим свойствам диоксид относится к полупроводникам, для которых влияние на электропроводность процессов рассеяния электронов на дефектах незначительно.

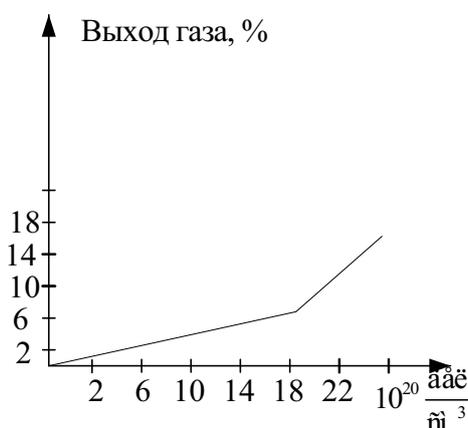


Рис. 6.5. Газовыделение из облученного диоксида урана

Весьма интересным является зафиксированное в ряде экспериментов изменение температуры плавления диоксида под облучением, хотя количественные результаты различных исследователей не совпадают. Так, если радиационные дефекты почти не влияют на температуру фазовых переходов, то наблюдаемые изменения температуры плавления должны являться следствием изменения состава материала по причине выгорания.

² Стремление увеличить размеры зоны уплотненных зерен, обладающей повышенной теплопроводностью, привело к созданию так называемых «вибротвэлов». Это ТВЭЛы, сердечники которых представляют собой виброуплотненный порошок сферических частиц двуокиси урана. Чтобы достичь требуемой плотности, используют две фракции частиц с отношением диаметров 1:7. При пуске реактора, вследствие разогрева и действия облучения, порошок в центральной части сердечника спекается при температуре 900 °С. Вследствие этого зона уплотненных зерен увеличивается, а сам порошок спекается, уже образуя цельный стерженок. В результате получается оксидное топливо с повышенной теплопроводностью. К сожалению, технология «вибротвэлов» в настоящее время до конца не отработана.

7. ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ ИЗ ОКСИДОВ УРАНА [18]

Диоксид урана (UO_2) широко применяется в отечественных водо-водяных реакторах на тепловых нейтронах корпусного и канального типов (ВВЭР и РБМК), в кипящих реакторах (ВК-50), в реакторах на быстрых нейтронах (БОР-60, БН-350, БН-600), в тяжеловодных и исследовательских реакторах, в зарубежных водо-водяных реакторах типа PWR и BWR. Топливные сердечники из UO_2 имеют вид таблеток ($L/D = 1,5...2$), втулок, стержней и сферических частиц. Наиболее распространены таблетки. Для энергетических реакторов используют таблетки, имеющие $L/D = 1,5$ и усложненную форму (центральное отверстие, вогнутость торцов, фаски). Последнее необходимо для компенсации термического расширения и уменьшения взаимодействия топлива с оболочкой.

Для топливных сердечников из диоксида урана применяют прочные оболочки из Zr – 1%Nb, циркониевого сплава, нержавеющей стали, циркалоя-4, циркалоя-2, стали 316, стали 304, способные выдержать давление топлива до 10 МПа, которое возникает из-за ускоренной ползучести UO_2 в нейтронном потоке при температуре выше 400 °С, направленной внутрь пор топлива.

Для изготовления сердечников в основном применяют холодное (без предварительного нагрева заготовки и инструмента) и горячее прессование. Наиболее распространены сердечники в форме гладких брикетов и цилиндрических стержней. Прессование обеспечивает высокую степень плотности и теплопроводности топлива. Можно изготовить изделия сложной формы, получить брикеты с канавками для прохода газов, что уменьшает последующую обработку. В первом случае сердечники изготавливают по следующему технологическому маршруту:

- 1) механическое перемещение исходного порошка со связкой;
- 2) холодное прессование при давлении 392...687 МПа (рис. 7.1);
- 3) предварительное спекание при 600...800 °С;
- 4) повторное спекание при 1600...1700 °С в течение 1...4 ч в атмосфере водорода или смеси водорода с азотом;
- 5) механическая обработка наружного диаметра [согласно технологическому процессу (рис. 7.2)].

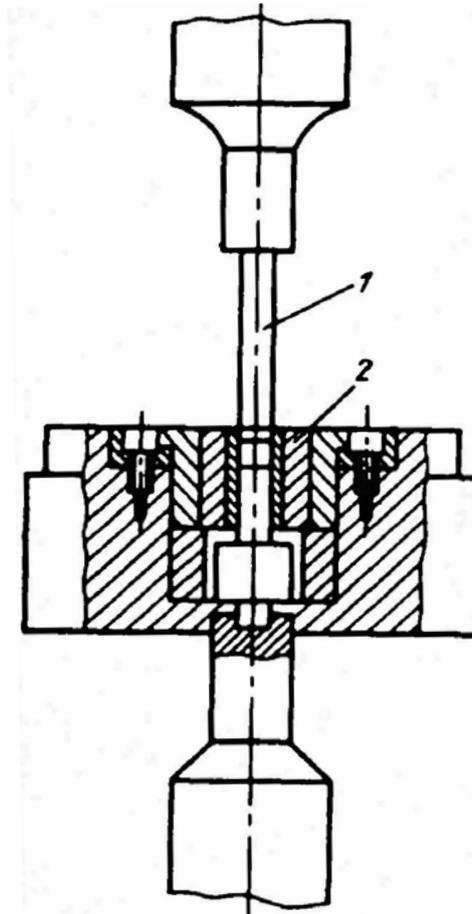


Рис. 7.1. Приспособление для прессования брикетов из UO_2 :
1 – пуансон; 2 – пресс-форма с вкладышем

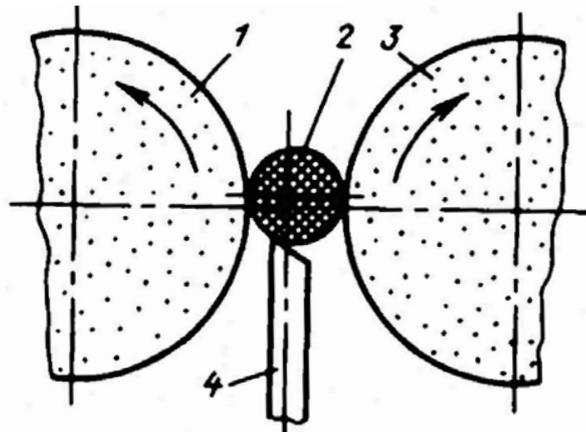


Рис. 7.2. Схема механической обработки таблетки (брикета) из UO_2 на бесцентрово-шлифовальном станке:
1 – ведомый круг; 2 – таблетка из UO_2 ;
3 – основной шлифовальный круг; 4 – опорный нож

Затраты на изготовление таблеток из порошка UO_2 при прочих равных условиях тем выше, чем меньше их диаметр (рис. 7.3).

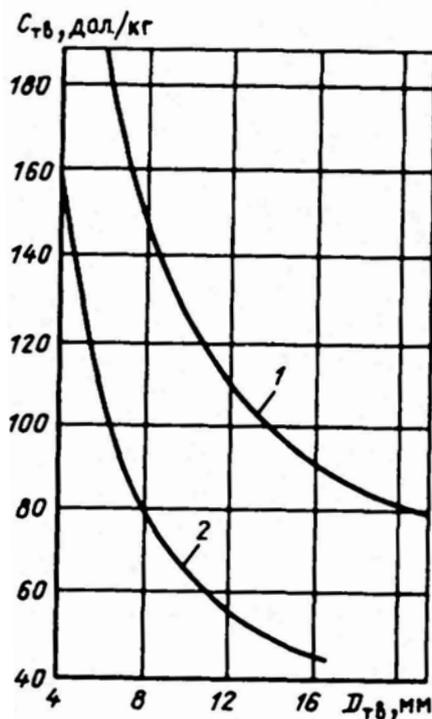


Рис. 7.3. Зависимость затрат $C_{ТВ}$ на изготовление ТВЭЛов из диоксида урана в оболочках из циркониевых сплавов (1) и нержавеющей стали (2) от диаметра ТВЭЛов $D_{ТВ}$

Горячее прессование часто осуществляют с ударным воздействием для получения плотной смеси UO_2 с PuO_2 . Исходный продукт помещают в металлический контейнер с двойными стенками, который герметизируют сваркой после откачки из него воздуха. Нагретый до $1200\text{ }^\circ\text{C}$ контейнер устанавливают в пресс-форму и подвергают ударному воздействию на прессе (давление до 1717 МПа). Плотность полученного продукта достигает 99% теоретической.

Уплотнение порошков в металлической оболочке осуществляют на электродинамическом или пневматическом вибраторе, или посредством ротационной ковки при разных степенях обжатия. Последний способ уплотнения пригоден для сердечников в виде цилиндрических сплошных и пустотелых стержней.

При изготовлении топливных сердечников в виде труб или длинных цилиндрических стержней применяют выдавливание. Гидростатическое прессование, горячее прессование и шликерное литье пока широкого распространения не получили.

Ротационной ковкой порошков UO_2 в оболочках из циркалоя-2 или нержавеющей стали достигалась плотность $\sim 10\text{ г/см}^3$, способом свободной засыпки $8\text{...}9\text{ г/см}^3$. При ковке следует предупреждать растрескивание оболочки, применяя промежуточные отжиги.

Нанесение покрытий на топливные шарообразные сердечники из UO_2 осуществляют следующим образом: химическим способом осаждают слой никеля толщиной 5 мкм; электролитически наносят второй слой никеля толщиной 10 мкм; третий слой из хрома толщиной 10 мкм также получают электролитически; далее сердечник отжигают при температуре 850 °С в течение 5 ч, в результате чего образуется соединение из никеля и хрома.

Отличительными чертами изготовления топливных сердечников из UO_2 являются массовый тип производства, усложнение структуры предприятия, превращение их в комплексы с полным технологическим циклом, начиная от получения порошка UO_2 , производства топливных таблеток и кончая изготовлением ТВЭЛов и ТВС. Это требует концентрации капиталов и производства. Например, уже в 80-х годах 95 % производства ядерного топлива в США было сосредоточено на четырех реакторостроительных фирмах. Стоимость изготовления ТВЭЛов для легководных реакторов находится в диапазоне от 50 до 80 долл/кг (в зависимости от типа реактора, степени обогащения топлива, размера партии и других производственных факторов).

Несмотря на отработанную и надежную технологию получения топливных таблеток, имеют место брак и отходы, подлежащие переработке. Затраты на переработку брака и отходов (с учетом потерь урана) составляют заметную часть суммарных технологических затрат на изготовление ТВЭЛов. Точность диаметрального размера таблетки обеспечивают бесцентровым шлифованием, которое увеличивает себестоимость изготовления ТВЭЛа на 8 %. Это связано с разрушением таблеток при шлифовании и необходимостью извлечения топлива из отходов. Приведем пример распределения затрат при изготовлении ТВЭЛов с топливным сердечником из UO_2 для реакторов на тепловых нейтронах (производительность по обогащенному урану 500 т/год):

Таблица 7.1

Составляющая затрат	Затрата, %
Получение порошка UO_2	9,8
Изготовление топливных таблеток	13,6
Изготовление оболочек ТВЭЛов и заглушек	20,0
Сборка ТВЭЛа (снаряжение таблетками)	7,8
Все виды контроля	4,8
Переработка брака и отходов	5,5
Потери урана	7,6
Амортизационные отчисления	18,5

Различают два основных вида брака и отходов, подлежащих переработке с целью регенерации обогащенного урана:

- 1) брак при получении спрессованных и спеченных таблеток;
- 2) различные отходы при заготовительных операциях, от шлифования таблеток, загрязненные оксиды урана от чистки оборудования и оснастки, зола от сжигания горючих материалов, урансодержащие растворы, загрязненные примесями.

Бракованные прессованные топливные и некондиционные таблетки (нарушение плотности, трещины, сколы, дефекты поверхности и формы) не направляют на химический передел, так как их химический состав не нарушен. Брак этого вида перерабатывают неводным окислительным методом. Отходы второго вида (шлифовальный порошок, оксиды от чистки оборудования и оснастки, золы, некондиционные сбросные растворы, загрязненные примесями) перерабатывают водными методами, включающими операции экстракционной очистки.

Всё большее применение находит смешанное $(U, Pu)O_2$ топливо. Наиболее эффективны технологические процессы холодного прессования порошка в таблетки и виброуплотнение. В быстрых реакторах используют топливные сердечники в виде таблеток, получаемых прессованием механически смешанных порошков UO_2 и PuO_2 . Для равномерного распределения диоксида плутония в оболочках большой длины загружали в трубу для виброуплотнения равные порции фракций мелкого (PuO_2 и UO_2) и крупного (UO_2) порошков и включали вибратор. Затем загружали следующую порцию смешанного топлива и повторяли процесс виброуплотнения. ТВЭЛы с виброуплотнённым топливом имеют ряд преимуществ перед ТВЭЛами таблетированного типа: лучшую теплопередачу между топливом и оболочкой, слабое механическое взаимодействие между ними, незначительное осевое удлинение топливного столба.

При реализации технологии изготовления уран-плутониевого топлива важно обеспечить практически полное растворение топлива в HNO_3 при механическом смешивании порошков и решить вопросы автоматизации производства в условиях дистанционного управления. Для этого проводились работы по усовершенствованию имеющихся и разработке новых химических процессов получения порошка $(U, Pu)O_2$, использованию микросфер для приготовления $(U, Pu)O_2$ -топлива, модификации методов механического смешивания порошков. В Японии и США разработаны химические способы соосаждения порошка $(U, Pu)O_2$. Для получения микросфер таблетного топлива реакторов LWR и FBR уплотняли оболочку методом вибрации (Швейцария) и использовали обычный метод холодного прессования (США). Введение стадии совместного размолла порошков во время смешивания гарантировало получение тонко-

дисперсного порошка, что позволило, в свою очередь, специалистам ФРГ и Бельгии добиться почти 100%-го растворения топлива в HNO_3 .

Фирма «Вестингауз–Ханфорд» разработала технологическую линию SAF дистанционного изготовления ТВЭЛов со смешанным топливом $(\text{Pu}, \text{U})\text{O}_2$ для реакторов FFTF и CRBR. Рассмотрим основные этапы работы линии SAF и содержание основных технологических операций.

Этап I – получение порошков, взвешивание порций PuO_2 и UO_2 , их перемешивание. Порошки поступают в специальных контейнерах с запорным устройством. Контейнеры взвешивают, идентифицируют и с помощью лифта, управляемого компьютером, и робота доставляют в подвальное помещения хранилища. Перед началом технологического процесса контейнеры с PuO_2 поднимают лифтом на четвертый этаж здания, где после автоматического взвешивания и идентификации содержимое пересыпается в приёмный бункер. Порошок UO_2 загружают аналогично. Требуемые количества компонентов определяют расчетным путем и вводят в программу управления дозирующим устройством. Отмеренные дозаторами порции порошков засыпают в общий питатель камеры смесителя, рассчитанной на прием 100 кг смеси. Порошок перемешивается струей азота. Через клапан в дне смесителя готовая смесь потоком азота транспортируется в приемник мельницы.

Этап 2 – измельчение порошка, изготовление гранулята. Смесь порошков измельчается в мельнице под струей азота и высыпается в защитный контейнер со свинцовой крышкой. Затем вводятся органические добавки (порообразователь и связующее) и контейнер устанавливается в механическое устройство для перемешивания. После чего шашки прессуют, дробят, просеивают полученный гранулят и загружают его в приёмный сосуд, помещенный в защитном контейнере.

Этап 3 – прессование таблеток. На участке прессования работают два гидравлических пресса, прессующих одновременно по пять таблеток. Качество прессованных сырых таблеток характеризуется их плотностью, для определения которой их взвешивают и с помощью лазерного устройства измеряют геометрические размеры набранного столба таблеток. Так оценивают массу, соответствующую единице длины столба таблеток. Партия таблеток массой 1...3 кг загружается для спекания в молибденовые палеты.

Этап 4 – сушка и спекание таблеток. Палеты с загруженными сырыми таблетками посредством ленточного конвейера перемещаются в сушильной печи непрерывного действия. Здесь происходит удаление органических добавок. В рабочей зоне, изолированной кожухом печи, где максимальная температура достигает 1000 °С, поддерживается небольшой вакуум. Кроме того, туда подается смесь азота с водородов навстречу транспортному движению палет.

Для спекания таблеток используют две печи, снабженный отдельными ленточными конвейерами и шлюзами, заполненными смесью аргона с водородом. Производительность составляет 24 палеты в смену. Отбирают пробы на химический анализ. Таблетки, содержащие избыточное количество газа, автоматически загружаются в стаканы и поступают в специальную печь для вакуумной отгазовки в течение 12 ч.

Этап 5 – шлифование спеченных таблеток и их контроль. Шлифование таблеток осуществляют на бесцентрово-шлифовальном станке на заданный размер, изменение которого компенсирует изменение плотности таблеток и обеспечивает требуемую распределенную плотность. Проводят ориентирование таблеток, набор столба (из 20...30 готовых таблеток) с автоматическим взвешиванием и измерением длины, загрузки и возврата таблеток в поток.

Этап 6 – снаряжение оболочки, герметизация и контроль ТВЭЛов. В оболочку с приваренной нижней заглушкой и установленными в ее нижней части отражателями и таблетками из обедненной UO_2 загружают подготовленный столб таблеток PuO_2-UO_2 , таблетки из UO_2 , пружину, трубку для придания жесткости оболочке (на участке газосборника). Затем зачищают место под верхнюю заглушку, вакуумируют оболочку и заполняют ее внутреннюю полость гелием. Камера, в которой смонтировано оборудование для выполнения этой операции, заполнена азотом. Далее вводят специальную ампулу для обнаружения поврежденных ТВЭЛов в реакторе и устанавливают заглушку, которую приваривают магнитно-импульсной сваркой.

Оборудование дистанционного контроля гарантирует автоматическую проверку качества снаряжения и сварки ТВЭЛов. Дистанционное изготовление ТВЭЛов со смешанным топливом обеспечивает транспортная система, состоящая из транспортной линии по перемещению контейнеров при операциях прессования, загрузки сырых таблеток в палеты, сушки, спекания и отгазовки таблеток, хранения таблеток на промежуточных складах, подачи палет на участок их контроля, участка разгрузки палет со спеченными таблетками и склада готовых таблеток.

8. КАРБИДЫ УРАНА И ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ ИЗ КАРБИДОВ

В системе U–C установлено существование трёх химических соединений: UC, UC₂, U₂C₃. С практической точки зрения UC (а также PuC) представляют интерес как топлива для быстрых реакторов, а UC₂ рассматривают как топливо для высокотемпературных газоохлаждаемых реакторов, ВТГР. Карбиды имеют два основных преимущества перед оксидами: во-первых, плотность атомов урана в них выше (UC – 12,97 г/см³, UC₂ – 11,68 г/см³, UO₂ – 9,65 г/см³) и, во-вторых, их теплопроводность примерно в 10 раз выше теплопроводности оксидов. Благодаря этому топливо имеет более благоприятные бридерные характеристики и более низкие температурные градиенты.

Монокарбид урана UC имеет узкую область гомогенности (на диаграмме состояний U–C, см. рис. 1.7) распространённую как в сторону дефицита атомов углерода, так и в сторону их избытка. Для монокарбида урана характерна тенденция к более низкому содержанию углерода по сравнению со стехиометрическим составом. Этим обусловлено появление свободного металлического урана на границах зёрен (рис. 8.1), что приводит в процессе эксплуатации к повышенному распуханию и взаимодействию урана с оболочкой ТВЭЛ из нержавеющей стали.

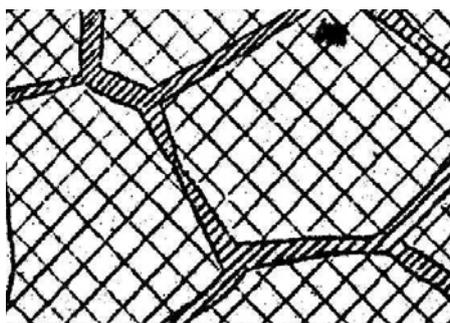


Рис. 8.1. Выделение металлического урана на границах зёрен UC

Обогащение монокарбида урана углеродом приводит к появлению в нём второй фазы (UC₂ или U₂C₃), что создаёт условия для сильного науглероживания оболочки ТВЭЛ и снижения её прочности.

Карбиды очень чувствительны к влаге, поэтому в реакторах с карбидным топливом применение водного теплоносителя исключено. Не приме-

няется также и углекислый газ CO_2 , так как начиная с 300...350 °С, он окисляет карбид с образованием диоксида.

Совместимость карбида урана с другими материалами показана в табл. 8.1.

Таблица 8.1

Совместимость карбидов урана с различными материалами

Материал	UC	UC ₂
Al	до 400 °С	до 400 °С
САП ³	до 510 °С	до 510 °С
Be	до 600 °С	до 600 °С
Bi	до 950 °С	до 1100 °С
Fe	до 1000 °С	до 1000 °С
нерж. сталь	до 800 °С	до 800 °С
Li	до 800 °С	до 800 °С
Na	до 600 °С	до 600 °С
Na-K	до 700 °С	до 700 °С
Ni	Плохая совместимость	Плохая совместимость
Pb	Нет взаимодействия	Нет взаимодействия
Zr	до 800 °С	до 800 °С
Sn	совместим	совместим

Влияние облучения на карбиды урана. Карбиды урана, как реакторное топливо, используются ещё недостаточно и значительно меньше, чем оксиды. Однако данные по поведению карбидов под действием облучения (нейтронами) свидетельствует об их высокой радиационной устойчивости. Проведённые исследования по радиационной стойкости карбидов подразделяются на две группы:

- 1) исследования при низких температурах облучения и малых флюенсах с целью выявления структурных изменений;
- 2) исследования при больших тепловыделениях и температурах в условиях, приближающихся к эксплуатационным. Целью последних является изучение практической возможности использования карбидного топлива при больших выгораниях и высоких температурах.

При облучении карбидов флюенсом нейтронов до 10^{19} см^{-2} их электросопротивление повышается, достигая насыщения при одной для всех карбидов величине флюенса $5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ (рис. 8.2). Однако величина прироста электросопротивления различна – для различных карбидов. Она – наибольшая для монокарбида и наименьшая – для бикарбида. Отжиг снижает электросопротивление, но повторное облучение даёт ещё более значительное его повышение.

³ САП – спеченный алюминиевый порошок (Al + 13% Al₂O₃).

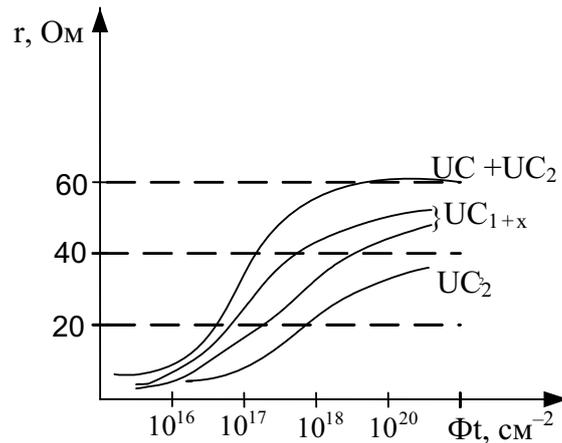


Рис. 8.2. Зависимость электросопротивления различных карбидов урана от флюенса нейтронов

Наряду с изменением электропроводности при облучении монокарбида происходит уменьшение плотности и увеличение периода решетки, причем насыщение достигается приблизительно при том же флюенсе, как и для прироста удельного электросопротивления, а именно, немного выше 10^{17} см^{-2} . Наибольшее относительное увеличение параметра стехиометрического карбида согласуется с изменением его плотности. Это свидетельствует о том, что изменение плотности полностью определяется изменением размеров ячейки, но не за счёт увеличения пористости (рис. 8.3). Указанные выше изменения в карбидах урана под действием облучения напоминают явления, происходящие в металлическом уране и его сплавах, однако в карбидах они значительно больше по величине. Так, электросопротивление UC повышается на 160 %, а плотность уменьшается на 0,5 %, тогда как в металлическом уране первая величина равна 4...5 %, а вторая исчезающе мала.

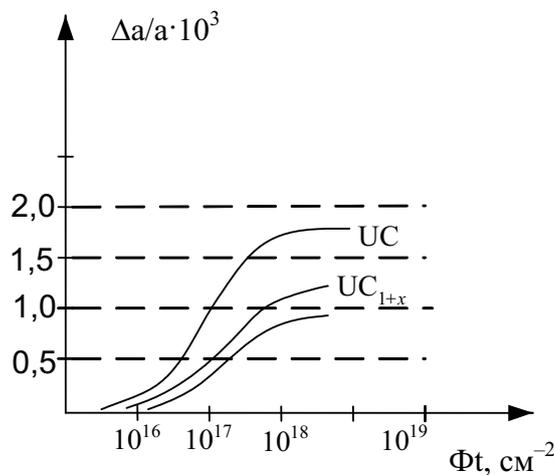


Рис. 8.3. Увеличение периода решетки карбидов урана под действием облучения

Изделия из карбидов урана, применяемые для изготовления ТВЭЛ, представляют собой таблетки кольцевого сечения, стерженьки, порошки микросфер с размером частиц около 500 мкм. При облучении этих изделий в реакторе в условиях, близких к эксплуатационным, было найдено, что поведение их определяется стехиометричностью состава и способом изготовления. Так, плотные плавленые карбиды меньше выделяют газообразных продуктов деления, чем спеченные. Кроме того, по-разному изменяется их плотность и размер, см.

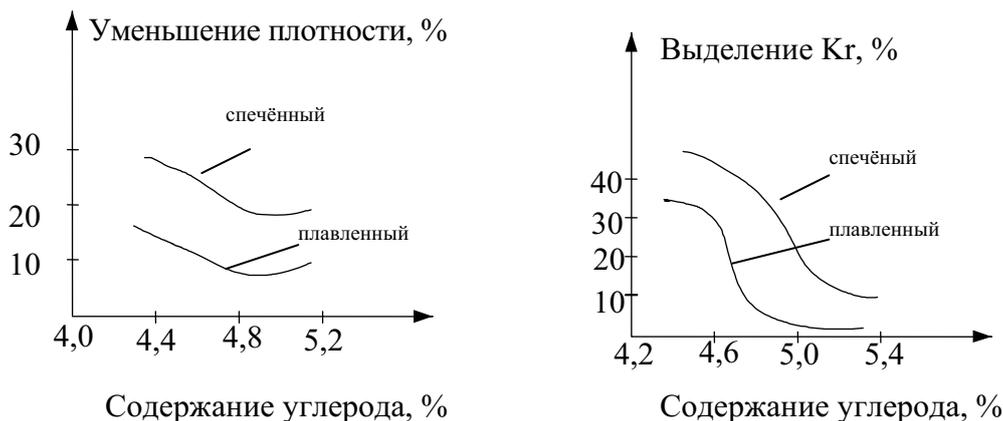


Рис. 8.4. Изменение плотности и выделение ГПД из карбида урана в зависимости от содержания углерода и способа изготовления образца

Застехиометрические карбиды (~ 5,2 % вес. С) более устойчивы, при одних и тех же выгораниях, чем стехиометрические и достехиометрические (< 4,8 % вес. С), рис. 8.5.

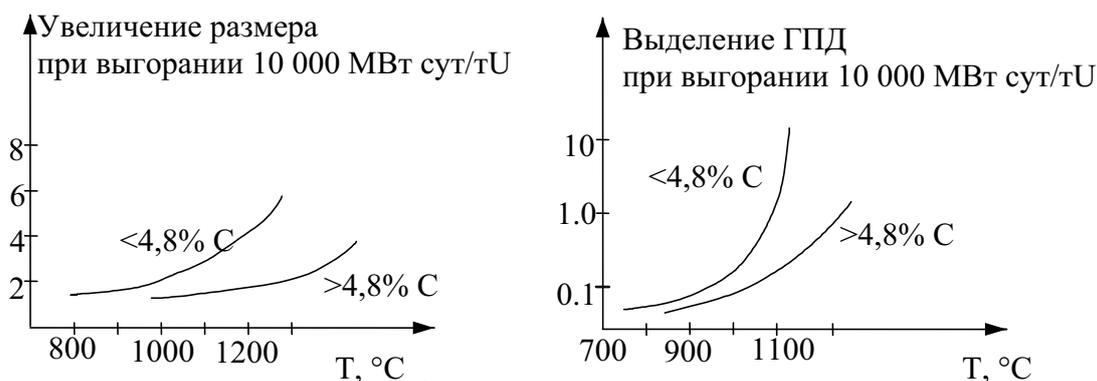


Рис. 8.5. Увеличение размера изделий из карбидов и выделение ГЦД при различных температурах облучения

Монокарбид урана, как уже отмечалось, имеет теплопроводность значительно выше, чем у диоксида, причём с ростом температуры она, в отличие от диоксида, растёт, а не уменьшается (рис. 8.6).

Следовательно, при данной скорости деления и геометрии ТВЭЛа температура в центре карбидного топлива много меньше, чем в центре

оксидного топлива, меньше в нём и температурные градиенты. Это, в свою очередь, влияет на поведение топлива и продуктов деления.

Так, структура карбидного топлива не перестраивается, размер и форма зёрен не меняются. Поры в зёрнах мигрируют к их границам вместе с газообразными продуктами деления. Газовые пузырьки скапливаются на границах зёрен и при растрескивании топлива газ выходит под оболочку. Однако вследствие меньших (по сравнению с диоксидом урана) градиентов температур и повышенной плотности, карбиды урана лучше удерживают газ и, таким образом, имеют повышенную скорость распухания. Она в 2 раза больше, чем у диоксида. В конструкции ТВЭЛ это учитывают, увеличивая зазор между топливом и оболочкой (до 10 мкм), и заполняя его натрием. Обычно карбидные таблетки растрескиваются на крупные куски, которые, занимая произвольное положение, могут оказывать локальное воздействие на оболочку, нагружать её и разрушать. Нанесение покрытия на внутреннюю поверхность оболочки уменьшает возможность разрушения.

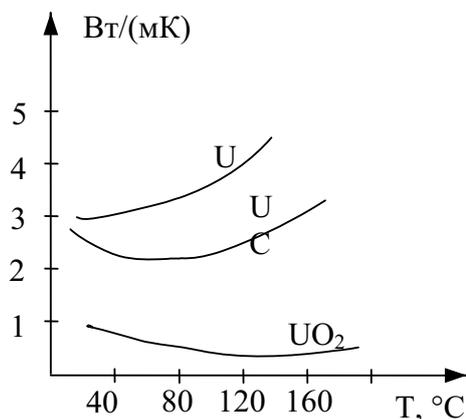


Рис. 8.6. Зависимость теплопроводности металлического урана, карбида урана и диоксида урана от температуры

С целью улучшения эксплуатационных свойств карбидов и получения образцов высокой плотности, без трещин и дефектов структуры, при их изготовлении используют добавки интерметаллидов UAl_2 , U_3Si_2 , UBe_{12} . Но облагораживающее действие добавок происходит только в том случае, если карбид урана довольно чистый. Если же в нём имеется остаток кислорода, то добавки не улучшают, а ухудшают спекание.

Топливные сердечники из карбидного топлива (карбидов и мононитридов урана и тория) [18].

Монокарбид урана (UC) отличается изотропностью свойств, высокой плотностью и теплопроводностью.

Распространенной геометрической формой топливного сердечника из UC является сплошной цилиндрический стержень длиной 25...200 мм. Заготовки отливают в многопозиционную графитовую изложницу, получая

высокую точность диаметральных размеров (выдерживается допуск 0,025 мм на диаметр 22 мм), что устраняет последующую механическую обработку наружной поверхности. Затем торец обрабатывают алмазным кругом без охлаждения. Таким способом были изготовлены сердечники для реакторов HNPE и LSGR (США). Сердечники из карбида методом порошковой металлургии получают с несколько меньшей плотностью (80...97 %), чем литьем. Плотность 97 % достигают спеканием спрессованных таблеток из UC в вакууме или в аргоне при температуре порядка 2000 °С. Горячее прессование при температуре 1850 °С обеспечивает плотность 93 %, но этот метод малопроизводительный. Сердечники из карбида урана высокой плотности (~ 99 %) получают нагреванием спрессованных заготовок в высокочастотной дуге или электронном луче. Например, плотность выше 99 % топливных стержней $\varnothing 10...30$ мм обеспечивают дуговой плавкой UC в разреженной атмосфере аргона и центробежным литьем.

Предъявляют жесткие требования по допуску на содержание углерода в карбиде урана – $4,8 \pm 0,1$ %. Превышение верхнего предела углерода в UC-сердечнике приводит при температуре выше 538 °С к науглероживанию и растрескиванию оболочки, залитой Na. Содержание углерода менее 4,79 % может привести к взаимодействию избыточного урана с нержавеющей сталью оболочки и, как следствие, образованию легкоплавкой эвтектики.

Топливная крупка UC может быть покрыта слоем керамического материала путем осаждения из паровой фазы. Применяют метод виброуплотнения топливной карбидной крупки в оболочке. Топливные карбидные сердечники в виде микросфер изготавливают путем диффузионного отжига частиц из UO_2 , на поверхность которых нанесен слой углерода.

Дикарбид урана UC_2 применяют в компактном виде и в порошке. Методы получения топливных сердечников из UC_2 аналогичны методам для UC. Разница лишь в технологических режимах.

Дикарбиды урана и тория $(U, Th)C_2$ в виде частиц, покрытых пироуглеродом, в графитовых матрицах и оболочке в ТВЭЛах стержневого типа применяются в газовом высокотемпературном ядерном реакторе HTGR (США) и «Драгон» (Великобритания). При этом частицы $(U, Th)C_2$ покрывают дополнительно пироуглеродом.

Микротвэлы из UC_2 , UC_2/ThC_2 защищают оболочкой из металлов, оксидов и пироуглерода. Пироуглеродом их покрывают в кипящем слое, оксидами – используя реакцию гидролиза галоидных соединений металлов, металлом – осаждением из паровой фазы.

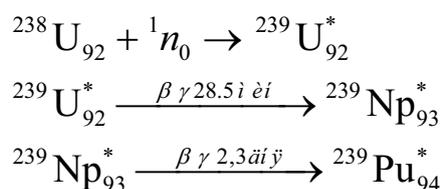
Технологические методы получения сердечников на основе **монокарбида плутония и твердых растворов** $(U, Pu)C$ в основном такие же, как и на основе карбидов урана.

9. ПЛУТОНИЙ И ЕГО СОЕДИНЕНИЯ

Плутоний был впервые получен в 1940 году группой исследователей, руководимой Г. Сторгом (США) при бомбардировке мишеней из ^{238}U ускоренными частицами.

В реакторе при длительном облучении образуются изотопы плутония с массовыми числами от 232 до 243 и с периодами полураспада ($T_{1/2}$) от 35 мин до $9 \cdot 10^5$ лет. Поскольку период полураспада изотопов плутония относительно мал, последние в природе не обнаруживаются. Однако, вследствие реакции ($n\gamma$) или (αn) урана, плутоний может быть найден в виде следов в урановых рудах ($\sim 5 \cdot 10^{12}$).

Практическое значение как топливо имеет только один изотоп ^{239}Pu с периодом полураспада 24360 лет, который, обладая способностью делиться под действием нейтронов, нарабатывается из изотопа ^{238}U и, таким образом, значительно расширяет энергетические возможности последнего.



Главное свойство плутония-239 – ядерное. Он способен делиться нейтронами всех энергий с уникально большим выходом вторичных нейтронов ($\nu = 3,1$) и причём с большой вероятностью ($\delta_f = 731$ б). Это открывает благоприятные перспективы его расширенного воспроизводства. Другие его свойства менее подходящие.

Так, у ^{239}Pu мала доля запаздывающих нейтронов (0,003...0,004), а у урана (0,0065...0,0075). Это означает, что при прочих равных условиях плутониевый реактор будет ближе к мгновенно критическому, чем урановый.

Суммарная мощность дозы нейтронов и гамма-квантов на поверхности свежего ТВЭЛ с регенерированным плутонием составляет 50 мкр/сек, что в 70 раз превышает ПДД. Более того, хранение такого ТВЭЛ в течение года превышает эту дозу ещё в 2 раза за счёт накопления радиоактивного изотопа ^{241}Am ($E_\gamma = 60$ кэВ). Кинетическая энергия α -частиц при распаде ^{239}Pu превращается в тепловую. Поэтому слиток плутония в 50 г имеет температуру на $5 \dots 10$ °С выше окружающей.

Благодаря своей высокой радиоактивности и химической активности, плутоний чрезвычайно токсичен, из организма не выводится, так как аккумулируется в костной ткани. Плутоний легко образует аэрозоли. Биологический период полураспада материала, попавшего в организм через дыхание, приблизительно 200 лет. В связи с этим все работы с плутонием проводятся при условии герметизации объёма, в котором он находится.

Физические свойства плутония не менее интересны. Металлический плутоний может находиться в 6 аллотропических состояниях.

Переходы между ними и связанные с этим изменения некоторых свойств приведены в табл. 9.1.

Таблица 9.1

Физические свойства плутония

Фаза	Температура, °С	Тип решетки	Плотность при °С г/см ³	Коэффициент теплопроводности 10 ⁻⁶ °С ⁻¹	Изменение объема, %
α	<122	моноклин	19,8	55	8,9
β	218	о.ц. моноклин	17,8	35	2,4
γ	310	г.ц. орторомб	17,1	36	67
δ	450	г.ц.к	15,9	-21	-0,4
η	472	г.ц. тетрагон	16,0	-65,6	-3,0
ε	< $T_{пл} = 640$	о.ц.к.	16,48	4	0,1

Наиболее удобная δ -фаза существует только до 30 °С. Температура плавления плутония равна 640 °С, а температура кипения $T_{кип} = 3227$ °С.

По химическим свойствам плутоний во многом подобен урану, но легко отделим от последнего химическим путём. Плутоний обладает также высокой растворимостью и способностью образовывать легкоплавкие сплавы с элементами: Ni, Bi, Fe Sn, Co, Ce, Pb. Такие сплавы могут рассматриваться как перспективное топливо для жидкотопливных реакторов (ЖТР).

Химическая активность, большое число фаз, при переходах которых физические свойства претерпевают значительные изменения, делают невозможным применение металлического плутония в качестве топлива. Кроме того, плутоний является слишком «концентрированным» делящимся материалом и для применения его в качестве топлива требуется разбавление.

Существующие данные показывают, что при легировании плутоний ведет себя аналогично урану. В то же время для плутония характер-

но более сильное стремление к образованию интерметаллических соединений. Легирование плутония облегчает производство топлива, улучшает стабильность его размеров (устранением фазовых превращений) и повышает его коррозионную стойкость. В качестве легирующих элементов часто используют Al, Ga, Mo, Th, Zr. Примеры сплавов на основе плутония приведены в табл. 9.2.

Таблица 9.2

Примеры сплавов плутония

Pu + 3 – 13 % Al	Стабилизация δ -фазы и коэффициента термического расширения
Pu + 3,9 – 22,9 % Zr	Стабилизация δ -фазы
Pu + 3,59 % Ga	Стабилизация δ -фазы коррозионная стойкость
$\left. \begin{array}{l} 80 \% \text{ Pu} + \text{Ce} + \text{Ni} \\ 80 \% \text{ Pu} + \text{Ce} + \text{Co} \end{array} \right\}$	Получение легкоплавкого сплава ($T_{\text{пл}} = 475 \dots 450 \text{ }^\circ\text{C}$)
U + Pu + 14 % Mo	Повышенная радиационная стойкость

Кроме UPuMo тройных сплавов повышенной радиационной стойкостью обладает сплав плутония с его осколками деления (фиссиумом). Однако плутониевый фиссиум отличается по составу от уранового и более агрессивен по отношению к оболочке ТВЭЛ (табл. 9.3).

Таблица 9.3

Состав сплава Pu + фиссиум

Элемент	Содержание, %	Элемент	Содержание, %
Zr	0,81	Ce	0,74
Nb	0,05	Fe	2,50
Mo	0,77	C	0,01
Ru	1,22	O	0,01
La	1,9	Pu	91,99

Среди керамических соединений плутония наибольшее значение имеют его диоксид и карбид.

Впервые таблетки 75 % UO₂ + 25 % PuO₂ были испытаны в реакторе «Рапсодия», а таблетки UO₂ + 15...20 % PuO₂ в реакторах «Феникс» и PFR.

Особенностью смешанного уран-плутониевого оксидного топлива является его достехиометрический состав, т. е. в этом соединении недостаёт атомов кислорода. Это влияет на поведение топлива при облучении (распухание, перераспределение пористости и актинидов). Более летучий

UO₂ сосредоточивается в холодной области, а менее летучий PuO₂ – в горячей. Кроме того, существует ограничение на размер частиц смешиваемых оксидов, определяемое коэффициентом безопасности Доплера.

Частицы PuO₂ должны быть меньше 100 мкм. Такой размер обеспечивает быструю теплопередачу при изменениях мощности, а увеличивающаяся скорость деления ²³⁹Pu при повышении температуры компенсируется увеличением поглощения ²³⁸U.

Таблица 9.4

Свойства керамических соединений плутония

Соединение	Тип решетки	Плотн. г/см ³	T _{пл.} , °C	Содержание Pu % вес.	Сечение, барн	
					δ _f	δ _a
PuO ₂	Кубич.	11,46	2240	88,0	240	339
PuC	Кубич.	13,60	1850	95,0	358	505

Характерной чертой карбида плутония PuC является его сходство с UC, с которым он может образовывать твёрдые растворы во всей области концентраций. Обладая повышенной, по сравнению с оксидами, теплопроводностью и содержанием делящегося нуклида, смешанное (UPu) топливо перспективно для использования в реакторах на быстрых нейтронах.

10. ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ ИЗ ПЛУТОНИЯ [18]

Материалом для плутоний содержащих топливных сердечников могут быть сплавы Al–Pu, U–Pu, Mg–Pu, Zr–Pu, Th–Pu, U–Pu–Mo. Технологические процессы обработки сплавов плутония с ураном или торием, содержащих до 10 % плутония в твердом растворе, аналогичны процессам обработки урана или тория.

Плавка и литье плутония из-за его высокой химической активности затруднительны. На поверхности плутония образуется плотная оксидная пленка даже при вакууме порядка $1,33 \cdot 10^{-3}$ Па. Для разрушения этой пленки требуется перегрев плутония на несколько сот градусов выше температуры его плавления. При плавке успешно применяют медную водоохлаждаемую изложницу. Благодаря относительно хорошим литейным свойствам плутония (высокая жидкотекучесть, незначительное изменение объема при затвердевании) из него можно изготавливать сравнительно гладкие отливки с плоскими торцами.

Технология изготовления топливных сердечников пластинчатого типа из сплава PuAl₄, диспергированного в матрице из чистого Al, значительно сложнее. Плавку заготовок для них производят в открытом тигле, помещенном в герметичную камеру. Алюминий реакторной чистоты расплавляется первым, затем в тигель добавляют литые прутки из плутония, алюминий при этом защищает плутоний от окисления воздухом. Полученные слитки разрезают на диски.

Обработка давлением применяется для формирования прямоугольных пластин из крупных нарезанных дисков на гидропрессе, смонтированном в перчаточной камере. Матрицу подогревают специальными нагревателями до 350 °С, а пуансон – до 400 °С. Холодную заготовку помещают в нагретую матрицу и прессуют в виде прямоугольной пластины. Прессование применимо для изготовления топливных сердечников различного типоразмера – оно экономичнее прокатки. Прессование было использовано, например, для производства дисков диаметром 150,8 мм и толщиной 3,2 мм. Литую кольцевую заготовку подвергали черновому обтачиванию на токарном станке, затем прессованием из нее получали трубу, которую разрезали по образующей и выпрямляли в полосу. Диски из последней получали вырубкой на гидравлическом прессе с последующей чеканкой для повышения точности размеров.

Механическая обработка плутония аналогична обработке серого чугуна (это справедливо для α -плутония). Однако получение топливных сердечников с повышенной точностью размеров затруднительно из-за сочетания высокого коэффициента термического расширения плутония с его низкой теплопроводностью, а также из-за низкой температуры превращения фаз плутония $\alpha \rightarrow \beta$ (123 °С).

При проектировании технологических процессов с использованием плутония возникают специфические проблемы герметизации. Плутоний чрезвычайно ядовит (максимально допустимая активность его содержание в воздухе составляет всего $7,4 \cdot 10^{-8}$ Бк/см³). Выбор методов герметизации рабочих органов технологического оборудования и самих деталей зависит от процесса и от концентрации выделяющихся плутониевых аэрозолей. Если топливо изолировано в оболочке окончательно изготовленного и дезактивированного ТВЭЛа, то пользуются вытяжным шкафом. Одно из возможных решений – отсос аэрозолей из мест образования с последующим эффективным их отделением.

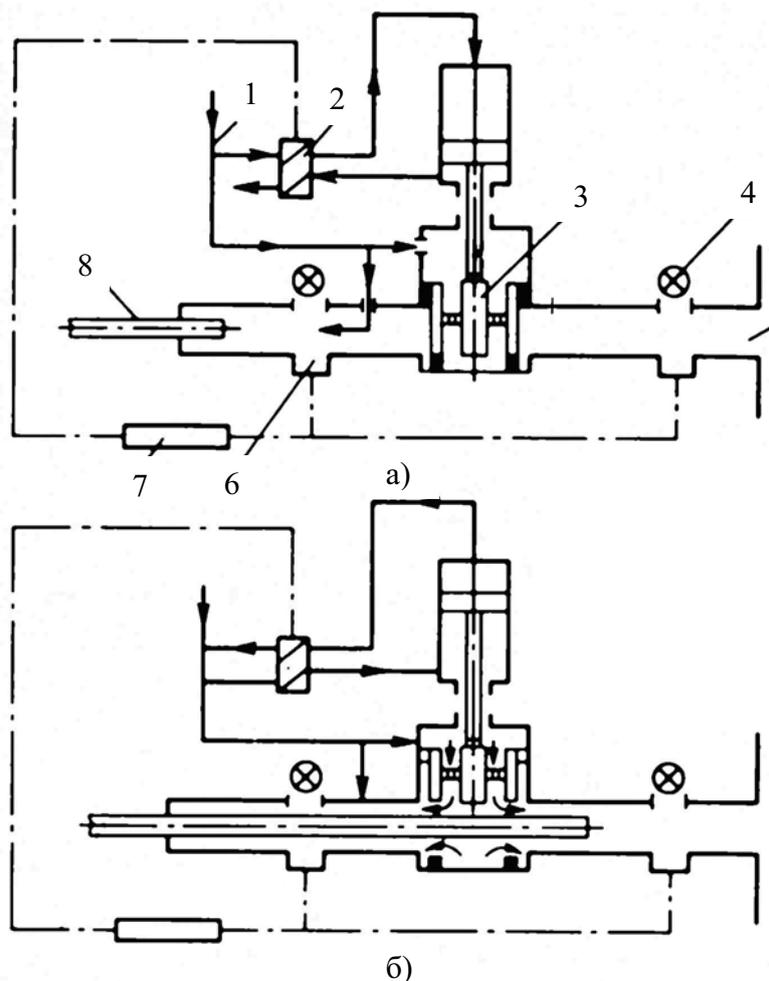
На заводе в Олдермастоне (Великобритания) спроектировано приспособление для введения ТВЭЛов в герметичный объем с сохранением в нем защитной атмосферы (рис. 10.1). Главный клапан (3) открывается, когда передний торец ТВЭЛа стержневого типа (8) доходит до первого фотоэлемента (6). Как только торец ТВЭЛа проходит второй фотоэлемент, клапан закрывается.

Таблица 10.1

*«Безопасные» размеры
для металлических систем с отражателем*

Делящийся материал	Масса, кг	Безопасный диаметр цилиндра, мм	Безопасная толщина пластины, мм
²³⁵ U	11,0	63	16
²³⁹ Pu	2,6	36	5
²³³ U	3,0	38	5

При проектировании технологических процессов изготовления деталей из ²³³U, ²³⁵U и ²³⁹Pu необходимо учитывать критическую массу. Она уменьшается с 22,8 кг для изолированной сплошной сферы до 12 кг для решетки из кубиков металлического урана размером 12,7×12,7×12,7 мм, до 6 кг для решетки из урановых стержней диаметром 3,18 мм, до 2 кг для стружки металлического урана. В табл. 10.1 приведены «безопасные» размеры деталей цилиндрической и пластинчатой форм из ²³³U, ²³⁵U, ²³⁹Pu.



*Рис. 10.1. Два положения газового затвора при закрытом (а) и открытом (б) герметизирующем объеме:
 1 – подача аргона; 2 – контрольный клапан; 3 – главный клапан;
 4 – источник света (лампа); 5 – герметизируемый объем;
 6 – фотоэлемент; 7 – пульт управления; 8 – ТВЭЛ*

Различные металлорежущие станки, выбор которых производится при проектировании технологического процесса изготовления реакторных деталей, должны быть переоборудованы, если обработку следует проводить в защитных камерах. Так был реконструирован горизонтально-фрезерный станок «Цициати N2ML», причем в нем, наряду с механическим управлением с пульта, сохранялось обычное управление, осуществляемое с помощью манипулятора.

11. ТОРИЙ И ЕГО СОЕДИНЕНИЯ

В настоящее время известны шесть природных и семь искусственных изотопов тория, из которых только один природный изотоп ^{232}Th имеет практическое значение. Этот изотоп не может быть использован как ядерное топливо, так как он испытывает деление только на нейтронах пороговых энергий и не поддерживает цепной реакции деления. Однако ^{232}Th может с успехом использоваться для наработки делящегося нейтронами всех энергий изотопа ^{233}U . Реакция получения изотопа, приведённая в п. 2, реализуется в активной зоне реактора. Таким образом, ^{232}Th играет роль ядерного сырья.

Природные запасы ^{232}Th в 3...5 раз превышают запасы урана, поэтому в будущем он может стать основным источником получения ядерного топлива. Металлический торий, как сырьё для воспроизводства, объективно обладает рядом преимуществ перед своими химическими соединениями (оксидами, карбидами и др.). Эти преимущества состоят в более высокой плотности воспроизводящих ядер и в отсутствии ядер разбавителей, снижающих концентрацию нейтронов, необходимых для воспроизводства.

По сравнению с металлическим ураном торий отличается намного лучшей радиационной стабильностью, обусловленной его простой структурой и отсутствием базовых переходов в доступном интервале температур (табл. 11.1).

Таблица 11.1

Кристаллическая структура тория

$\alpha\text{-Th}$	Менее $1400\text{ }^\circ\text{C} \pm 25\text{ }^\circ\text{C}$	Г.Ц.К
$\beta\text{-Th}$	$1400\text{ }^\circ\text{C} \dots T_{\text{пл}} = 1695\text{ }^\circ\text{C}$	

Температура плавления тория более чем на $600\text{ }^\circ\text{C}$ выше температуры плавления урана (п. 2), что свидетельствует о его более высокой термической стабильности. В табл. 11.2 приведены некоторые физические свойства тория.

Результаты радиационных испытаний показывают, что ураноториевые сплавы с массовой долей урана до 20 % по радиационной стабильности близки к чистому торию. На рис. 11.1 показано пове-

дение сплавов урана с торием ($\text{Th} + 0,1...31,0 \% \text{U}$) при температуре до $1000\text{ }^\circ\text{C}$ и глубине выгорания до 10% тяжёлых атомов.

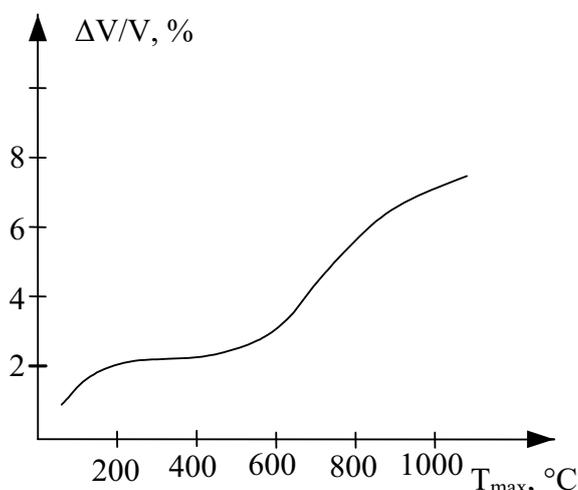


Рис. 11.1. Влияние максимальной температуры центра ТВЭЛ на распухание ураноториевых сердечников (выгорание до 10% тяжёлых атомов)

Как видно из рис. 11.1, скорость распухания ураноториевого топлива остается постоянной до температуры $500\text{ }^\circ\text{C}$ и равной 2% увеличения объема на 1% выгорания. В дальнейшем распухание растёт. Основной недостаток ураноториевых сплавов – их несовместимость с нержавеющей сталью. В связи с этим предлагают использовать оболочки из сплава ванадий-торий, которые предлагаются также для сердечников ТВЭЛ из уран-плутониевых сплавов.

Таблица 11.2

Физические свойства тория

Свойство	Размерность	Величина
Плотность	г/см^3	11,71
Температура плавления	$^\circ\text{C}$	$1690 \pm 10\text{ }^\circ\text{C}$
Температура кипения	$^\circ\text{C}$	$3000\text{ }^\circ\text{C}$
Коэффициент линейного расширения		
30...100 $^\circ\text{C}$	$^\circ\text{C}^{-1}$	$11,5 \cdot 10^{-6}$
30...1000 $^\circ\text{C}$	$^\circ\text{C}^{-1}$	$12,5 \cdot 10^{-6}$
Удельная теплопроводность		
100 $^\circ\text{C}$	$\text{Вт/}(\text{мК})$	38
650 $^\circ\text{C}$	$\text{Вт/}(\text{мК})$	45
Эффективное сечение для тепловых		
нейтронов рассеяния	барн	12,6
поглощения	барн	7,4

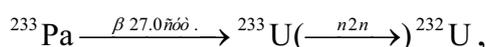
Исследование плутоний-ториевых сплавов выявило их существенный недостаток, обусловленный низкой температурой плавления плутония (см. п. 9). Это ведет к образованию двойных и тройных сплавов U–Pu–Th, существенно меняющих свойства ТВЭЛ.

Перспективным для облучения в реакторе является диоксид тория ThO₂. Несмотря на то, что он обладает пониженной, по сравнению с UO₂, плотностью и содержанием тяжёлого элемента (9,82 г/см³, 87,8 % вес. Th), теплопроводность ThO₂ при облучении снижается меньше, чем у UO₂. Это позволяет топливу на основе ThO₂ работать при более низкой температуре центра ТВЭЛ по сравнению с UO₂ при одинаковой энергонапряжённости. Кроме того, диоксид тория имеет постоянный, кислородный коэффициент, что оказывает стабилизирующее влияние на теплопроводность, в отличие от UO₂.

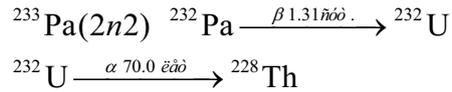
Вообще, диоксид тория является одним из самых устойчивых оксидов. Его температура плавления равна 3300 °С и он может существовать в аморфном или кристаллическом состояниях. При низкой степени выгорания рекомендуется сплав 97,5 % ThO₂ + 2,5 % UO₂ с плотностью 96 % от теоретической.

Кроме оксида тория может рассматриваться возможность применения карбида тория ThC, теплопроводность которого выше, чем диоксида ThO₂. Однако следует иметь в виду, что плотность карбидов тория на 15...25 % ниже, чем у карбидов урана. Различие точек плавления даёт преимущества ториевому циклу⁴, а различие плотностей – урановому. В конечном счёте различие плотностей оказывается более существенным фактором.

При выборе тория, как сырья для воспроизводства делящегося нуклида, необходимо учитывать не только его физико-химические свойства, но и ядерные свойства. Дело в том, что наряду с наработкой целевого ²³³U, в ядерном реакторе торий участвует в других процессах (*n2n*), (*n3n*), (*γn*) с небольшими скоростями, но ведущими к образованию, хотя и в небольших количествах, высокоактивных альфа-, бета- и гамма-излучателей. Эти излучатели (вещества) осложняют повторное применение ядерного топлива и определяют в значительной мере технологические трудности внешней части топливного цикла. Так, при облучении тория в ядерном реакторе могут накапливаться изотопы ²³²U и ²²⁸Th, которые не могут быть химически отделены от урана и тория. Образование их может идти по схеме:



⁴ Топливным циклом называется вся совокупность технологических операций, включающая получение топлива, его облучение с последующим переделом, возвращение на повторное облучение или захоронение (хранение) [17]



Следует отметить, что в урановом цикле при накоплении плутония образуется плутоний-236, также распадающийся в уран-232.

Для сравнения укажем, что максимальная мощность экспозиционной дозы, Р/ч на расстоянии 1 м от точечного однограммового источника различного состава равна:

${}^{232}\text{U}$ + продукты распада	– 12,1
${}^{235}\text{U}$ + ${}^{231}\text{Th}$	– $1,6 \cdot 10^{-7}$
${}^{238}\text{U}$ + ${}^{234}\text{U}$, ${}^{234}\text{Pa}$	– $2,8 \cdot 10^{-9}$

Концентрация ${}^{232}\text{U}$, накапливающегося при разовом облучении тория в реакторе, может достигать 100 г ${}^{232}\text{U}/\text{м}^3$ ${}^{233}\text{U}$ и более. Уран-232 может стать источником столь значительной радиоактивности, что уже менее чем через две недели после химической очистки урана потребуется защита и дистанционная техника.

Решение проблемы ${}^{232}\text{U}$ является принципиально важным моментом ториевого топливного цикла, так как его преимущества основываются как раз на повторном использовании ядерного топлива.

12. ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ НА ОСНОВЕ ТОРИЯ [18]

В последнее время торий стал играть важную роль в производстве ядерной энергии. Природный торий, состоящий из одного изотопа ^{232}Th , под действием нейтронов превращается в изотоп урана ^{233}U , который подобно ^{235}U и ^{239}Pu может служить ядерным топливом. Торий позволяет осуществлять воспроизводство ^{233}U . Получают его, как правило, в виде порошка или губки; дальнейшая переработка в компактную форму осуществляется металлокерамическим способом или переплавкой.

Плавка и литье тория. Химическая активность и высокая температура плавления тория создают ряд технологических затруднений. Плавку ведут в индукционных вакуумных печах в тиглях из оксида бериллия с донным разливом в графитовую изложницу (рис. 12.1). Плавильный тигель (5), изложница (9) и все связанные с ними устройства помещены в герметичную камеру (11), нижняя часть которой охлаждается водой. Теплоизоляцией является слой графитового порошка (3), засыпанного в кольцевое пространство между графитовым тиглем (4) и внутренней кварцевой трубой (2). Нижняя часть камеры присоединяется к вакуумной системе. Плавильный тигель из оксида бериллия вставлен в графитовый предохранительный тигель, который нагревается индуктором, смонтированным снаружи кварцевого колпака (1). После загрузки спрессованных брикетов из губки или порошка тория в печи создается вакуум 0,133 Па и включается нагрев при непрерывной откачке. Для выпуска металла из тигля изложницу поднимают, одновременно открывая пробку (6) из оксида бериллия. Для плавки тория используют также дуговые печи с расходуемыми электродами.

Обработка давлением. *Ковка под молотом и ротационная ковка.* У слитков, предназначенных дляковки, удаляют прибыльную часть и устраняют все поверхностные дефекты, приводящие к растрескиванию материала. Торий хорошо куется в интервале температур 750...955 °С. Слитки диаметром от 75 до 120 мм нагревают в муфельной печи в гелиевой атмосфере до 815 °С и подвергают ковке на воздухе в открытых штампах под пневматическим молотом с промежуточными отжигами.

Ротационную ковку применяют для получения проволоки и прутков небольшого диаметра. Пластинчатый торий можно подвергать ротационной ковке при комнатной температуре с обжатием до 98 %. Промежуточ-

ные отжиги при этом способе не требуются. Например, выдавленный пруток диаметром 25 мм проковывается до диаметра 1,7 мм. Ротационная ковка экономична и обеспечивает точность по диаметру прутка 0,08 мм.

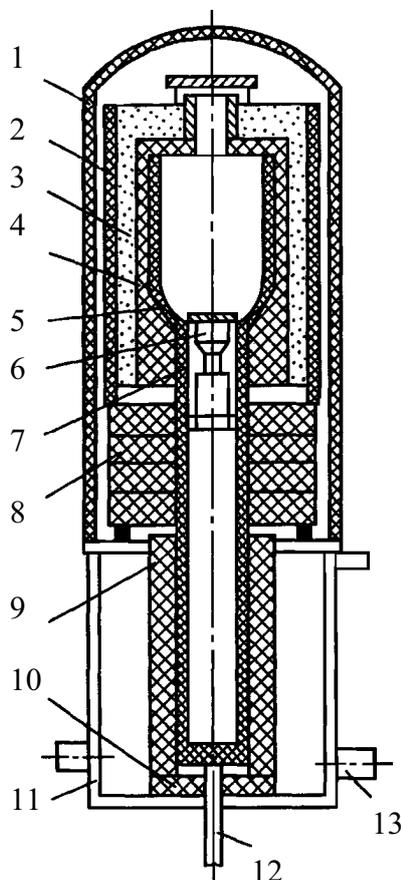


Рис. 12.1. Схема индукционной печи для плавки тория:

1 – кварцевый колпак; 2 – кварцевая труба; 3 – графитовый порошок; 4 – графитовый тигель; 5 – тигель из оксида бериллия; 6 – пробка из оксида бериллия; 7 – графитовая вставка для подъема пробки и слива металла в изложницу; 8 – огнеупорная изоляция; 9 – графитовая изложница; 10 – подставка из графита для изложницы; 11 – стальная камера, охлаждаемая водой; 12 – стержень для подъема изложницы; 13 – патрубок, подсоединяемый к вакуумной системе

Прокатка. Чистый торий весьма пластичен и его прокатка не вызывает трудностей. Горячую прокатку осуществляют в интервале температур 750...900 °С в зависимости от размера слитка и требуемой степени деформации. Прокатку тория обычно проводят в закрытых контейнерах. Для предварительной прокатки используют ромбическую или квадратную калибровку, для чистовой применяют систему круг–круг.

Прессование используют для получения заготовок ТВЭЛов и для производства готовых изделий. В интервале температур 750...950 °С давление прессования тория находится в диапазоне 392...1471 МПа.

Нагрев тория перед прессованием приводит к его окислению, торий налипает на инструмент, и на заготовках образуются задиры. Разработаны специальные технологические приёмы, позволяющие резко снизить этот нежелательный эффект.

Прессование в оболочках. На рис. 12.2 приведена схема инструмента для выдавливания прутка из тория в медной оболочке, которая устраняет непосредственное соприкосновение ториевой заготовки со стальным инструментом и улучшает условие смазки при выдавливании за счет лучших антифрикционных свойств пары медь–сталь.

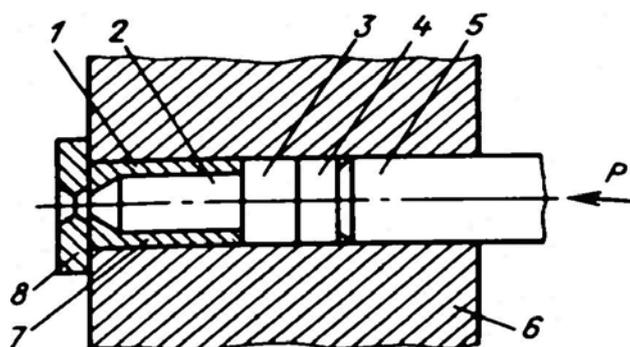


Рис. 12.2. Схема инструмента для выдавливания топливного сердечника из тория в оболочке:

- 1 – медная оболочка; 2 – слиток тория; 3 – графитовая шайба;
4 – пресс-шайба; 5 – пуансон; 6 – обогреваемый контейнер;
7 – подкладной конус; 8 – матрица

Прессование без оболочек основано на предварительном нагреве заготовок перед прессованием в соляных ваннах. Расплавленная соль является не только нагревательной средой, но и средством защиты заготовок от окисления. Однако в этом случае давление прессования и износ матрицы больше, чем при прессовании в оболочке.

Прессованием были получены ториевые прутки диаметром от 24,5 до 37 мм из заготовок диаметром 147...171 мм при длине соответственно 294...443 мм на 2400-тонном прессе (рис. 12.3). Слитки перед прессованием нагревали в соляных ваннах при температуре 740 °С в течение 1 ч.

Волочение рекомендуется проводить со специальной смазкой, так как торий обладает низкими антифрикционными свойствами и склонен к налипанию на поверхность инструмента. Иногда применяют волочение в медной оболочке, выполняющей функцию смазки.

Механическая обработка сердечников из тория сопровождается налипанием тория на режущую кромку инструмента и выделением большого количества тепла. Рекомендуется применять охлаждающую жидкость и соблюдать предосторожность, чтобы предотвратить попадание частиц тория в органы дыхания. Для заготовки, содержащей неме-

таллические включения, используют инструмент с пластинами из твердого сплава. Для большинства чистовых операций наиболее пригоден инструмент из быстрорежущей стали с углом резания $10...20^\circ$. Обычно скорости резания находятся в диапазоне $60...90$ м/мин. При чистовом торцевании обеспечивают подачу $0,3$ мм/об. Глубина резания при развертывании не должна превышать $0,075$ мм. Нарезание резьбы лучше осуществлять однопрофильным токарным резцом.

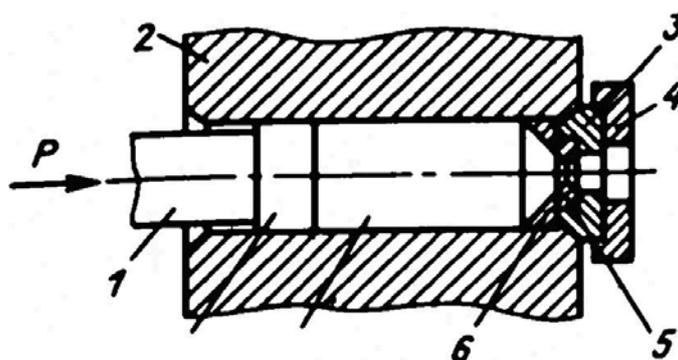


Рис. 12.3. Схема пресс-инструмента

для выдавливания топливных сердечников из тория:

1 – пуансон; 2 – стальной контейнер; 3 – матрицедержатель; 4 – опорная плита;
5 – матрица; 6 – подкладной конус; 7 – ториевый слиток; 8 – пресс-шайба

При хранении стружки следует иметь ввиду, что мелкая стружка тория более склонна к возгоранию, чем крупная.

Топливные сердечники из металлокерамики на основе тория нашли широкое распространение и изготавливаются по следующему технологическому маршруту.

Прессование характеризуется хаотическим перемещением частиц. Достижимая степень уплотнения брикетов зависит от свойств порошка, физико-механических свойств металла и режимов прессования.

Спекание проводят для упрочнения сцепления между частицами и превращения брикета в компактный металл за счёт усадки, т. е. сокращения объема пор. Превалирующими факторами являются температура спекания и время выдержки.

Калибровочное (повторное) прессование позволяет получать заготовки, по своим свойствам не уступающие литым; его проводят при давлении $981...1177$ МПа.

Отжиг (повторное спекание) осуществляют в вакууме при 1100 °С. В результате повторного прессования и отжига повышаются прочность и пластичность материала.

13. ДИСПЕРСИОННОЕ ТОПЛИВО

Дисперсионным ядерным топливом (ДТ) называется специальное однородное по составу вещество, содержащее две и более фазы, из которых одна фаза – ядерное топливо, а вторая (или остальные) представляют собой нетопливный (неделяющийся) материал. ДТ изготавливается методом порошковой металлургии. Процессы деления в ДТ и сопутствующие им повреждения сосредоточены в областях, занятых топливной фазой, в то время как нетопливная фаза должна оставаться неповрежденной. Таким образом, ДТ реализует идею создания ядерного топлива с заданными выгодными теплофизическими и другими свойствами.

Наибольшее распространение получили два вида ДТ:

1. Металлическое – гетерофазный сплав металлического ядерного топлива с каким либо металлом из числа не делящихся. Примером такого ДТ может служить топливо первой АЭС (U + 9 % Mo-Mg). Здесь металлическое топливо (U + 9 % Mo) образует гетерофазный сплав с магнием.
2. Металлокерамическое (кермет) – это диспергированные в какой-либо подходящий металл или сплав частицы керамического ядерного топлива (UO₂, UC и др.). Такое топливо и составляющие его компоненты должны соответствовать целому ряду требований.

Неделящуюся фазу ДТ называют матрицей. Возможные комбинации ядерного топлива и материалов матрицы показаны на рис. 13.1.

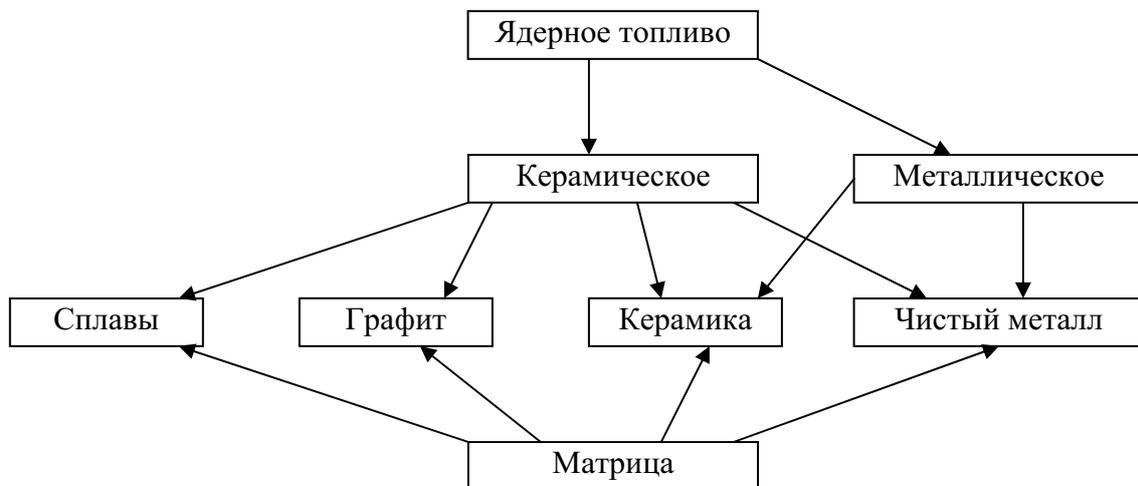


Рис. 13.1. Возможные комбинации состава дисперсионного топлива

Главное требование, предъявляемое к дисперсионному топливу – сохранность матрицы от радиационных повреждений осколками деления. Наиболее наглядно решение этой проблемы можно рассмотреть на примере металлокерамического дисперсионного топлива.

Топливные частицы кермета должны иметь сферическую форму и размер 50...800 мкм. Выполнение этих требований позволяет сохранить прочность матрицы близкую к первоначальной и контролировать выход осколков за пределы топливной частицы и размеры поврежденных областей матрицы. Выбираемый размер частиц зависит от концентрации в них делящегося нуклида. Так, слабообогащенные частицы UO_2 могут иметь диаметр до 800 мкм, частицы высокообогащенной UO_2 – 600 мкм, частицы смешенного топлива $(UPu)O_2$ – 500 мкм. На рис. 13.2 показано, как с уменьшением размера частицы растет доля осколков деления, покидающих эти частицы.

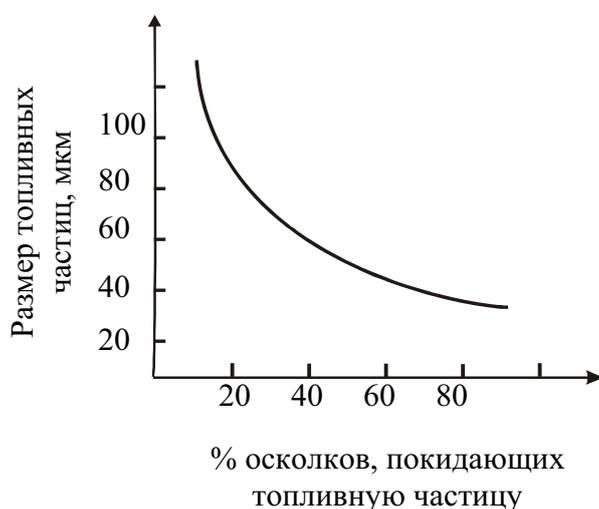


Рис. 13.2. Соотношение между диаметром сферической частицы и долей осколков деления, покидающих ее

Осколки деления, покидающие топливную частицу, проникают в матрицу на глубину порядка длины свободного пробега в ней. Длина пробега осколков деления в различных материалах показана в табл. 2.3.

Таким образом, каждая топливная частица, находящаяся в матрице, окружена «поясом порчи» толщиной порядка длины пробега осколка. Для композиции (UO_2 – нерж. сталь) толщина «пояса порчи» находится в пределах 4...10 мкм, а среднее ее значение составляет 5,5 мкм.

В этих условиях считается, что матрица состоит как бы из двух частей: неповрежденной и поврежденной (рис. 13.3).

Необходимым условием сохранения первоначальных свойств матрицы ДТ является преобладание у неё неповрежденного объема. Если обозначить V_m – поврежденный объем матрицы, равный сумме всех объемов «поясов порчи»; V – полный объем матрицы; D – диаметр топливной час-

тицы; λ_m – длина пробега осколка в матрице; V_f – объемная доля топливной фазы в ДТ; то в этом случае справедливо следующее соотношение:

$$\frac{V_m}{V} = \frac{V_f}{1-V_f} \left[\left(1 + \frac{1}{D/2\lambda_m} \right)^3 - 1 \right].$$

При конструировании ТВЭЛ обычно используют такой показатель, как относительный неповрежденный объем матрицы:

$$1 - \frac{V_m}{V}.$$

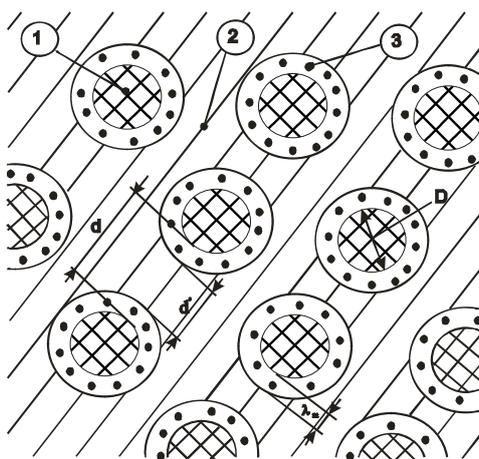


Рис. 13.3. Структура кермета:
1 – топливная частица; 2 – матрица;
3 – поврежденная область матрицы «пояс порчи»

Графически зависимость этой величины от показателя $D/2\lambda_m$ приведена на рис. 13.4 [6].

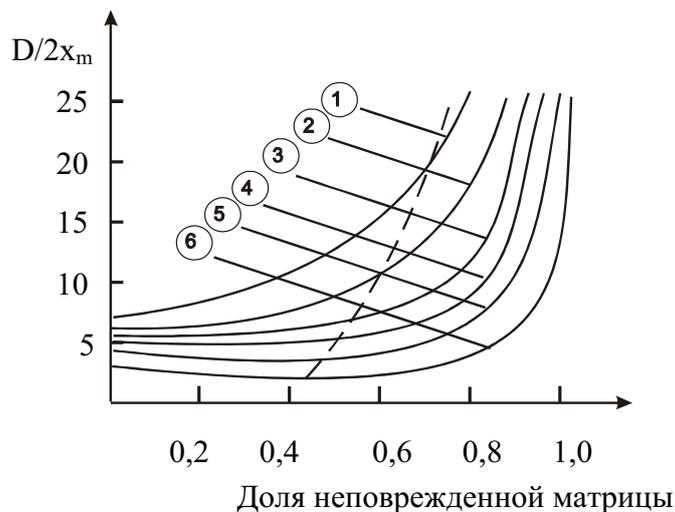


Рис. 13.4. Зависимость доли поврежденного объема матрицы от параметра $D/2\lambda_m$ при различных значениях V_f

N	1	2	3	4	5	6
V_f	0,6	0,5	0,4	0,3	0,2	0,1

На рис. 13.4 проведена пунктирная линия, разделяющая две области графиков: правую и левую. Область слева содержит параметры ДГ, при которых может наблюдаться смыкание «поясов порчи» соседних частиц и разупрочнение всей системы. Область справа от пунктирной кривой, наоборот, содержит параметры, при которых смыкание «поясов порчи» не наблюдается. В связи с этим, из рис. 13.4 можно сделать вывод относительно выбора величины V_f – объёмной доли топливной фазы, которая не должна быть больше 0,6. Для уточнения выбора V_f были проведены расчёты [6] и предложена зависимость, связывающая три переменные:

- D – диаметр частиц,
- d – расстояние между частицами,
- V_f – объёмную долю топлива в ДГ.

Эта зависимость имеет вид:

$$d = D \left[\left(\frac{\pi}{3\sqrt{2V_f}} \right)^{1/3} - 1 \right].$$

Согласно этой зависимости, при $V_f=0,74$ все топливные частицы будут находиться в контакте, что нежелательно. Кроме того, указанные расчёты позволили сопоставить V_f и d . При этом расстояние между топливными частицами, d , рассматривается, как состоящее из двух участков: повреждаемого λ_m и неповреждаемого d' (см. рис. 13.3):

$$d = d' + 2\lambda_m.$$

Наглядно результаты такого сопоставления даёт график, представленный на рис. 13.5.



Рис. 13.5. Зависимость расстояния (d) между частицами от их диаметра (D) при различных V_f

Следуя графикам (рис. 13.5), на практике выбирают долю топливной фазы в ДГ (V_f) не более 0,4. Вообще говоря, расстояние между частицами делящейся фазы сокращается с уменьшением радиуса частиц и ростом объёмного содержания делящейся фазы. Следовательно, чем меньше частицы и чем больше их в дисперсионной композиции, тем больше будет объём матрицы, повреждённой осколками деления.

Помимо высказанных выше соображений, степень повреждения матричного материала зависит ещё от способности топливных частиц удерживать в себе продукты деления, в частности газообразные. Эта задача имеет, кроме прочих, одно инженерное решение. Оно состоит в том, что сферические частицы топливной фазы защищают многослойным покрытием (рис. 13.6).

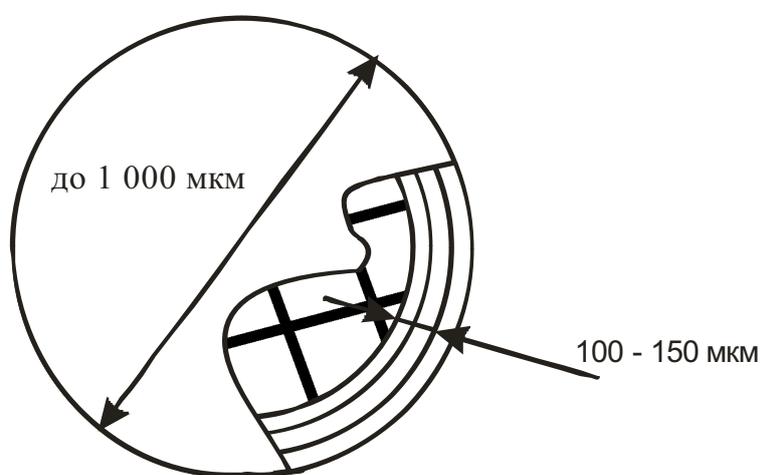


Рис. 13.6. Топливная частица с многослойным покрытием

Порошки UO_2 могут быть покрыты тонкой плёнкой тугоплавких металлов (ниобием, вольфрамом) или керамикой (окись алюминия, бериллия). По сравнению с металлическими, керамические покрытия менее пластичны, поэтому в некоторых случаях наносятся комбинированные покрытия из металла и керамики, при этом последовательность слоев может быть разной. В качестве защитного покрытия топливных частиц с упомянутыми материалами широко применяется пироуглерод, называемый так потому, что наносится пиролитическим способом, обозначаемый символом PuC^5 . Покрытие на микрочастицах топлива (UC_2 , ThC_2 , UO_2) удовлетворительно задерживает ГПД при температуре до $1800\text{ }^\circ\text{C}$, однако не защищает от других осколков. Поэтому в большинстве случаев для задержания осколков и ГПД применяют трехслойные покрытия: PuC , SiC , PuC . Назначение каждого слоя различно. Внутреннее пористое PuC покрытие задерживает продукты деления, уменьшает распухание, защищает

⁵ Пиролитический графит

хрупкий SiC от взаимодействия с некоторыми осколками и придаёт механическую прочность топливной частице. Средний слой карбида кремния, обладая жёсткой и прочной структурой, препятствует выходу осколков щелочно-земельных летучих соединений из топлива. Наружный слой PyC служит механической опорой SiC, защищая его от разрушения.

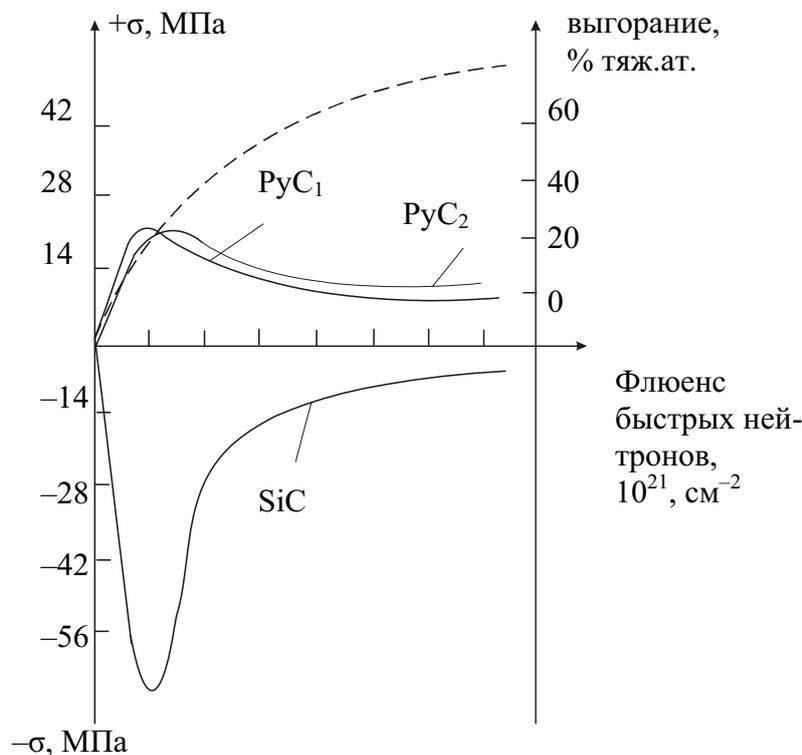


Рис. 13.7. Зависимость напряжений в защитных слоях (сплошные кривые) и выгорания (пунктир) от флюенса

Ещё одной особенностью комбинированного трёхслойного покрытия (PyC , SiC, PyC) является характер напряжений, возникающих в слоях при эксплуатации. На рис. 13.7 показана зависимость напряжений в слоях от выгорания. На этом рисунке видим первоначальный пик сжатия SiC и пики растяжения PyC . С увеличением выгорания пики уменьшаются, но в течение всей кампании PyC находится под растягивающим напряжением, а SiC — под сжимающим. Это одна из причин большой стабильности покрытий из карбида кремния по сравнению с PyC . Несмотря на свою положительную роль, защитные покрытия всё же не обеспечивают 100 % защиты матрицы от осколков деления, особенно таких, как барий и щелочно-земельные элементы при повышенных температурах. Поэтому в топливные частицы вводят добавки, способствующие переводу бария и щелочно-земельных элементов в какие-либо стойкие химические соединения. Для этой цели, например, ис-

пользуют SiO_2 и Al_2O_3 – геттеры щелочных и щёлочно-земельных продуктов деления. Введение в топливо SiC способствует удержанию серебра. Для уменьшения диффузии урана через PuC при высоких температурах ($2300\dots2500\text{ }^\circ\text{C}$) применяют твёрдые растворы карбида урана в карбидах циркония или ниобия.

Таблица 13.2

Виды металлического дисперсионного топлива

Топливо		Матрица	Где применяется
Состав	Обогащение, %		
U + 9 % Mo	5,0	Mg	Первая АЭС
U + 9 % Mo	1,8	Mg	БАЭС
U + 9 % Mo	3,0...3,3	Mg	БиАТЭЦ
65 % U	–	35 % Y	–
Al + 5...30 % U	90	Al	–
2...3 % γU	–	Zr	–

Таблица 13.3

Виды металлокерамического дисперсионного топлива

Топливо		Матрица	Где применяется, (примечание)	
Состав	Обогащение, %			
20 + 25 % UO_2	–	нерж. сталь		
UO_2 UC	–	Al	плохо совместимы	
U_3O_8	–	Al	МТР	
UO_2	10	Mg	ИРТ-5000	
UC_2	20	C	AVR (Германия)	
UO_2	–	Be	Zr	испытания
		Mo	Ta	
		Ti	W	
		Nb		
UC, UO_2	–	U – Mo	EFFBR	

Топливные керметы, свойства которых мы описали, редко содержат более 40 % топлива по объёму. Такое топливо имеет плохие бридерные свойства, поскольку стальная матрица поглощает большое число нейтронов. Оно件годно, в основном, для реакторов на тепловых нейтронах (высокотемпературных, судовых, исследовательских).

14. ДИСПЕРСНЫЕ ТОПЛИВНЫЕ СЕРДЕЧНИКИ [18]

Сердечники ТВЭЛов этого типа представляют собой композиции ядерного топлива в виде делящихся нуклидов (^{233}U , ^{235}U и ^{239}Pu) или их химических соединений и матрицы из металлов, сплавов, керамики, графита, пластмассы и других неделящихся материалов, а также из ^{238}U , Th, их сплавов и соединений.

Дисперсионные сердечники классифицируются не только по применяемому ядерному топливу, но и по их геометрической форме: пластинчатые (прямые, изогнутые, с тремя изгибами), трубчатые, таблеточные, сферические и профильные. Среди пластинчатых дисперсионных сердечников наибольший удельный вес приходится на долю прямых и изогнутых: их длина 600...700 мм (иногда доходит до 1237 мм), ширина 70...90 мм при однорядном расположении и до 35 мм при двухрядном расположении, толщина 1,3...3 мм. Ядерным топливом служат сплавы U–Al (в том числе и в матрице из Al и его сплавов), композиции UO_2 –нержавеющая сталь, U– UO_2 , U_3O_8 –Al, UO_2 –Al, UAl_4 и др. В качестве материала оболочки используют Al и его сплавы, нержавеющую сталь, циркалой-2. Трубчатые дисперсные сердечники имеют следующие геометрические характеристики: длину 500...3000 мм, наружный диаметр 12...68 мм, толщину стенки 0,3...3 мм. Ядерным топливом служат в основном композиции UO_2 –Al, UO_2 –нержавеющая сталь. Из таблеточных дисперсных сердечников набирают ТВЭЛы стержневого типа со следующими габаритными размерами: длиной 500...919 мм, диаметром 10...90 мм. Топливным материалом являются UO_2 –Al, UO_2 – ThO_2 , UO_2 – BeO , UO_2 –Mg, UC_2 – ThC_2 , Pu–Al и др. Оболочки ТВЭЛов изготавливают из Al, нержавеющей стали, циркалой-2, хастелоя.

Для сферических, шаровых и профильных сердечников в качестве топлива применяют композиции U–Al, U_3O_8 –Al, UC_2 (с покрытием PuC) – графит; ^{235}U (93%-го обогащения) – ^{232}Th –графит. Сферические ТВЭЛы (газоохлаждаемый ядерный реактор AVR в ФРГ) имеют отношение площади поверхности к объему $6/d$, где d – диаметр сферы. Монолитные шаровые ТВЭЛы обеспечивают большую теплопроводность по сравнению со сборными. Связанные пироуглеродом шаровые ТВЭЛы гарантируют более стабильные свойства, а прессованные – более высокую теплопроводность. Находят применение шаровые ТВЭЛы со сферическими микротвэ-

лами типа BiSO или Triso. BiSO-микротвэлы имеют покрытие из PuC , а Triso-микротвэлы – еще и промежуточное покрытие из SiC .

Профильные дисперсные сердечники могут быть многогранными (исследовательский реактор ВВР-С в СССР, реактор WWR-S), призматическими (высокотемпературный реактор с газовым охлаждением), крестообразными (модернизированный реактор ВВВ-С).

За основу рассмотрения технологических процессов получения дисперсных топливных сердечников возьмем материал ядерного топлива, отмечая попутно специфику изготовления, характерную для той или иной геометрической формы.

Топливные сердечники из сплава на основе Al–U, Al–Pu [18]. Изготовление сердечников на основе сплава Al–U осуществляют литьем или прокаткой.

Сплав Al–U приготавливают в индукционных печах на воздухе или в среде аргона. Для этого высокочистый алюминий, расплавленн в графитовом тигле, нагревают до $700\text{ }^\circ\text{C}$. Затем загружают куски урана и повышают температуру расплава до $1000\text{ }^\circ\text{C}$ при постоянном перемешивании. Достигнутую температуру поддерживают до полного растворения урана. Затем расплав продувают сухим аргоном. При температуре $775\text{ }^\circ\text{C}$ эта операция заканчивается, и расплав заливают в изложницы. Применяют также способы приготовления уран-алюминиевых сплавов в вакуумных индукционных или дуговых печах.

Заготовки для трубчатых сердечников получают методом центробежного литья. Затем их подвергают горячей и холодной пластической деформации для получения сердечников необходимой формы и размеров.

Сплавы, содержащие до 20 % урана, деформируют ковкой или прокаткой при температуре $550\text{...}600\text{ }^\circ\text{C}$. Так как эти сплавы чаще применяют в сердечниках типа пластин, то литые заготовки деформируют прокаткой в гладких валках. Для получения сердечников в виде стержней и труб литые заготовки деформируют горячим выдавливанием. Например, стержни диаметром 30 мм из сплава Al+16 % U изготавливают выдавливанием при температуре $500\text{ }^\circ\text{C}$ на 250-тонном прессе со скоростью $1\text{...}2\text{ м/с}$.

При изготовлении сердечников пластинчатого типа для реактора МТР слябы из сплава Al+10 % Pu размером $63\times 150\times 19\text{ мм}$ прокатывали на воздухе при температуре $550\text{ }^\circ\text{C}$ до толщины 11,5 мм с обжатием на 1,3 мм за один проход с последующим холодным прокатыванием за несколько проходов до толщины 9,4 мм при обжатии 0,13...0,18 мм за один проход. После правки и радиографического контроля распределения плутония (допустимое содержание 9,5...10,5 %) из полос вырубали пластины $54\times 55\times 9,4\text{ мм}$.

Технологические операции по приготовлению сплавов и их обработке проводят на линиях из перчаточных боксов с воздушной атмосферой внутри.

Топливные сердечники из металлокерамики [18]. Матрицы в таких сердечниках могут быть на основе алюминия, нержавеющей стали, жаропрочных сплавов и графита. Топливосодержащая фаза композиций выполняется из UO_2 , PuO_2 , UC и других соединений урана и плутония. Данный метод обладает рядом технологических преимуществ:

- 1) он является пока единственным методом, который позволяет получить сердечники из дисперсионной композиции, состоящей из металлической матрицы и керамического топлива (нержавеющая сталь – диоксид, монокарбид или мононитрид урана; молибден – диоксид урана и др.) или дисперсионной композиции со сложной структурой, в которой каждая топливная частица заключена в оболочку (металлическую, графитовую или керамическую);
- 2) дает минимальные отходы материала;
- 3) топливные частицы равномерно распределены по объему матрицы даже при значительной разнице в их удельных массах;
- 4) метод успешно используется в том случае, когда сердечники из композиции повышенной хрупкости не могут быть обработаны давлением. Технологический процесс изготовления топливного сердечника металлокерамическими методами состоит из четырех этапов.

Первый этап – предварительная подготовка порошкообразных материалов топливосодержащих фаз. Приготовление UO_2 , PuO_2 возможно разными способами, но чаще всего используют такой. Мелкие порошки UO_2 , PuO_2 , полученные химическими методами, агломерируют в плотные частицы нужных размеров. Эта подготовка порошка осуществляется одним из следующих методов:

- 1) дроблением спечённого продукта (спекание исходного мелкозернистого порошка при высокой температуре, дробление, отсеивание нужной фракции);
- 2) измельчением плавной в электродуговой печи с графитовым электродом UO_2 , PuO_2 ;
- 3) спеканием сформированных из исходного порошка гранул (перемешивание исходного порошка, измельчение полученной массы, отсеивание частиц нужных размеров и их спекание).

В последнее время внимание технологов привлекают частицы сферической формы вследствие их повышенной радиационной стойкости. Процессы их изготовления разделяются на две группы. К первой относятся химические методы. Вторая группа по способу формирования порошка разбивается на две подгруппы. Технологический процесс, отне-

сенный к первой подгруппе, проходит в такой последовательности: прессование исходной UO_2 ; измельчение ее до частиц нужных размеров; обкатывание частиц в шаровой мельнице для придания им сферической формы; спекание при температуре $1600...1750\text{ }^{\circ}C$.

По технологическому процессу второй подгруппы сферическую форму частицам придают посредством виброобработки вследствие беспорядочного истирания одной гранулы о другую и о поверхность вибрирующего устройства, покрытую эпоксидной смолой, содержащей порошок карбида кремния. Приготовленные таким образом сферы спекают на молибденовых лотках в электропечи в атмосфере диссоциированного аммиака при температуре $1600\text{ }^{\circ}C$. Частицы изготавливают размером $100...560\text{ }\mu m$.

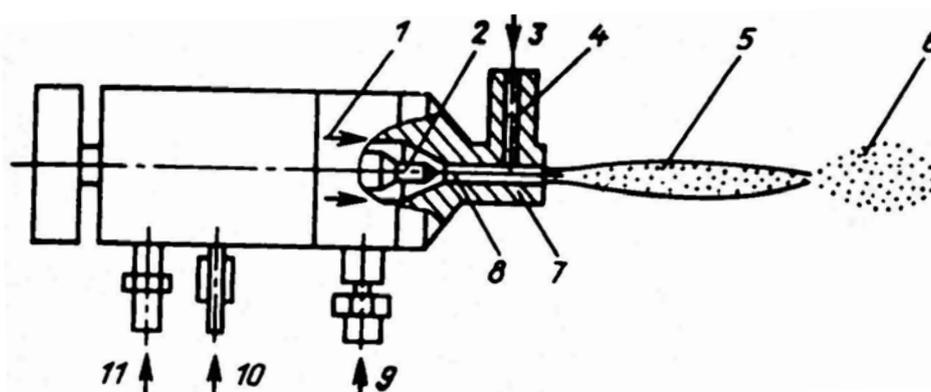


Рис. 14.1. Схема приспособления для получения сферических топливных частиц в факеле плазменной горелки:

- 1 – плазмообразующий газ; 2 – наконечник; 3 – подача порошка; 4 – канал; 5 – факел плазменной горелки; 6 – сферические частицы; 7 – корпус горелки; 8 – канал; 9 – подвод газа; 10 и 11 – устройства для охлаждения*

Приготовление PuO_2 , UO_2 осуществляют способами агломерации и путем оплавления продукта в факеле плазменной горелки (рис. 14.1). PuO_2 , UO_2 , полученные химическим путем, прессуют в брикеты, спекаемые при температуре $1450\text{ }^{\circ}C$ в течение 1 ч, дробят и отсеивают нужную фракцию. После этого порошок равномерно проходит через плазменный факел с относительно небольшой скоростью, при этом частицы плавятся и под действием сил поверхностного натяжения приобретают сферическую форму. Плотность частиц, полученных таким способом, составляет 96 % теоретической.

Приготовление UC для высокотемпературных реакторов происходит посредством агломерации и спекания в вакууме при температуре $1900\text{ }^{\circ}C$ или прохождением расплава через пламя плазменной горелки. Продукт, полученный первым методом, содержит значительное количество пор. При втором методе на качество сферических частиц превалирующее влияние оказывает режим охлаждения расплавленных частиц, так как большая ско-

рость охлаждения является причиной возникновения в частицах остаточных термических напряжений, приводящих к разрушению сфер.

Приготовление смеси $(Th, U)C_2$. Спрессованные таблетки из смесей порошков UO_2 и ThO_2 с углеродом диспергировали в мелком порошке графита внутри графитового контейнера и нагревали в вакууме до $2100...2300\text{ }^\circ\text{C}$ для превращения оксидов в дикарбиды (рис. 14.2). Затем температуру поднимали выше температуры плавления карбидов ($\sim 2450\text{ }^\circ\text{C}$), частицы плавилась и становились сферическими. Окружающий графитовый порошок препятствовал растеканию или спеканию отдельных частиц дикарбида. К поверхности частиц местами прилипал порошок графита, но он легко отделялся от частиц карбида при просеивании. Оказалось, что частицы, приготовленные спеканием и плавлением в слое графитового порошка, имеют высокую плотность. Рентгеноструктурный анализ показал, что они содержали $(Th, U)C_2$. Из исходных гранулированных частиц карбидов диаметром от 300 до 420 мкм получали порошок, состоящий на 80 % из фракции от 175 до 225 мкм или на 95 % из фракции от 175 до 300 мкм.

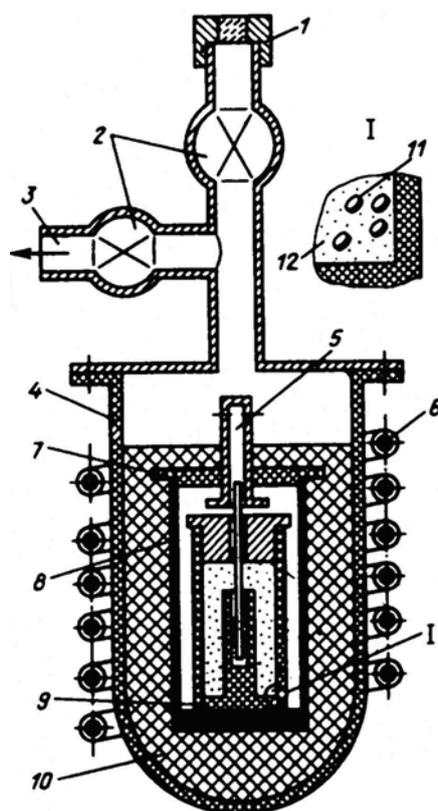


Рис. 14.2. Установка для получения частиц сферической формы:
 1 – смотровое стекло; 2 – шаровые вентили; 3 – к вакуумной системе;
 4 – кварцевая труба; 5 – газоотводящее отверстие; 6 – индуктор; 7 – крышка вставки из графита; 8 – теплопроводящие вставки из графита; 9 – графитовый тигель; 10 – изоляция из сажки; 11 – частицы топлива; 12 – графитовая пудра

Технологические схемы нанесения защитных пленок на топливные частицы. Защитные пленки повышают стойкость дисперсионных сердечников, локализуя осколки деления в небольшом объеме около топливных частиц и препятствуя взаимодействию топливосодержащей фазы с материалами матрицы в термодинамически нестабильных системах. Кроме того, покрытие способствует достижению равномерного распределения частиц в материале матрицы.

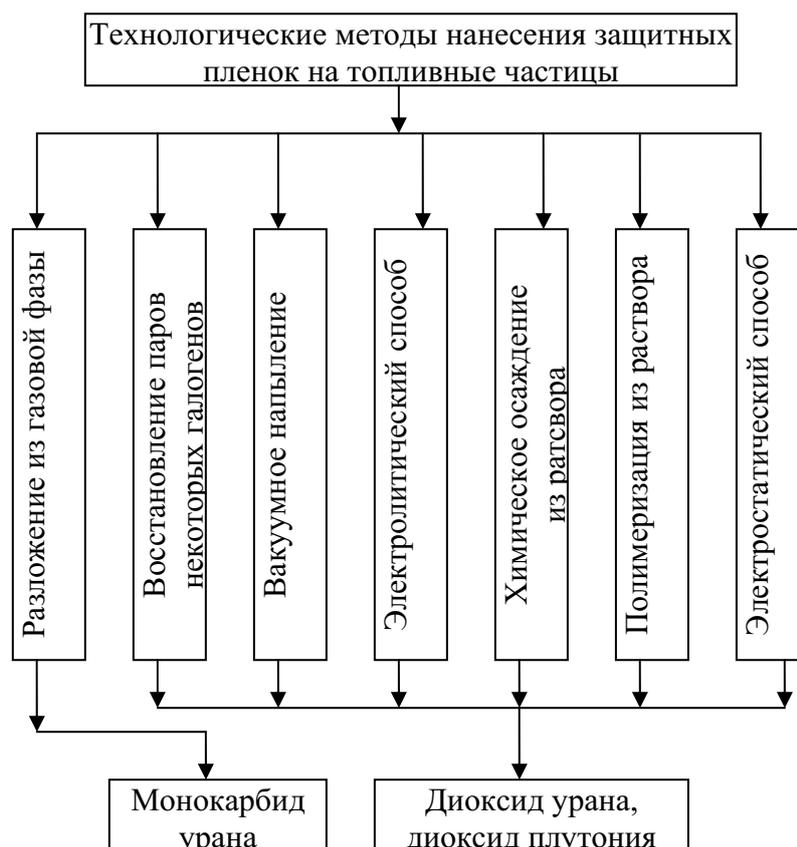


Рис. 14.3. Технологические методы нанесения защитных пленок на топливные частицы

Существуют разнообразные технологические методы нанесения пленок на топливные частицы (рис. 14.3). Широкое применение для нанесения покрытий из алюминия, молибдена, вольфрама, ниобия нашел метод диссоциации галогенидов в восстановительной атмосфере в условиях псевдокипящего слоя плакируемого порошка. Принципиальная схема установки для этого метода приведена на рис. 14.4. Газообразный галогенид из сублиматора (1), попадая в реактор (2), восстанавливается водородом до металла, который плотной пленкой покрывает частицы UO_2 , находящиеся во взвешенном состоянии. Избыточный водород вместе с парами соляной кислоты выводится из реактора, охлаждается и освобождается от кислоты пропусканием через воду, высушивается и вновь нагнетается в реактор. Температура

процесса, зависящая от материала покрытия, регулирует скорость образования пленки на топливных частицах в пределах 5...50 мкм/ч. Покрытие вольфрамом за счет восстановления происходит при 400 °С, ванадием – за счет восстановления хлорида ванадия – при 900 °С.

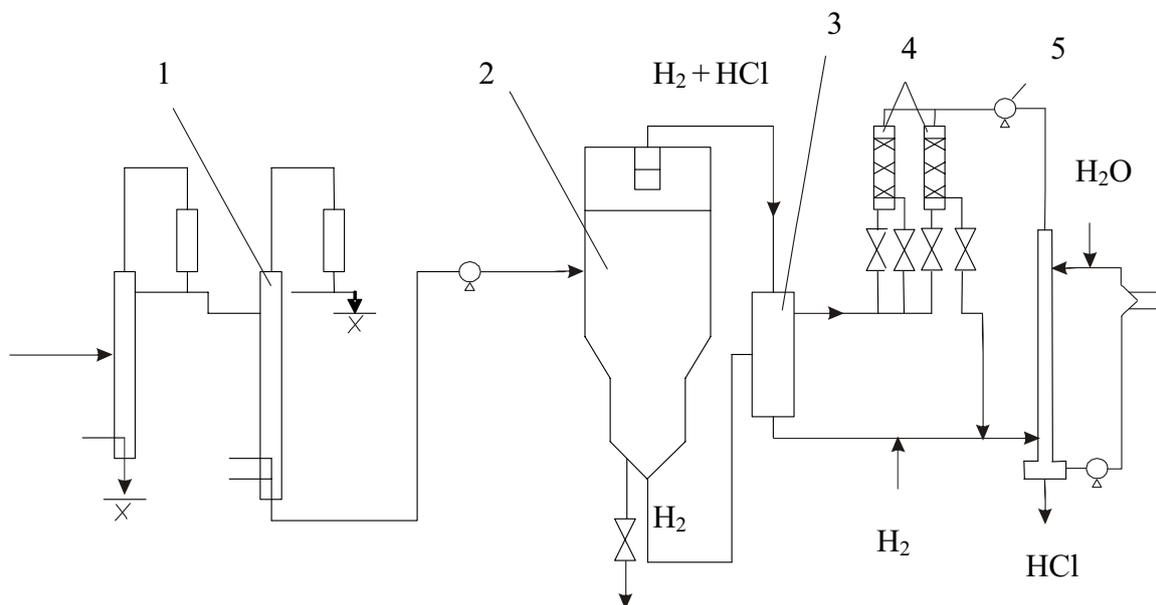


Рис. 14.4. Схема установки для нанесения металлических покрытий на топливные частицы UO_2 путем восстановления галогенидов:
 1 – сублиматор; 2 – реактор; 3 – теплообменник;
 4 – сушильное устройство; 5 – воздуходувка; 6 – холодильник

Метод металлизации в вакууме, основанный на способности некоторых металлов интенсивно испаряться при нагреве в условиях глубокого вакуума, используют для покрытия топливных частиц хромом, никелем, молибденом и железом. Этот технологический процесс осуществляют в вакуумной перчаточной камере. Испаряемый металл нагревают электрическим током. Топливные частицы постоянно встряхиваются и находятся на таком расстоянии от испаряющегося металла, чтобы их температура не превышала 300 °С. Таким способом создают покрытия толщиной 4...15 мкм.

Для нанесения керамического покрытия типа оксидов алюминия, бериллия, магния на топливные частицы высокотемпературных ТВЭЛов используют гидролиз летучих соединений (хлоридов) в псевдокипящем слое порошка UO_2 при температуре 800...1400 °С. При низких температурах для покрытий характерны пористость и снижение прочности.

На рис. 14.5 показано приспособление для нанесения покрытия из Al_2O_3 на топливные частицы. Необходимый для реакций осаждения хлорид алюминия получают при взаимодействии паров соляной кислоты с алюминиевой проволокой. Нагрев соответствующих газовых сред осуществляют индукторами.

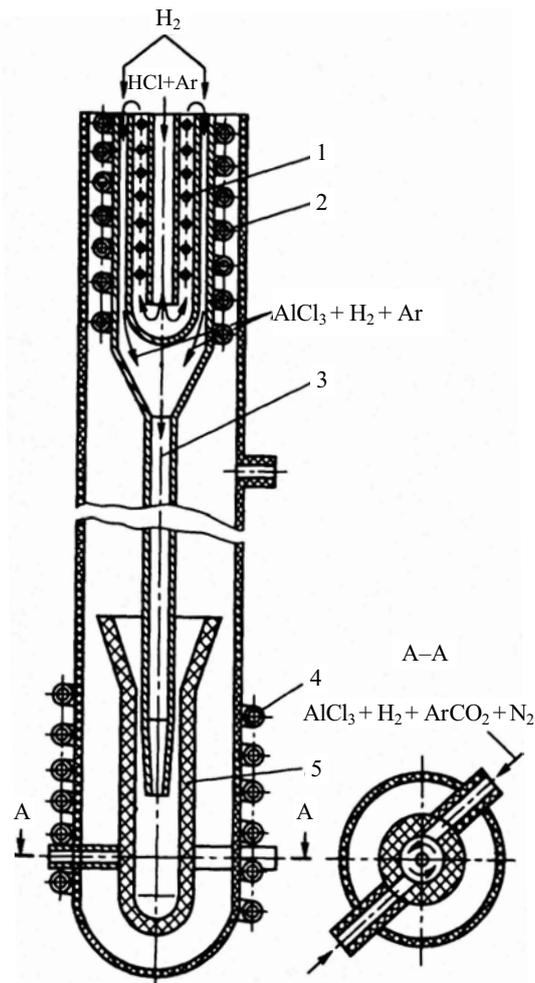


Рис. 14.5. Приспособление для нанесения покрытия из оксида алюминия на топливные частицы:
1, 2, 4 – индукторы; 3 – труба; 5 – камера

Частицы UO_2 диаметром менее 50 мкм поддерживаются в состоянии «кипения» спиральным потоком газа. Часть реагирующих газов ($CO_2 + N_2$) входит тангенциально к стенке камеры, перемещая покрываемые частицы по спирали вверх. Так как камера наверху расширяется, то скорость газов уменьшается, и покрытые частицы выпадают из потока вдоль трубки, выступающей со дна камеры. Скорость нанесения покрытия таким способом в зависимости от режимов колеблется в диапазоне 1...20 мкм/ч и сильно влияет на стоимость процесса. Увеличение скорости процесса в 5 раз приводит к снижению стоимости покрытий на 1 кг топлива для оксида алюминия в 32 раза, а для оксида бериллия – в 6 раз.

Известен метод покрытия топливных частиц порошка монокарбида урана графитовой оболочкой с использованием пиролиза метана или ацетилена. Осаждение углерода на частицах проводят при 850...1800 °С на установках, аналогичных установкам для нанесения металлических и оксидных покрытий методами восстановления и гидролиза галогенидов в кипящем слое.

Хорошее качество обеспечивается при покрытии частиц топлива пиролитическим углеродом. Твердый раствор карбидов $(Th, U)C_2$ обладает исключительно высокой реакционной способностью по отношению к влаге воздуха, и брикеты топлива, содержащие незащищенные частицы $(Th, U)C_2$, распадаются в результате гидролиза после пребывания на воздухе в течение нескольких часов. Для устранения этого недостатка частицы $(Th, U)C_2$ покрывают углеродом. Покрытие наносят в реакторе с кипящим слоем (рис. 14.6); несущим газом служит гелий, а ацетилен или метан используют в качестве источника углерода. Процесс, в основном, состоит в переносе частиц карбида из ванны с полукипящим слоем сквозь горячую зону вертикальной трубчатой камеры под действием быстрого потока инертного газа с углеводородами. Фактическая температура нанесения покрытий равна $\sim 1440^\circ C$, а парциальное давление метана составляет $9,81 \dots 24,5$ КПа. При этих условиях покрытие наносится со скоростью $8 \dots 12$ мкм/ч. Испытание покрытых частиц карбида показало, что брикеты топлива не только стали инертными к действию влаги, но в них и значительно улучшилось удержание продуктов деления.

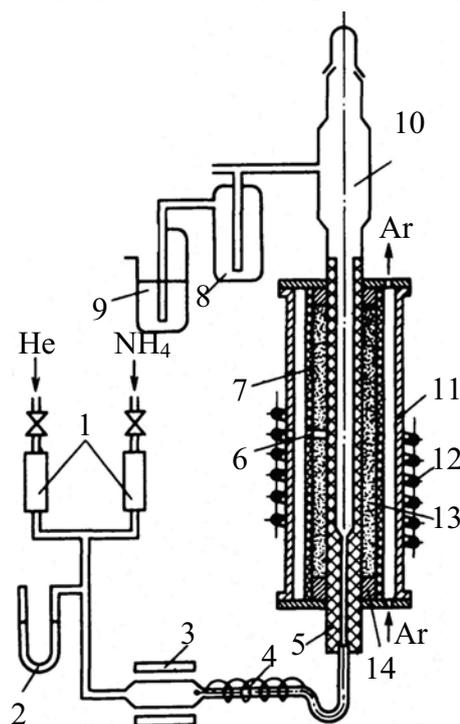


Рис. 14.6. Приспособление для покрытия частиц $(Th, U)C_2$ пиролитическим углеродом в реакторе с кипящим слоем:
 1 – расходомеры; 2 – манометр; 3 – печь для подогрева; 4 – стеклянный капилляр, нагреваемый проволочным сопротивлением; 5 – тепловыделяющая вставка из графита; 6 – канал для регулирования температуры; 7 – кожух; 8 – ловушка с осушителем; 9 – ловушка с инертной жидкостью; 10 – баллон для выгрузки;
 11 – внешний цилиндр; 12 – индуктор; 13 – изоляция из сажи;
 14 – водоохлаждаемая оболочка

Второй этап – получение смеси порошков топлива и матриц, входящих в состав дисперсной композиции. К материалам порошков матриц предъявляют в основном такие же технические требования, как и к порошкам, из которых изготавливают компактные изделия. Повышенные требования предъявляют к чистоте порошков (не допускаются примеси и загрязнение адсорбированными газами). Порошки материала матриц выбирают с размером частиц не более 40 мкм. Одно из важнейших технических требований при смешивании частиц топлива и матрицы – равномерность распределения состава смеси. Несоблюдение этого требования может привести к снижению радиационной стойкости и механической прочности ТВЭЛов. В процессе смешивания или до него в шихту вводят различные связующие вещества. Полученные таким образом смеси обладают достаточной текучестью для заполнения пресс-формы.

Большое внимание уделяется методам контроля равномерности распределения состава приготовляемых смесей, так как любой брак при этом относится к разряду неисправимых, ввиду практической невозможности исправить распределение частиц топливной фазы. К методам контроля относятся химический анализ проб, способ сравнения насыпных весов, автордиографический и радиоактивный методы. По химическому анализу проб, отобранных из разных мест приготовляемой смеси, можно весьма приблизительно оценить её однородность. Метод сравнения насыпных весов проб смесей, также отобранных из разных мест, – способ оперативный, но неточный. Автордиографический метод, основанный на измерении плотности почернения отпечатков на фотоэмульсионном слое пластинки, полученных от спрессованных образцов, приготовленных из контролируемой смеси, позволяет точно оценить степень её однородности. Радиоактивный метод основан на определении с помощью счетчика Гейгера–Мюллера степени рассеяния радиоактивности от нескольких проб смеси, взятых на контроль.

Третий этап – формирование сердечника различными технологическими методами. Прессование в пресс-формах выполняют на прессах, оборудованных специальными камерами. Этот метод применяют для получения брикетов цилиндрической, прямоугольной, реже вафельной и шаровой форм.

Очень важно при проектировании пресс-форм учитывать явление упругого последействия при извлечении брикета. Этот эффект проявляется в увеличении линейных размеров спрессованного брикета под действием остаточных напряжений.

Гидростатическое прессование обеспечивает равномерное распределение давления по всему объему брикета и гарантирует высокую плотность сердечника, но получающиеся при этом формы требуют

дальнейшей механической обработки. Гидростатическое прессование происходит следующим образом. Необходимую для изготовления сердечника порошкообразную смесь материалов заключают в эластичную оболочку, находящуюся внутри перфорированной металлической трубы, и подвергают всестороннему гидростатическому давлению воды или глицерина в сосуде высокого давления. Таким способом были получены сердечники ТВЭЛов на основе смеси порошков тория и диоксида плутония при рабочем давлении 15,5...152 МПа.

Мундштучное прессование как технологический способ изготовления сердечника заключается в выдавливании через матрицу порошкообразного материала, предварительно смешанного со связкой-пластификатором (крахмал, воск). Принципиальная схема приспособления для мундштучного прессования показана на рис. 14.7. Этим способом были изготовлены сердечники на основе нержавеющей стали и нихрома с диоксидом урана в виде стержней и пластин плотностью, равной 70 % теоретической.

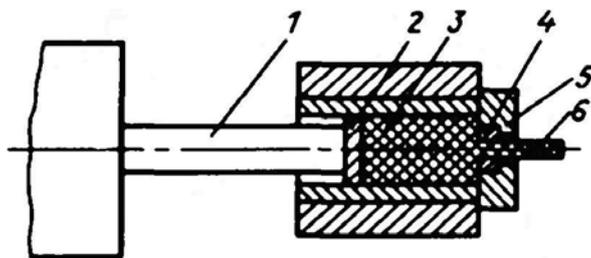


Рис. 14.7. Схема приспособления для мундштучного прессования сердечников ТВЭЛов: 1 – поршень; 2 – пресс-шайба; 3 – заготовка; 4 – матрица; 5 – держатель матрицы; 6 – прессуемый сердечник

Прессование взрывом (баллистический метод прессования) – один из новых способов формования изделий из порошкообразных материалов в результате выделения в течение миллионных долей секунды большого количества энергии. В качестве приспособления (рис. 14.8) используют видоизмененный револьверный ствол с казённой частью, блоком с бойком и составной матрицей, навинченной на противоположный конец ствола. В матрицу загружают прессуемый порошок и вставляют пуансон (4). Выстрел производится ударом по бойку (1); ползун (3) быстро перемещается по стволу, вытесняя воздух в специальные выпускные отверстия в матрице. Пуансон, которому передается энергия движущегося ползуна, сжимает прессуемый порошок (5) до высокой плотности. Таким способом были получены дисперсионные сердечники из Ni + 25 % UO₂ и нержавеющей стали + 30 % UO₂ типа пластин и труб.

Горячее прессование объединяет два технологических процесса – прессование и спекание. Порошкообразную смесь материалов для сердеч-

ников помещают в оболочку и прессуют под давлением газа до 69 МПа в нагретом состоянии (температура до 1650 °С) в автоклаве.

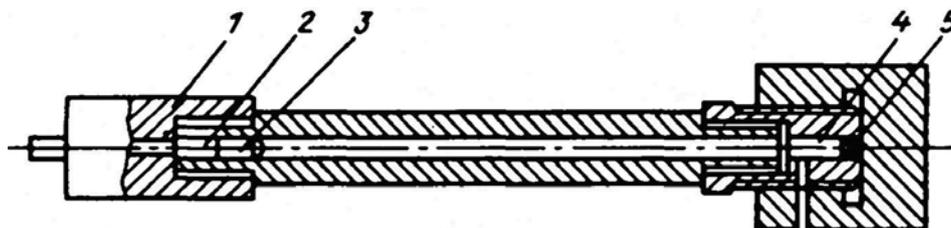


Рис. 14.8. Схема приспособления для прессования сердечников взрывом:
1 – боек; 2 – патрон; 3 – ползун; 4 – пуансон; 5 – прессуемый порошок

Шликерное литье обеспечивает получение сердечников больших размеров и более сложной формы по сравнению с методами прессования. Шликерное литье осуществляется следующим образом. Из формируемого материала приготавливают в воде суспензию, содержащую добавки, которые обеспечивают необходимую вязкость шликера. Суспензию заливают в гипсовую форму, поглощающую воду. Затем проводят сушку и спекание. Методом шликерного литья были изготовлены сердечники из композиции нержавеющей стали + 25 % UO_2 . Существенное преимущество данного способа – хаотичность расположения в структуре сердечника частиц UO_2 из-за отсутствия давления при формовании.

Четвертый этап – термообработка (спекание) полученных сердечников. Термообработку проводят для спекания частиц порошкообразного материала в твердом состоянии и упрочнения сердечника. Газовую среду, в которой проводят термообработку, выбирают такой, чтобы исключить появление на поверхности сердечников оксидов, препятствующих образованию диффузионной связи сердечника с оболочкой или их сборке методом пластического деформирования. Так, спекание в вакууме сердечников из композиции на основе нержавеющей стали способствует удалению из нее газообразных примесей (углекислого газа, азота и водорода), затрудняющих образование надежного диффузионного сцепления. Конечная плотность дисперсных сердечников зависит от режимов прессования заготовок и объемной доли топливосодержащей фазы.

Смешивание. Частицы, состоящие из делящегося материала и материала воспроизводства, смешивают с графитовым порошком и связкой из каменноугольной смолы, которые берут в отношении 9:1. Для облегчения гранулирования вводят пластификатор (1 % этилцеллюлозы), а для более равномерного перемешивания на 1 г смолы добавляют 7 см³ трихлорэтилена в качестве растворителя смолы. При выборе частиц топлива, взамен частицам твердого раствора (Th, U)C₂, которые превращаются в дикарбиды во время заключительного нагрева непосредственно в брикете, предпочитают частицы (Th, U)C₂, покрытые пиролитическим углеродом.

Приготовление таблеток диаметром 3...9 мм осуществляют после смешивания требуемого количества графитовой пудры, смолы, этилцеллюлозы и покрытых частиц карбида.

Сушка таблеток проводится перед прессованием для удаления трихлорэтилена.

Горячее прессование осуществляют на установке, принципиальная схема которой приведена на рис. 14.9. Высушенные таблетки закладывают в графитовую пресс-форму, и начинают нагрев пропусканием тока через графитовые пуансоны (3, 18) и брекеты (2) при давлении 6,87 МПа, создаваемом при движении вниз верхнего пуансона (3). При достижении температуры 250 °С давление повышают до 32,9 МПа, и нагрев продолжают до максимальной температуры (750 °С). Брикет выгружают с помощью нижнего пуансона (18). Далее брикеты необходимо нагреть в вакууме при температуре 1800 °С, чтобы полностью удалить летучие композиции.

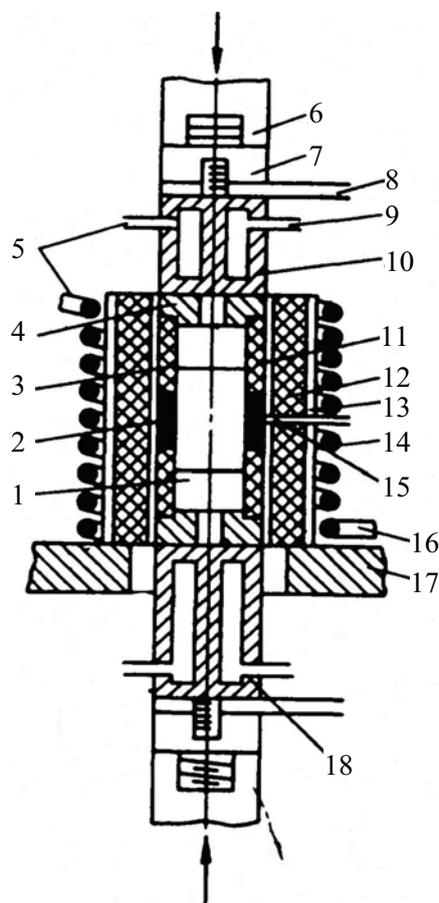


Рис. 14.9. Схема устройства для горячего прессования кольцевых брикетов:

- 1 – центральный стержень из графита; 2 – брикет; 3 – графитовый пуансон;
- 4 – приемник пуансона; 5 – вход охлаждающей воды; 6 – шток пресса;
- 7 – изолятор; 8 – токопровод; 9 – выход охлаждающей воды; 10 – верхний охлаждаемый пуансон;
- 11 – графитовая футеровка; 12 – втулка; 13 – стальная рубашка; 14 – водоохлаждаемая спираль; 15 – терморара;
- 16 – выход воды; 17 – стол пресса; 18 – нижний пуансон с токопроводом

В производственном процессе изготовления топливных сердечников имеется стадия переработки отходов и бракованных топливных сердечников для повторного использования дорогостоящих делящихся материалов.

Значительный объем отходов приходится на так называемые горючие отходы (фильтровальную бумагу, воздушные фильтры, резиновые перчатки, ветошь, смазочные масла), которые содержат различные органические материалы. Процессу их регенерации (водными или неводными методами) предшествует операция сжигания, оказывающая влияние на последующее извлечение урана, плутония и других делящихся материалов из золы. Большое внимание уделяется отработке процесса сжигания плутонийсодержащих отходов: пиролиза в атмосфере азота (с последующим окислением остатка или без окисления); прокаливания на воздухе. Рассмотрение преимуществ и недостатков этих методов выходит за рамки данного пособия.

Окислительно-восстановительный метод (разновидность пирохимического) используют для регенерации бракованных таблеток оксидного топлива, химический состав которых не претерпел существенных изменений. Гидридный метод позволяет снимать отложения плутония с поверхностей инструментов, тиглей, оборудования без их повреждения.

15. ЖИДКОЕ ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО

Ядерное топливо, применяемое в жидком состоянии, является альтернативой твёрдому ядерному топливу вследствие ряда преимуществ реактора на его основе по сравнению с твердотопливным реактором.

Ядерные реакторы с твёрдым топливом относятся к реакторам так называемой *теплотехнической концепции*. Ядерное топливо и продукты деления здесь локализованы и в активной зоне организован теплообмен. Такой «встроенный» в активную зону теплообменник требует введения в неё дополнительных материалов. А это ухудшает нейтронный баланс и требует повышенного запаса реактивности, что объективно снижает ядерную безопасность реактора.

Альтернативные реакторы с жидким топливом называют *реакторами физико-химической концепции*. В реакторах этого типа осуществляется непрерывное управление ядерно-физическими, химическими и теплофизическими процессами, протекающими в топливе, а также непрерывная корректировка физико-химических свойств ядерного топлива. Это позволяет максимально использовать возможности, заложенные в физической природе деления ядер, получить в реакторе высокоэффективный баланс нейтронов, низкие удельные загрузки топливом, большую глубину выгорания, высокий уровень ядерной безопасности, необходимую маневренность энергоустановки, обеспечить простоту и дешевизну топливного цикла.

К реакторам физико-химической концепции относятся:

- газофазные реакторы,
- реакторы на водных растворах U или Pu,
- реакторы с жидкометаллическим топливом,
- реакторы на расплавленных солях.

Для задач энергетики наиболее привлекательны жидкосолевые реакторы (ЖСР), для которых проще решаются проблемы радиационной безопасности и стойкости материалов в условиях высоких температур (~ 1000 °C) и сравнительно невысоких рабочих давлениях (менее 1 МПа).

Требования к топливу ЖСР:

- 1) минимальный паразитный захват нейтронов;
- 2) достаточно низкая температура плавления;

- 3) хорошие теплофизические свойства (вязкость, теплопроводность, теплоёмкость);
- 4) высокая термическая и радиационная стойкость;
- 5) малое давление насыщенных паров;
- 6) высокая концентрация изотопа воспроизводства (в целях эффективной конверсии топлива);
- 7) малая коррозионная активность по отношению к стенкам контура циркуляции.

Перечисленные требования значительно сужают круг доступных ядернотопливных материалов. Так, из рассмотрения должны быть исключены тугоплавкие оксиды и карбиды, неприменимы также нитриды и азотнокислые соли, имеющие высокую упругость пара. Кроме того, требования к топливу ЖСР имеют противоречивый характер. Так, повышение концентрации ^{238}U или ^{232}Th (требование 6) в солевой композиции приводит к нежелательному росту температуры плавления (требование 2).

Таблица 15.1
Физические свойства фтористых солей делящихся изотопов [2]

Состав соли, %	$T_{\text{пл}}, ^\circ\text{C}$	Плотность, г/см ³	Вязкость, 700 °С сП	Теплопроводность, кал/(см·с·°С)	Теплоёмкость, кал/(г·°С)	Число Прандтля, Pг
53,5NaF – 40ZrF ₄ – 6,5UF ₄	540	3,27	5,7	0,005	0,24	2,74
71LiF – 16BeF ₂ – 12ThF ₄ – 1UF ₄	500	3,25	7,1	0,003	0,32	7,9
73,7LiF – 16BeF ₂ – 10ThF ₄ – 0,3UF ₄	500	3,25	2,29	–	0,34	10,3
67LiF – 30,5BeF ₂ – 2,5UF ₄	454	2,10	5,1	–	0,57	–
52LiF – 48BeF ₂	350	2,16	–	–	0,67	–
76LiF – 14BeF ₂ – 10UF ₄	500	3,32	–	–	0,39	–
Вода (при 20 °С)	0	1,0	1,0	0,0014	1,0	7,0

Учитывая сказанное, предпочтение в выборе топлива для ЖСР отдают фторидам и хлоридам делящихся веществ. Свойства некоторых перспективных фторидов приведены в табл. 15.1. Существенным недостатком ЖСР является наличие высокорadioактивного контура циркуляции топлива.

16. АЛЬТЕРНАТИВНОЕ ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО

Мононитрид урана. Мононитрид урана UN представляет большой интерес для использования в качестве ядерного топлива. Он имеет структуру г.ц.к., плотность ($14,32 \cdot 10^3 \text{ кг/м}^3$) и повышенное содержание основного изотопа ($13,52 \cdot 10^3 \text{ кг/м}^3$) по сравнению с другими керамическими материалами (табл. 16.1).

Таблица 16.1

Некоторые характеристики керамического топлива

Соединение	Структура	$T_{пл}, ^\circ\text{C}$	Плотность, 10^3 кг/м^3	Макросечение, см^{-1}	
				деления	захвата
UO ₂	г.ц.к.(CaF ₂)	2880	10,97	0,102	0,187
UC	г.ц.к.(NaCl)	2370	13,63	0,137	0,252
UC ₂	г.ц.к.(CaF ₂)	2470	11,68	0,115	0,211
UN	г.ц.к. (NaCl)	2850	14,32	0,143	0,327
UN	куб	2450	10,87	0,143	0,300

Будучи во многом сравнимым по свойствам с карбидом урана, мононитрид, в то же время, превосходит его по отдельным показателям. В частности, мононитрид имеет меньшую воспламеняемость, высокую теплопроводность и прочность при повышенных температурах, лучшие ядерные свойства, не взаимодействует с водой, совместим со многими материалами.

Существенным недостатком мононитрида является его разложение при температуре выше 1300°C на уран и азот. Чтобы замедлить этот процесс требуется увеличивать давление азота в ТВЭЛах, что создаёт опасность их разгерметизации.

Мононитрид урана UN порошкообразный получают преимущественно следующими способами: а) взаимодействием металлического урана с очищенным азотом при 850°C и давлении 0,1 МПа с образованием высшего нитрида и его последующим термическим разложением при $1000 \dots 1200^\circ\text{C}$ до мононитрида; б) дуговой плавкой металлического урана в азотной атмосфере.

Мононитрид плутония PuN. По своим свойствам PuN подобен нитридам урана и тория. Он хорошо совместим с нержавеющей сталью

в реакторных условиях при выгораниях 150 000 МВт сут/т – на тепловых нейтронах и 32 100 МВт сут/т – на быстрых нейтронах.

Мононитрид плутония, как и урана, подвержен разложению при высоких температурах, однако добавление PuN к UN приводит к стабилизации последнего. Так, смешанное топливо ($^{238}\text{U PuO}_2$)N не разлагалось даже при температуре в центре до 2500 °С. Такое топливо, обладая высоким содержанием тяжёлого изотопа, хорошей радиационной стойкостью и термической стабильностью, перспективно для использования в ТВЭЛх реакторов на быстрых нейтронах.

Мононитрид плутония PuN изготавливают нитрированием плутония (или его гидрида) в тигле из вольфрама и отжигом при 1500 °С и давлении азота 0,51 МПа в течение 2 ч. Топливные таблетки из PuN и (U, Pu)N плотностью 80...97 % теоретической реализуют методами порошковой металлургии.

Мононитрид ThN. Мононитрид тория получают методом порошковой металлургии. Он интересен тем, что образует неограниченные твёрдые растворы с UN (и PuN). На воздухе мононитрид тория окисляется уже при комнатной температуре.

При разработке ТВЭЛов с нитридным топливом и гелиевым подслоем для реакторов на быстрых нейтронах необходимо помнить, что предел мощности ограничивается не температурой плавления нитрида, а пороговой температурой, выше которой идёт сильное газовое распухание. Применение натриевого подслоя в ТВЭЛе с зазором 0,5 мм позволяет существенно снизить температуру топлива.

Максимальная линейная мощность ТВЭЛов с нитридным топливом, даже с ограничением температуры до 1350 °С, составляет 130 кВт/м, что значительно выше предела для оксидного топлива, равного 63 кВт/м.

Натриевый подслоя позволяет снизить толщину стальной оболочки, что полезно для экономии нейтронов.

Кроме сильного газовыделения при высоких температурах, к недостаткам нитридного топлива, по сравнению с карбидным, относятся:

- повышенный захват нейтронов на изотопе ^{14}N ,
- дорогостоящая технология даже при крупном производстве.

Пока недостаточно данных для обоснованного выбора нитридного топлива для ТВЭЛов массового производства. Однако на этом топливе можно достичь больших мощностей при высоких температурах и поэтому в будущем оно может найти широкое применение.

Мононитрид тория ThN получают нагревом порошка тория в атмосфере азота до 600 °С под давлением в вольфрамовом тигле, а топливные сердечники из ThN – прессованием и спеканием или горячим прессованием.

Силициды урана. В системе U–Si установлено существование целого ряда соединений: U_3Si , U_3Si_2 , U_3Si_3 , USi_2 , USi_3 , из которых наибольший интерес представляет первое соединение U_3Si , обладающее повышенным содержанием урана. Оно известно ещё как ε -фаза. Соединение U_3Si может быть использовано в качестве ядерного топлива, так как обладает хорошей коррозионной стойкостью в реакторной воде. Его недостатком, однако, является повышенная пластичность, вязкость и сравнительно низкая температура разложения $930\text{ }^\circ\text{C}$.

Топливные сердечники из силицидного топлива [18]. Интерес специалистов привлекают новые виды ядерного топлива с более высоким содержанием урана, что позволило бы значительно улучшить технико-экономические характеристики работы АЭС. Перспективным высокоплотным ядерным топливом является соединение урана с кремнием U_3Si .

Технологический процесс получения топливных сердечников из силицидов урана начинается дуговой плавкой порошка урана и кремния в водоохлаждаемых изложницах. Затем проводят отжиг для гомогенизации. Формообразование осуществляют с помощью обычных методов. Порошки всех силицидов пирофорны на воздухе, поэтому шлифование, калибровку и обработку ведут с большой осторожностью. Так, спекание выполняют в атмосфере чистого аргона или в высоком вакууме.

Известна технология получения топливных сердечников из силицида урана горячим выдавливанием (в том числе совместным выдавливанием заготовок из U_3Si в оболочке из циркалоя-2) Δ -образных слитков. Однако при получении партии опытных ТВЭЛов применяли литье для изготовления сердечников. Заготовки последних реализовывали вакуумной индукционной плавкой смеси урана и кремния с последующей отливкой под размер в изложницу. Затем осуществляли отжиг в вакууме при температуре $800\text{ }^\circ\text{C}$ в течение 72...96 ч для получения U_3Si . После термообработки заготовки шлифовали на бесцентрово-шлифовальном станке и разрезали до требуемой длины. Топливный сердечник размещали по скользящей посадке в оболочке из коррозионно-стойкого циркониевого сплава. Осевое отверстие или продольные периферийные пазы являлись объемом для компенсации распухания топлива под действием излучения.

Сульфиды урана. Интерес представляет моносульфид US . Это соединение близко к диоксиду урана по плотности – $10,8\text{ г/см}^3$ (плотность по урану – $9,6\text{ г/см}^3$). В то же время оно имеет лучшую теплопроводность ($11,1\text{ Вт/мК}$), так как обладает металлической проводимостью. Температура плавления US равна $2450\text{ }^\circ\text{C}$. Моносульфид урана хорошо совместим с тугоплавкими материалами при высоких температурах, причём эта совместимость лучше, чем у карбидов. Получение моносульфида урана в чистом виде представляет затруднение.

17. ВЫБОР ОБОГАЩЕНИЯ ТОПЛИВА

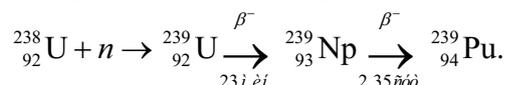
17.1. Реакторы-конверторы

Создание реакторов-конверторов, или промышленных реакторов, как в нашей стране, так и в мире, преследовало только одну цель, а именно наработку плутония для изготовления ядерного оружия. Однако ценность плутония не ограничивается только этим, интерес к нему гораздо шире и обусловлен следующими факторами:

- 1) ценностью плутония как топлива для реакторов на тепловых нейтронах и влияние его на экономику топливного цикла;
- 2) перспективным использованием плутония в реакторах-размножителях на быстрых нейтронах;
- 3) использованием плутония вместо урана-235, поскольку это определяет независимость стран в области обеспечения ядерным сырьем, так как не требуются заводы по обогащению урана;
- 4) возможностью применения плутония в качестве стартового материала для получения трансурановых элементов;
- 5) применением плутония в качестве первичного (начального) делящегося изотопа в ториевом цикле.

Количественная оценка возможного объема производства плутония и перспектив его использования остается весьма важной и актуальной задачей.

В реакторе плутоний нарабатывают из урана-238 по известной реакции:



В дальнейшем плутоний-239 может испытывать деление либо, захватывая нейтрон (в ~ 30 % случаях), превращаться в ядро плутония-240. Последние, в свою очередь, последовательно захватывая нейтроны в ядерном реакторе, превращаются в плутоний-241, плутоний-242 и т. д. Тип ядерного реактора, обогащение топлива изотопом урана-235, глубина выгорания определяют удельную наработку плутония в ТВЭЛах.

Коэффициент воспроизводства (КВ) ядерного топлива, характеризующий отношение числа образующихся ядер плутония к количеству разделившихся ядер урана-235, находится по формуле:

$$KB = \frac{N_8 \sigma_8}{N_5 \sigma_5} + \mu \nu_{f,5} (1 - \varphi)$$

где $\frac{N_8}{N_5}$ – отношение концентраций ядер 238 и 235 изотопов урана;

$\frac{\sigma_8}{\sigma_5}$ – отношение сечений поглощения указанных ядер для тепловых нейтронов;

$\nu_{f,5}$ – число нейтронов, образующихся при делении урана-235;

φ – вероятность нейтрону избежать поглощения при замедлении;

μ – коэффициент размножения за счет деления урана-238 быстрыми нейтронами.

Во всех типах энергетических реакторов на тепловых нейтронах, работающих на урановом топливе, KB существенно меньше единицы. Как видно из формулы для KB , с увеличением обогащения урана по изотопу 235 воспроизводство ядерного топлива существенно уменьшается и в пределе (например в исследовательских реакторах, где обогащение достигает 90 %) первый член формулы, как и весь KB , будет ничтожно малой величиной.

Приближенно оценить количество образующегося в промышленных и энергетических реакторах плутония можно по эмпирической формуле:

$$Q = KB \cdot B \cdot КИМ \cdot W \cdot T ,$$

где Q – количество образующегося плутония в граммах;

T – время работы реактора на проектной мощности в сутках;

B – количество выгоревшего урана-235 при энерговыработке 1 МВт·сут/г;

KB – коэффициент воспроизводства в отн.ед.;

$КИМ$ – коэффициент использования тепловой мощности реактора;

W – тепловая мощность реактора, МВт.

Следует отметить, что коэффициенты KB и B зависят не только от глубины выгорания топлива, обогащения, но и от ряда других факторов, таких как спектр нейтронов, наличие поглощающих нейтроны примесей в ТВЭЛах и т. п. В таблице приведены обобщенные значения коэффициентов воспроизводства для некоторых видов реакторов при различном исходном обогащении уранового топлива и достаточно высоких глубинах выгорания.

Использование плутония в реакторах на тепловых нейтронах, накопление и хранение его в расчете на применение в реакторах-размножителях на быстрых нейтронах зависит от множества факторов:

1. Наличие радиохимических заводов по выделению плутония из ТВЭЛов реакторов.
2. Наличие достаточных запасов плутония, определяемых развитием ядерной энергетики в стране.

Таблица 17.1.1

*Значение коэффициентов накопления плутония
для разных типов реакторов*

Тип реактора	Начальное обогащение по урану-235, %	Глубина выгорания, кг/т	КВ (плутония)
Газографитовый	(*) 0,7	4...5	0,53...0,55
	1,8	18...20	0,30...0,32
Водо-водяной	2,0	20...22	0,44...0,46
	3,0	30...32	0,38...0,40
Водяной кипящий	2,0	20...22	0,36...0,37
	2,0	30...32	0,27...0,29
Тяжеловодный	0,7*	9...10	0,46...0,48
	1,8	18...20	0,32...0,34

* Промышленный реактор.

3. Состояние разработок по использованию плутония, в ТВЭЛх реакторов различного типа.
4. Состояние разработок и опыта эксплуатации экспериментальных реакторов на быстрых нейтронах, а также наличие установок по изготовлению плутониевого топлива.
5. Объемы затрат, связанных с хранением ТВЭЛов, а также хранения плутония.

В настоящее время не вызывают сомнения преимущества использования плутония в реакторах на быстрых нейтронах для расширенного воспроизводства топлива. К настоящему времени достигнут вполне удовлетворительный опыт использования плутония в виде смеси окислов. При многократном использовании плутония неизбежно изменяется его изотопный состав. Однако опасаться увеличения содержания изотопов плутония-240 и плутония-242 (неделящихся) не следует, так как интенсивным образованием из урана-238 так называемого «свежего» плутония будет компенсироваться выгорание загружаемого в реактор на быстрых нейтронах исходного плутония из реакторов на тепловых нейтронах.

17.2. Энергетические реакторы на тепловых нейтронах

В начальный период разрабатывалось топливо на основе металлического урана, но вскоре были обнаружены его невысокие эксплуатационные свойства. Поэтому в дальнейшем развитие получили карбид урана (UC) и диоксид урана (UO₂), объединенные под названием «керамическое топливо». Уникальным топливом для энергетических реакторов в настоящее время является диоксид урана. Его преимущества заключаются в следующем:

- 1) высокая температура плавления и низкое давление паров;

- 2) механическая стабильность вследствие отсутствия фаз;
- 3) относительно меньшая подверженность распуханию.

Это повышает удельную энергонапряженность активной зоны реактора, следовательно, и энергоэкономичность энергоустановки.

Для примера в табл. 17.2.1 приведены характеристики реактора на металлическом и оксидном топливе.

Диоксид урана позволяет использовать его в различных формах в различных реакторах, работающих как на тепловых нейтронах, так и на быстрых нейтронах (табл. 17.2.2).

Что касается выбора степени обогащения топлива энергетических реакторов, он представляет собой сложную инженерно-экономическую задачу.

С одной стороны, после того как определены параметры теплоносителя и выбрана конструкция реактора, исходя из удельной энергонапряженности активной зоны, может быть определено и требуемое обогащение.

С другой стороны, действует обратная связь. Стоимость обогащенного топлива может влиять как на конструкцию активной зоны, так и на реактор в целом.

Таблица 17.2.1

*Объемные и линейные плотности энерговыделения
в реакторах различного типа*

Тип реактора	Название	Тепловая мощность, МВт	Диаметр активной зоны, м	Высота активной зоны, м	Объем активной зоны, м ³	Средняя объемная плотность энерговыделения топлива, МВт/м ³	Средняя плотность энерговыделения топлива, МВт/т	Средняя линейная плотность энерговыделения топлива, кВт/м
1	2	3	4	5	6	7	8	9
Magnox	Calder Hall	225	9,45	6,4	449	0,5	–	–
	Bradwell	538	12,19	7,82	913	0,59	2,20	26,2
	Wylfa	1875	17,37	9,14	2166	0,865	3,15	33,0
AGR	Hinkley B	1500	9,1	8,3	540	2,78	11,0	16,9
	Hartlepool	1507	9,3	8,2	557	2,0	11,5	16,1
HWR	CANDU	3425	7,74	5,94	280	12,2	26,4	27,9
LWR	PWR	3800	3,6	3,81	40	95	38,8	17,5
	BWR	3800	5,01	3,81	75	51	24,6	19,8

Окончание табл. 17.2.1

1	2	3	4	5	6	7	8	9
РБМК	Чернобыль- ская АЭС	3140	11,8	7,0	765	4,10	15,4	14,31
	SGHWR («Унифрит»)	308,2	3,12	3,66	28	11,0	14,3	15,8
Быстрые реакторы	Phenix	563	1,39	0,85	1,38	406	149	27,0
	PFR	612	1,47	0,91	1,61	380	153	27,0

Таблица 17.2.2

Реакторы большой мощности и их керамические компоненты

Тип реактора	Теплоноситель	Топливо		Регулирование	
		первичное	вторичное	первичное	вторичное
1	2	3	4	5	6
Легководный					
BWR	H ₂ O	UO ₂ ^{*1}	UO ₂ ^{*2} (U - Pu)O ₂ ^{*1,2}	B ₄ C UO ₂ - GdO ₂	
PWR	H ₂ O	UO ₂ ^{*1}	UO ₂ ^{*2} (U - Pu)O ₂ ^{*1,2} (U - Th)O ₂ ^{*1,2}	Al ₂ O ₃ -B ₄ C	UO ₂ -Gd ₂ O ₃
Тяжеловодный					
HWR	D ₂ O	UO ₂ ^{*1}	(U - Pu)O ₂ ^{*1} (U - Th)O ₂ ^{*1}	B ₄ C	
С графитовым замедлителем					
AGR	CO ₂	UO ₂ ^{*1}	(U - Pu)O ₂ ^{*1}	-	
HTGR	He	UC ₂ ^{*2} (ThO ₂) ^{*2} (UO ₂)	(U - Pu)O ₂ ^{*2} (U - ThO ₂)O ₂ ^{*2}	B ₄ C	Gd ₂ O ₃ -Al ₂ O ₃ Eu ₂ O ₃
Реакторы с производством нового топлива					
GCFR	He	(U - Pu)O ₂ ^{*1}	(U - Pu)O ₂ ^{*1,3} (U - Pu)N ^{*1,3}	B ₄ C	Eu ₂ O ₃

1	2	3	4	5	6
LMFBR	Na	$(U - Pu)O_2^{*1}$	$(U - Pu)C^{*1,2}$ $(U - Pu)N^{*1}$ $(U - Pu)O_2^{*2}$	B ₄ C	Eu ₂ O ₃
LMBR	H ₂ O	$(U - Th)O^{*1}$	–	–	

*¹ Таблетки*² Сферическая форма*³ Покрытые частицы

Во всех случаях определяющей становится стоимость конечного продукта единицы вырабатываемой энергии. Дело в том, что разделение изотопов урана-235, -238 существенно влияет как на цену горючего, так и на его баланс, так как часть изотопа 235 остается в «отвале» разделительного завода. Концентрация 235 изотопа в отвале (X_{ome}) – это параметр, подлежащий экономической оптимизации. Удорожание урана, равно как и удешевление разделительной технологии, ведет к снижению оптимального значения (X_{ome}), что уменьшает потребность в природном уране.

Рассмотрим процесс обогащения и расчет потребности в обогащении.

Входные и выходные точки процесса обогащения. На вход процесса обогащения подаются исходный уран (питание), электроэнергия и охлаждающая вода. При использовании методов газовой диффузии и центрифугирования питание подается в виде гексафторида урана. На выходе получают продукт требуемого состава и поток отходов или отвала с определенным заранее изотопным составом, называемым «составом отвала». Ниже рассмотрены соотношения между различными входящими и выходящими величинами и простой метод определения потребностей в разделительной работе. Пусть P – количество продукта состава x_P ; F – количество питания состава x_F ; W – количество отвала состава x_W .

Отношение отвала к продукту

$$\frac{W}{P} = \frac{x_P - x_F}{x_F - x_W}, \quad (17.1)$$

а отношение питания к продукту

$$\frac{F}{P} = \frac{x_P - x_W}{x_F - x_W}. \quad (17.2)$$

Выражение для разделительной работы, необходимой для получения единицы продукта, имеет следующий вид:

$$\frac{S}{P} = (2x_P - 1) \ln \frac{x_P}{1 - x_P} + \frac{x_P - x_F}{x_F - x_W} (2x_W - 1) \ln \frac{x_W}{1 - x_W} - \frac{x_P - x_N}{x_F - x_W} (2x_F - 1) \ln \frac{x_F}{1 - x_F}. \quad (17.3)$$

Данное уравнение свидетельствует о том, что разделительная работа S пропорциональна количеству продукта P и измеряется в тех же единицах, обычно в килограммах или метрических тоннах. Её зависимость от обогащения продукта и от состава отвала x_w описана уравнением (17.3). Отношение S/P увеличивается с ростом разности между составами питания и отвала. Потребности в разделительной работе можно рассчитать с помощью следующей упрощенной формулы:

$$\frac{S}{P} = \left(\frac{S}{P}\right)_P + \frac{W}{P} \left(\frac{S}{P}\right)_W - \frac{F}{P} \left(\frac{S}{P}\right)_F, \quad (17.4)$$

где значения W/P и F/P рассчитываются по (17.1), (17.2), а количества $(S/P)_P$, $(S/P)_W$ и $(S/P)_F$ взяты из первой колонки табл. 17.2.3 для соответствующих значений x_P , x_W и x_F . Разделительная работа, соответствующая значению 0,2 %, равняется нулю.

Таблица 17.2.3

Обогащение (массовый состав ^{235}U), %	Питание, кг (природный уран для диффузионного завода)	Закупаемый U_3O_8 *1	Эквивалентные единицы раздели- тельной работы *2
		На 1 кг продукта (обогащенного U)	
1	2	3	4
0,20	0		
0,30	0,196		-0,258
0,40	0,391		-0,198
0,50	0,587		-0,173
0,60	0,783		-0,107
0,70	0,978		-0,012
0,711 природный	1,00	2,613	0,00
0,8	1,174	3,068	0,104
0,9	1,370	3,580	0,236
1,0	1,566	4,092	0,380
1,2	1,957	5,114	0,698
1,4	2,348	6,136	1,045
1,6	2,740	7,160	1,413
1,8	3,131	8,182	1,797

Окончание табл. 17.2.3

1	2	3	4
2,0	3,523	9,206	2,194
2,1	3,718	9,716	2,397
2,2	3,914	10,228	2,602
2,3	4,110	10,740	2,809
2,4	4,305	11,250	3,018
2,5	4,501	11,762	3,229
2,6	4,697	12,274	3,441
2,7	4,892	12,784	3,656
2,8	5,088	13,296	3,871
2,9	5,284	13,808	4,088
3,0	5,479	14,318	4,306
3,1	5,675	14,830	4,526
3,2	5,871	15,342	4,746
3,3	6,067	15,854	4,968
3,4	6,262	16,364	5,191
3,5	6,458	16,876	5,414
3,6	6,654	17,388	5,638
3,7	6,849	17,898	5,864
3,8	7,045	18,410	6,090
3,9	7,241	18,922	6,316
4,0	7,436	19,432	6,544
5,0	9,393	24,544	8,851
10,0	19,178	50,112	20,863

Пример расчетов потребностей в обогащении. Предположим, что какой-то электроэнергокомпании требуется 10 000 кг урана, содержащего 3,2 % ^{235}U , для следующей загрузки топлива в ядерный реактор. В распоряжении компании уже имеется 9000 кг урана в виде гексафторида урана, содержащего 0,9 % ^{235}U . Сколько килограммов природного урана в виде UF_6 должна передать компания на правительственные заводы по обогащению, помимо уже имеющегося материала с обогащением 0,9 %, при условии состава отвала 0,2 %? Каковы будут расходы на разделительную работу, если цена равна 100 долл/кг – ЕРР?

Прежде всего компания должна переработать 9000 кг (F) топлива с обогащением 0,9 % (X_F), обогатив его до 3,2 % (X_P) на заводе по обогащению с составом отвала 0,2 %. Из (17.2) следует, что отношение питания к продукту равняется 0,23. Таким образом, из 9000 кг урана можно получить 2100 кг топлива обогащением 3,2 %. Для выполнения требования 10 000 кг необходимо еще 7900 кг 3,2%-го урана.

Для определения того, сколько следует закупить природного урана, еще раз воспользуемся уравнением (17.2); отношение питания к продукту составляет 5,87. Это означает, что необходимо закупить 46 380 кг природного урана. В действительности, в связи с небольшими потерями урана в процессе обработки, например во время конверсии оксида урана в гексафторид, природного урана потребуется примерно на 1 % больше.

Для определения объема разделительной работы воспользуемся уравнением (17.4) и табл. 17.2.3. Получаем, что для обогащения имеющихся 9 000 кг урана требуется 7840 ЕРР, для закупаемых 46 380 кг природного урана – 37 490 ЕРР, а всего потребуется 45 330 ЕРР. При стоимости 100 долл/ЕРР расходы составят 4 533 000 долларов.

Следует отметить, что отвальному материалу (при 0,2 %) присваивается нулевое значение. Природному урану, когда он рассматривается в качестве питания, также присваивается отрицательное значение. Это означает, что третий член (17.4) становится положительным и прибавляется к суммарному количеству обогащения, а не вычитается из него.

Таблица 17.2.4

Оптимальный состав отвала

Отношение стоимости питания к стоимости разделительной работы	Оптимальный состав отвала, %	Отношение стоимости питания к стоимости разделительной работы	Оптимальный состав отвала, %
0,0	0,71150	1,3	0,19971
0,2	0,40248	1,4	0,19229
0,4	0,32750	1,5	0,18549
0,6	0,28240	2,0	0,15840
0,8	0,25078	2,5	0,13892
0,9	0,23806	3,0	0,12410
1,0	0,22684	4,0	0,10283
1,1	0,21684	5,0	0,08816
1,2	0,20783		0,0

Этот анализ показывает также, что в выборе между количеством урана и количеством разделительной работы, необходимой для получения обогащенного урана, можно найти компромиссное решение. Если ощущается нехватка в ресурсах урана, то, используя отвал более низкого состава, можно сократить потребности в уране, но понести дополнительные расходы в области разделительной работы. С другой стороны, если проблема определяется наличием электроэнергии, а не урановых

ресурсов, то правительство может определить более высокую цифру для состава отвала, например 0,25 или 0,3. Предлагались и более высокие цифры в перспективе на будущее в целях сохранения энергии. На практике повышение состава отвала с 0,2 до 0,3 % ведет к увеличению потребностей в гексафториде урана примерно на 20 % и одновременному снижению объема разделительной работы также на 20 %.

На основе цен на уран, на разделительную работу и на конверсию в UF_6 можно рассчитать оптимальный состав отвала (т. е. для самой низкой стоимости обогащенного урана). Эти оптимальные значения состава отвала приведены в табл. 17.2.4 в зависимости от отношения стоимости питания к стоимости разделительной работы. Однако временные колебания цен и долгосрочные контракты на услуги по обогащению могут и не позволить заказчику выбрать эти значения состава отвала. Тем не менее, во многих контрактах предусмотрена возможность изменения состава отвала, что позволяет энергокомпании выбирать состав отвала между 0,16 и 0,3 % (стандартное значение в контрактах составляет 0,2 %). Однако и это может не позволить сделать оптимальный выбор между разделительной работой и питанием, если электроэнергокомпания должна использовать заказанное количество ЕРР в течение данного года. В 1983 г. оптимальный состав отвала равнялся примерно 0,32 %.

Уран-гадолиниевое топливо

Данное топливо представляет собой диоксид урана (UO_2) с добавкой оксида гадолиния (Gd_2O_3). Как поглотитель, гадолиний мало пригоден для стержней управления, так как он не образует дочерних изотопов с высоким сечением захвата нейтронов. Однако, будучи относительно короткоживущим поглотителем, гадолиний применим как добавка к топливу, когда требуется скомпенсировать большие избытки реактивности. Такая картина особенно характерна для водо-водяных реакторов, где избыток реактивности может достигать ~ 20 %. Тепловыделяющие элементы с добавкой гадолиния иногда называют ТВЭГами. Свойства изотопов гадолиния приведены в табл. 17.2.5.

Таблица 17.2.5

Свойства изотопов гадолиния

Массовое число	Распространенность, * %	$\sigma_{\text{погл}}$, барн	$\sigma_{\text{акт}}$, барн	$T_{1/2}$ (активация)
152	0,020	—	125	230 суток
154	2,15	—	—	—
155	14,73	$61\,000 \pm 5\,000$	$70\,000 \pm 20\,000^{**}$	(n, γ)
156	20,47	—	—	—

Окончание табл. 17.2.5

Массовое число	Распространенность, * %	$\sigma_{\text{полг}}$, барн	$\sigma_{\text{акт}}$, барн	$T_{1/2}$ (активация)
157	15,68	240000 ± 12000	$160000 \pm 60000^{**}$	(n, γ)
158	24,87	–	4 ± 2	180 ч
160	21,90	–	$0,8 \pm 0,3$	3,6 мин

* В естественной смеси.

** Котельные нейтроны.

На рис. 17.2.1 дана графическая зависимость полного сечения гадолиния от энергии нейтронов.

Характеристики ТВЭГов, эксплуатировавшихся на Балаковской АЭС, приведены соответственно в табл. 17.2.6–17.2.7.

Таблица 17.2.6

Опытные ТВС с УГТ (уран-гадолиниевым топливом), эксплуатировавшиеся на Балаковской АЭС

Кампания, в которую ТВС были впервые загружены	Количество загруженных ТВС	Основное обогащение, %	Диаметр центрального отверстия в топливной таблетке, мм	Количество ТВЭГов	Концентрация оксида гадолиния, %	Профилирование
5	12	4,4	2,4	18	8	Нет
6	24	4,4	2,4	18	8	Штатное
7	18	4,0	1,5	12	5	Штатное

Таблица 17.2.7

Характеристики ТВЭГов, используемых на Волгодонской АЭС

Наименование характеристик, размерность	Величина
Количество твэгов в ТВС, шт	6
Внешний диаметр оболочки, м	$9,1 \cdot 10^{-3}$
Материал оболочки	Сплав Zr + 1,0 % Nb
Поглащающий материал	Gd ₂ O ₃
Диаметр центрального отверстия в топливной таблетке, м	$1,5 \cdot 10^{-3}$
Наружный диаметр топливной таблетки, м	$7,57 \cdot 10^{-3}$
Массовая доля Gd ₂ O ₃ в топливе твэга, % вес.	5

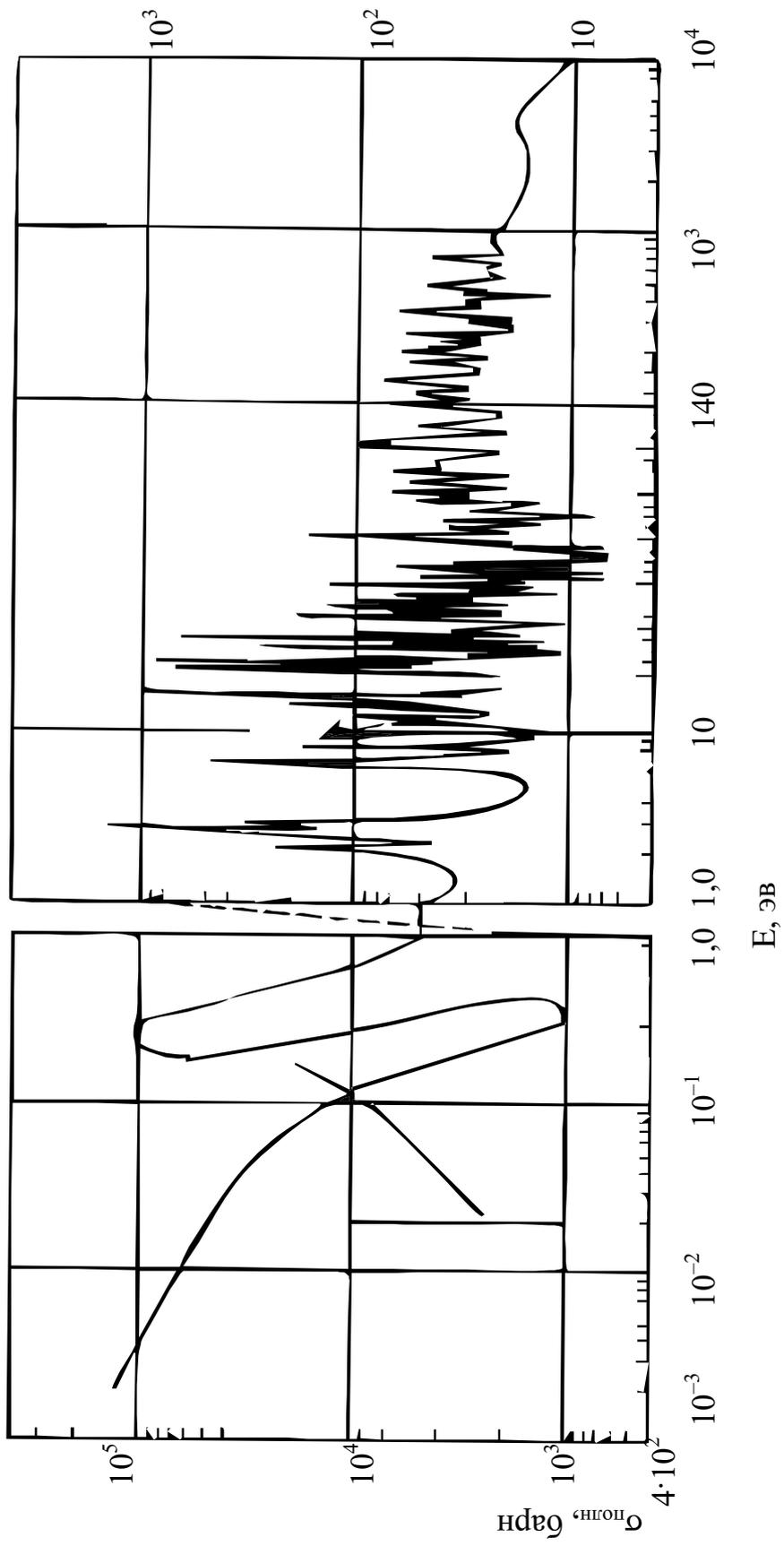


Рис. 17.2.1. Полное сечение гадолия в зависимости от энергии нейтронов

Внедрение УГТ приводит к ряду положительных и отрицательных тенденций и эффектов в сравнении с базовым топливом с пучками самовыгорающего поглотителя СВП⁶. К ним, в частности, относятся:

- улучшение топливоиспользования. За счёт более высокого сечения у гадолиния можно поместить меньше «вредных» ядер в активную зону. Для выгорания одного ядра поглотителя – бора или гадолиния – нужен один нейтрон;
- удержание поглотителя в топливной матрице ($Gd_2O_3-UO_2$) при авариях, что повышает ядерную безопасность;
- повышается безопасность, поскольку легче обеспечить отрицательный знак ТКР;
- свежие ТВС можно размещать в любую ячейку активной зоны, в том числе и под приводами СУЗ. Это позволяет увеличить эффективность аварийной защиты;
- проще компоновать активные зоны с уменьшенной утечкой нейтронов путём размещения свежего топлива в центре активной зоны, а выгоревшего – на периферии (схема движения топлива in-in-...-out). При этом достигается два положительных эффекта: во-первых, уменьшается флюенс быстрых нейтронов на корпус реактора, а во-вторых, при использовании схемы с уменьшенной утечкой эффективность аварийной защиты возрастает на 5...15 %;
- возможность управления внутрикассетным энергораспределением, а также мощностью и реактивностью ТВС при выгорании путём вариации месторасположения, количества элементов и концентрации в них поглотителей, например профилирование топлива уменьшенным обогащением по периферии УТВС с УГТ позволяет частично компенсировать действие увеличения (вследствие искривления ТВС) межкассетных зазоров на энерговыделение и выгорание этих ТВЭЛов;
- обеспечивается равномерная глубина выгорания в выгружаемых УТВС;
- не превышаются глубины выгорания топлива, освоенные при эксплуатации ВВЭР-1000;
- использование небольшого числа ТВЭГов с низкой концентрацией выгорающего поглотителя в УТВС приводит к мягкому влиянию УГТ на нейтронно-физические характеристики, с сохранением характерного для ТВС с СВП монотонного спада размножающих свойств в зависимости от выгорания. Это приводит к тому, что все нейтронно-физические характеристики, принимаемые в качестве ис-

⁶ Научный отчет РНЦ «Курчатовский институт». ИЯР. Отделение исследований ВВЭР. Инв № 32/1-89-499 от 30.12.1999.

ходных данных для анализов безопасности, не ухудшаются при внедрении данного топливного цикла с уран-гадолиниевым топливом;

- невозможность извлечения поглотителя без нарушения целостности ТВС, что повышает безопасность хранения свежего топлива;
- используемое топливо имеет меньшие размножающие свойства, чем ТВС максимального обогащения 4,4 % по ^{235}U , используемые в базовом проекте В-320. Поэтому не требуется отдельного обоснования безопасности при транспортировке и хранении свежего и отработавшего усовершенствованного ядерного топлива Волгодонской АЭС;
- отсутствие выемного борного СВП уменьшает количество транспортно-технологических операций во время перегрузки топлива и упрощает утилизацию отработавших свой ресурс ПС СУЗ (отработанные ПС СУЗ можно просто разместить в отработанные ТВС), тем самым уменьшает коллективные дозы облучения оперативного персонала Волгодонской АЭС, участвующего в работах с ядерным топливом.

Применение уран-гадолиниевого топлива приводит также к ряду отрицательных особенностей, к которым можно отнести:

- увеличение неравномерности распределения энерговыделения в свежих ТВС в начальный период их работы;
- ограничение мощности ТВЭГа из-за меньшей теплопроводности топливной таблетки с интегрированным гадолинием.

В приведённой табл. 17.2.8 представлены все виды ТВС используемые в УТЦ, их обозначения в технической документации, а также их топливный состав.

Таблица 17.2.8

Описание типов ТВС, использованных в проекте топливного цикла

Тип ТВС	Среднее обогащение топлива по U^{235} (% вес.)	Количество ТВЭЛов различных типов в ТВС и их обогащение по U^{235} (% вес.)		Количество СВП/ содержание ест. бора в СВП($\text{г}/\text{см}^3$) или количество ТВЭГов/ обогащение топлива в них (% вес. U^{235})/ содержание Gd_2O_3 (% вес.)	Конструкционный материал ДР и НК
		Тип 1	Тип 2		
1	2	3	4	5	6
16ZS	1,6	312/1,6	–	–	цирконий
24ZS	2,4	312/2,4	–	–	цирконий
24ZSA	2,4	312/2,4	–	18/0,020	цирконий
24ZSB	2,4	312/2,4	–	18/0,036	цирконий
24ZSC	2,4	312/2,4	–	18/0,050	цирконий

Окончание табл. 17.2.8

1	2	3	4	5	6
362ZS	3,62	246/3,7	66/3,3	–	цирконий
362ZB	3,62	246/3,7	66/3,3	18/0,036	цирконий
35ZSZ	3,53	240/3,6	66/3,3	6/3,3/5	цирконий
39ZSZ	3,92	240/4,0	66/3,6	6/3,3/5	цирконий

Примечание. Все усовершенствованные ТВС (табл. 17.2.8), используемые в данном проекте, имеют относительно низкое обогащение и размножающие свойства. Так, максимальное значение коэффициента размножения в бесконечном приближении $K_{эфф}$, рассчитанное по программе КАССЕТА-ТВЭГ, равны 1,369 для ТВС типа 362ZS и 1,313 для ТВС типа 39ZSZ. Следовательно, используемые УТВС более безопасны, чем ТВС максимального обогащения 4,4 % без пучка СВП ($K_{эфф\ max} = 1,382$), используемые в базовом проекте В-320. Поэтому для данного проекта не требуется отдельного обоснования безопасности при транспортировке и хранении свежего и отработавшего усовершенствованного ядерного топлива. При этом учитывалось, что в усовершенствованных ТВС направляющие каналы и дистанционирующие решётки изготовлены из циркониевого сплава, а загрузка урана увеличена за счёт уменьшения диаметра центрального отверстия в топливной таблетке. Также учтено наличие интегрированного в топливе выгорающего поглотителя, который в отличие от пучков СВП не извлекаем из ТВС.

Уран-эрбиевое топливо

Такое топливо представляет собой диоксид урана (UO_2) с добавкой оксида эрбия (Er_2O_3) и используется в тепловыделяющих сборках реактора РБМК-1000. Введение в топливо выгорающего поглотителя, каким является эрбий, позволяет уменьшить положительный паровой коэффициент реактивности и снизить вероятность ядерной аварии.

Сечение эрбия в области тепловых энергий нейтронов составляет 173 бара.

В табл. 17.2.9 даны основные свойства изотопов эрбия. На рис. 7.2.2 представлена зависимость полного сечения эрбия от энергии нейтронов. В связи с повышенными требованиями надежности, которые предъявляются в настоящее время к реакторам РБМК, рассмотрим подробно результаты испытаний уран-эрбиевых сборок (ЭТВС).

Таблица 17.2.9

Основные свойства изотопов эрбия

Массовое число	Распространенность, *%	$\sigma_{акт}$, барн	$T_{1/2}$ (активация)
162	0,136	–	–
164	1,56	–	–
166	33,4	–	–
167	22,9	–	–
168	27,1	$2,0 \pm 0,4^{**}$	9,4 дня
170	14,9	$9,0 \pm 2,0^{**}$	2,5 сек + 7,5 ч

* В естественной смеси.

** Котельные нейтроны.

Выбор обогащения топлива и содержания эрбия в нём осуществлялся из условия, что при полном переходе на ЭТВС и выгрузке из активной зоны ДП будут достигнуты следующие цели:

- величина парового коэффициента реактивности не будет превышать уровня, имеющего место до начала загрузки ЭТВС;
- повысится глубина выгорания выгружаемого топлива;
- снизится расход тепловыделяющих сборок;
- уменьшится неравномерность полей энерговыделения и максимальная мощность ЭТВС;

В результате расчетных исследований для ТВС РБМК-1000 выбрано обогащение топлива – 2,6 % и содержание эрбия – 0,41 %. В этом случае достигается повышение выгорания топлива при извлечении из активной зоны всех ДП, обеспечивается не превышение максимальной мощности ТК с новым топливом (3,0 МВт).

При полном переводе реактора РБМК-1000 на ЭТВС с топливом 2,6 % обогащения с содержанием эрбия 0,41 % и выгрузке ДП с учетом увеличения средней глубины выгорания топлива в АЗ до 12,8 МВт·сут/кгU (что на 20 % превышает существующий уровень) паровой коэффициент реактивности уменьшается на $0,2 \dots 0,4\beta$, подкритичность остановленного реактора составляет величину не менее 2 %, что соответствует требованиям ПБЯ РУ АС-89.

Температурный коэффициент топлива и, как следствие, мощностной коэффициент реактивности становятся более отрицательными.

За счет увеличения числа каналов с ТВС (в результате выгрузки ДП) и снижения неравномерности поля энерговыделения улучшаются условия эксплуатации ЭТВС, так как снижается максимальная мощности ТК.

ЭТВС по конструкции не отличаются от штатных (кроме топливных таблеток, которые выполнены с центральным отверстием) и спроектированы таким образом, что их использование в составе активной зоны реактора РБМК-1000 при нормальной эксплуатации, нарушении нормальной эксплуатации и проектных авариях не превышает пределов и условий безопасной эксплуатации реактора.

Описание конструкции и технологической схемы, материалы.

Конструкция ЭТВС, состоящая из 2-х пучков ТВЭЛов по 18 шт. в каждом, не отличается от штатной.

ТВЭЛ с эрбиевым топливом стержневого типа цилиндрической формы для ЭТВС РБМК-1000 практически полностью аналогичен по конструкции штатному ТВЭЛу РБМК-1000 и отличается от него наличием центрального отверстия в топливных таблетках, введением в них оксида эрбия и повышенным обогащением по U-235.

Таблетка обогащением 2,6 % с добавлением Er_2O_3 (0,47 % по массе) с центральным отверстием $2,0 \pm 0,3$ мм из спечённой двуокиси урана имеют геометрические размеры, плотность и прочие характеристики аналогичные штатным. Таблетки изготавливаются из порошка диоксида урана с добавкой оксида эрбия.

Технологическая схема изготовления уран-эрбиевых топливных таблеток практически не отличается от штатной.

К 2006 г. заводом-изготовителем (АО МСЗ) в составе ЭТВС изготовлено более 100 тонн таблеток из уран-эрбиевого топлива для Игналинской и Ленинградской АЭС.

Управление и контроль. Управление и контроль ЭТВС проводится в соответствии с Технологическим регламентом аналогично ТВС РБМК-1000.

Обеспечение качества при изготовлении и монтаже. Заводом-изготовителем ЭТВС (АО МСЗ) разработаны дополнения к технологическим процессам изготовления штатной продукции, учитывающие дополнительные операции при изготовлении топливных таблеток.

Для обеспечения контроля за качеством изготовленных топливных таблеток разработаны и метрологически аттестованы методики и инструкции:

«Уран-эрбиевое ядерное керамическое топливо. Уран. Пероксидный метод определения урана в уран-эрбиевом таблетированном оксидном топливе».

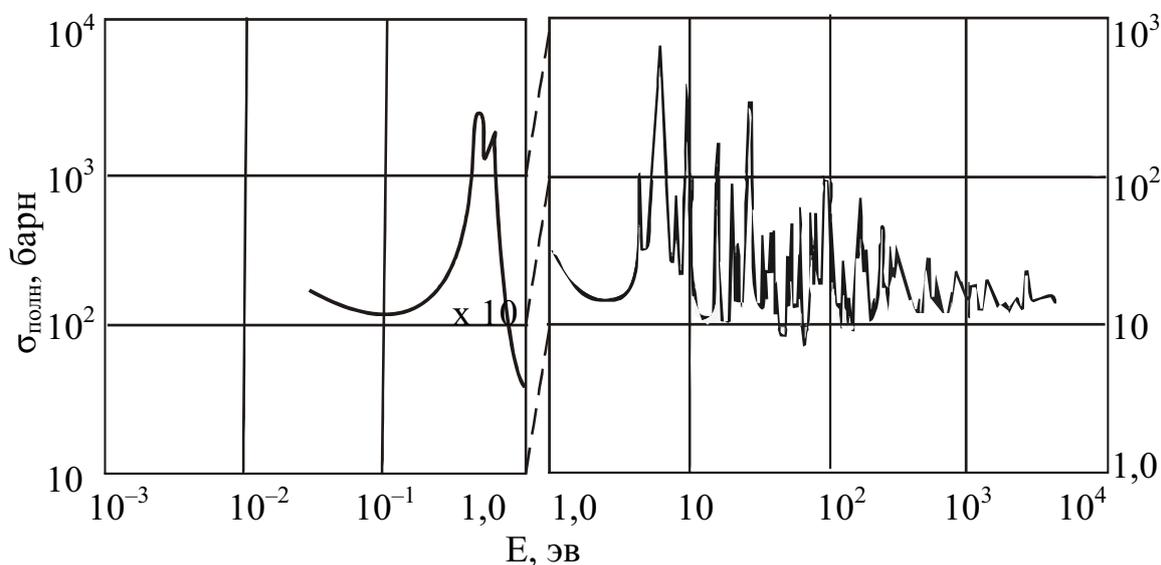


Рис. 17.2.2. Полное сечение эрбия в зависимости от энергии нейтронов

«Уран-эрбиевое ядерное керамическое топливо. Методика определения кислородного коэффициента».

«Уран-эрбиевое ядерное керамическое топливо. Спектрально-эмиссионная методика определения содержания примесей».

«Уран-эрбиевое ядерное керамическое топливо. Спектрально-эмиссионная методика определения содержания примесей ванадия и вольфрама».

«Уран-эрбиевое ядерное керамическое топливо. Методика определения эрбия».

Контроль за выполнением требований технической документации при изготовлении осуществляется ОТК и КПИ. Результаты изготовления партий ЭТВС продемонстрировали соответствие продукции требованиям технической документации.

Ввиду неизменности конструкции, порядок обращения с ЭТВС на АЭС не отличается от штатного и регламентируется действующими на АЭС инструкциями.

Пусконаладочные работы. Подготовка ЭТВС к эксплуатации в составе активной зоны производится аналогично штатной ТВС РБМК-1000 в соответствии с эксплуатационной инструкцией.

Контроль при эксплуатации. Контроль за техническим состоянием ЭТВС в процессе загрузки в реактор, выгрузке из реактора и в процессе эксплуатации проводится в соответствии с Технологическим регламентом эксплуатации и программой испытаний партии ЭТВС, являющейся приложением к Решению на проведение испытаний.

Нормальное функционирование ЭТВС. ЭТВС после загрузки постоянно находятся в активной зоне до исчерпания ресурса, затем извлекаются из нее и устанавливаются в бассейн выдержки.

ЭТВС эксплуатируются как штатные в соответствии с Технологическим регламентом по эксплуатации до среднего выгорания $25 \text{ МВ} \cdot \text{т} \cdot \text{сут} / \text{кгU}$. Максимальная мощность каналов с ЭТВС не превышает $3,0 \text{ МВт}$.

Работоспособность ЭТВС при нормальной эксплуатации и проектных авариях подтверждена расчетами, экспериментальными данными и опытом эксплуатации на Игналинской и Ленинградской АЭС.

Функционирование при отказах. Отказы оборудования при загрузке и выгрузке ЭТВС. Обращение с ЭТВС при отказах оборудования (падение при перемещении краном, непостановка или невозможность извлечения из реактора) не отличается от штатного и определяется Технологическим регламентом.

Отказы ЭТВС при эксплуатации. В случае отказа по причине разгерметизации обращение с ЭТВС не отличается от штатного. Это обосновано тем, что по результатам реакторных исследований выход продуктов деления и коррозионная стойкость таблеток из уран-эрбиевого топлива не отличаются от обычного топлива из двуокиси урана.

Анализ надежности. Конструктором-технологом ТВЭЛа проведены необходимые расчетно-экспериментальные исследования и выпущены

на Пояснительная записка «Элемент тепловыделяющий РБМК-1000 с уран-эрбиевым топливом».

Надежность ТВЭЛов с уран-эрбиевым топливом должна быть выше надежности штатных ТВЭЛов из-за наличия центрального отверстия в топливных таблетках. Это подтверждает опыт эксплуатации ТВС на ИАЭС, где наблюдалось резкое снижение отказов при переходе на топливные таблетки с центральным отверстием. Сравнение расчетных температур в центре топлива в штатном ТВЭЛе с UO_2 (сплошная таблетка без центрального отверстия) и в экспериментальном ТВЭЛе с уран-эрбиевым топливом (таблетка с центральным отверстием) при одинаковой тепловой нагрузке показало, что температуры в ТВЭЛе с уран-эрбиевым топливом ниже, чем в штатном (см. табл. 17.2.10).

Таблица 17.2.10

Сравнение расчетных температур в центре топлива

Выгорание МВт·сут/кгU	Линейная нагрузка, Вт/см	$UO_2 + 0,4 \% Er$		UO_2	
		Температура центра, °C	Средняя температура, °C	Температура центра, °C	Средняя температура, °C
0,0	293,3	1206,2	890,1	1248,0	891,4
100,0	345,0	1366,1	972,9	1411,3	970,9
2080,0	339,9	1338,8	953,7	1381,0	949,3
2080,0	286,8	1162,1	858,0	1201,5	857,8
4160,0	337,4	1326,0	943,7	1364,6	936,4
6240,0	283,6	1142,1	841,6	1174,9	835,9
6240,0	333,7	1309,0	931,8	1341,2	919,4
8320,0	276,6	1114,8	824,1	1143,1	815,2
8320,0	325,4	1272,2	908,1	1303,3	895,4
10400,0	268,3	1078,3	800,2	1104,5	790,2

В 1996 г. были завершены послереакторные исследования образцов из ТВЭЛов с штатным и уран-эрбиевым топливом облучавшихся в СФ НИКИЭТ.

Объектами исследований являлись ТВЭЛы типа РБМК, паспортные характеристики которых приведены в табл. 17.2.11.

Облучение ТВЭЛов проводилось с 08.11.94 г. по 23.10.95 г. Ресурс облучения составил 6840 часов при непрерывном нахождении в реакторе ~ 8200 часов. Период непрерывного облучения изменялся в результате плановых и внеплановых остановок от 50 до 500 часов.

Таблица 17.2.11

Паспортные характеристики ТВЭЛов

Параметр, размерность	Величина	
	ТВЭЛ с эрбием	ТВЭЛ с штатным топливом
Диаметр оболочки, мм	13,6	13,6
Толщина оболочки, мм	0,9	0,9
Материал оболочки	сплав Э-110	сплав Э-110
Материал таблеток	UO ₂ + 0,39 % Er	UO ₂
Диаметр таблеток, мм	11,45...11,46	11,44...11,46
Высота топливного столба, мм	402	400
Плотность топлива, г/см ³	10,55...10,65	10,45...10,65
Обогащение топлива, %	2,4	2,4
Диаметр центрального осевого отверстия, мм	2,0...2,1	2,0...2,1
Масса двуокиси урана, г	418	409
Масса ²³⁵ U, г	8,9	8,7

В ходе реакторного эксперимента выполнялись следующие испытания:

- первоначально, во время одной из плановых остановок реактора осуществлялась загрузка каналов в ячейки с плотностью нейтронного потока, обеспечивающего энерговыделение в ТВЭЛе от 0 до 500 Вт/см в зависимости от мощности реактора для оценки теплофизических параметров облучения;
- затем осуществлялись ресурсные испытания ТВЭЛов на уровне энерговыделения 300...350 Вт/см в течение 6840 часов. После облучения проведены исследования, которые включали:
 - осмотр и измерение геометрических размеров ТВЭЛов;
 - гамма-спектрометрические исследования ТВЭЛов;
 - вырезка образцов для исследований;
 - определение выгорания топлива;
 - металлографические исследования оболочек ТВЭЛов;
 - механические свойства оболочек ТВЭЛов;
 - фрактографические исследования образцов оболочек ТВЭЛов после механических испытаний;
 - исследования состояния топлива.

Основные результаты исследований ТВЭЛов двух типов следующие.

Толщины образовавшихся на внешней и внутренней поверхностях оболочек оксидных пленок примерно одинаковы и несколько увеличивают-

ся от торцов ТВЭЛов к центру активной зоны реактора (от 1 до ≈ 10 мкм), следуя коэффициенту неравномерности энерговыделения по высоте активной зоны. Измеренные диаметры ТВЭЛов находятся в пределах допуска.

Незначительное и практически одинаковое гидрирование металла оболочек обоих ТВЭЛов, несколько увеличивающееся к центру активной зоны и не превышающее 70 ppm с благоприятной ориентацией гибридной фазы, не могло привести к деградации служебных свойств оболочек, о чем свидетельствует высокая пластичность металла ($\delta \geq 12\%$).

Исследования внутренней поверхности оболочек ТВЭЛов обнаружили незначительное количество отложений, в состав которых входят U и Cs. Взаимодействия топлива с оболочкой в обоих ТВЭЛлах не обнаружено.

Состояние топливных таблеток обоих ТВЭЛов примерно одинаково. В процессе испытаний таблетки претерпели фрагментацию, несколько увеличивающуюся к центру активной зоны. Различий этой характеристики обоих видов топлива не обнаружено. Структура топливных таблеток, как по краям ТВЭЛов, так и в середине, практически одинаковая, состоящая из мелких зерен с большим количеством пор и трещин. Величина зерна центра топлива обоих ТВЭЛов несколько возрастает в направлении середины активной зоны. Измеренная величина зерна уран-эрбиевого топлива немного больше, чем штатного (≈ 10 мкм по сравнению с 8 мкм). Это связано с тем, что ТВЭЛ с уран-эрбиевым топливом облучался при более высоких тепловых нагрузках, чем ТВЭЛ со штатным топливом.

Центральное осевое отверстие в таблетках топлива обоих типов сохранило свою форму и геометрические размеры.

По результатам исследований сделан вывод, что ТВЭЛы с уран-эрбиевым топливом работоспособны при нагрузках РБМК, практически не отличаются от штатных.

17.3. Реакторы на быстрых нейтронах

Сечения взаимодействия основных элементов. На рис. 17.3.1 представлена зависимость сечений деления Pu^{239} и U^{233} от энергии нейтронов: сечения почти не изменяются при высоких энергиях и медленно возрастают при энергиях ниже 100 кэВ. При низких энергиях сечение деления U^{233} значительно превосходит сечение деления Pu^{239} . Поперечные сечения для U^{235} и Pu^{241} в основном имеют ту же энергетическую зависимость и ту же величину, что и сечения, приведенные на рис. 17.3.1.

На рис. 17.3.2 сравниваются сечения деления Th^{232} , U^{238} и Pu^{240} . Сечение изотопа плутония, сходное с сечением U^{234} , имеет более низкий порог деления и гораздо большую величину, чем сечение U^{238} . Заметим, что у тория энергетический порог очень высок, а сечение чрезвычайно мало, поэтому деление ядер тория будет происходить крайне редко.

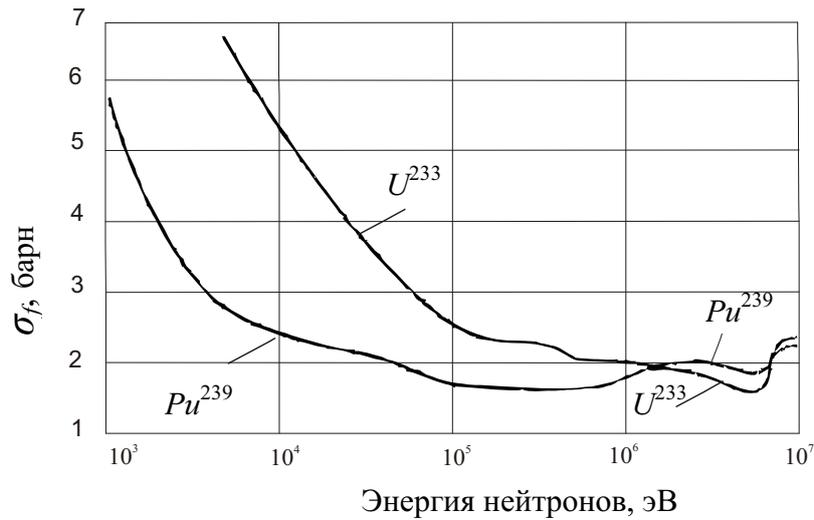


Рис. 17.3.1. Поперечное сечение деления U^{233} и Pu^{239}

Таблица 17.3.1

Зависимость энергетического спектра нейтронов от размера и состава активной зоны реактора

Область энергий, МэВ	Доля нейтронного потока		
	EBR-II	Большой реактор (металлическое горючее)	Большой реактор (оксидное горючее)
1...10	0,20	0,09	0,08
0,10...1,00	0,70	0,67	0,54
0,01...0,10	0,10	0,22	0,30
0,00...0,01	—	0,02	0,08

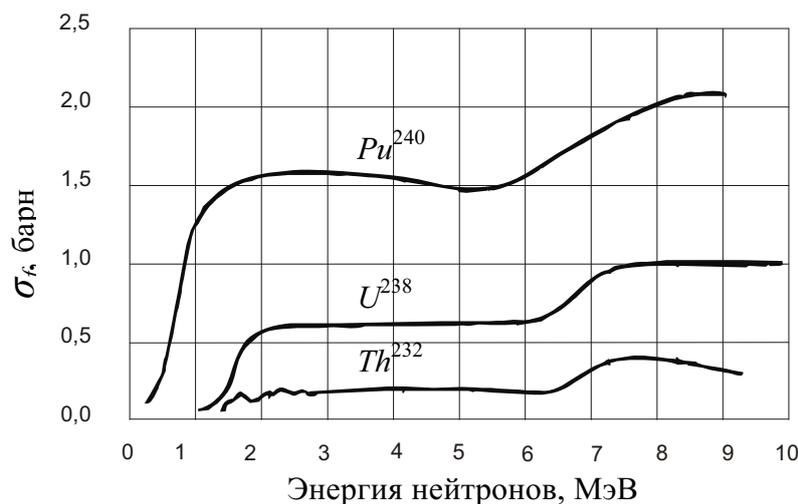


Рис. 17.3.2. Поперечное сечение деления Th^{232} , U^{238} и Pu^{240}

На рис. 17.3.3 показано изменение отношения сечения захвата к сечению деления для ядер Pu^{239} и U^{233} в зависимости от энергии нейтронов.

Это отношение, обозначаемое обычно через α , оказывает главное влияние на воспроизводство в данном реакторе. Коэффициент α для ядер U^{233} мал и очень слабо зависит от энергии в области выше 10 кэВ. Тот же коэффициент для Pu^{239} довольно велик и сильно зависит от энергии около 50 кэВ. Поэтому можно ожидать значительных различий в коэффициентах воспроизводства для реакторов на плутонии, у которых нейтронные спектры лежат в основном либо выше, либо ниже этой энергии.

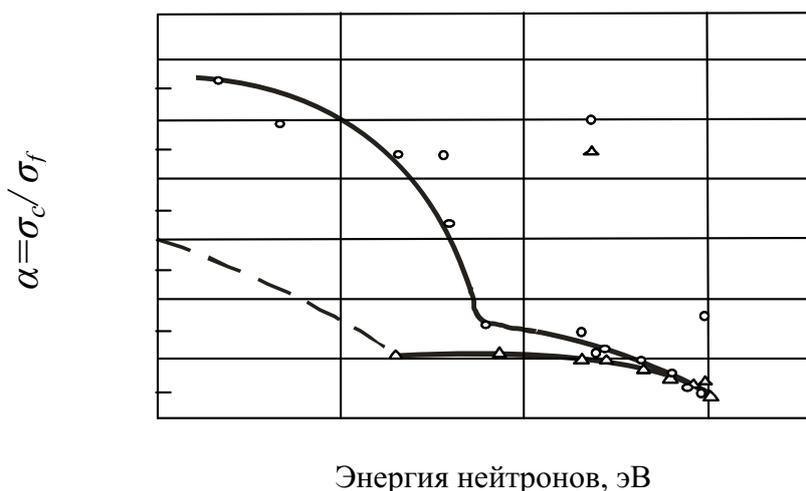


Рис. 17.3.3. Отношение захвата к делению (α) для U^{233} и Pu^{239}

Энергетическая зависимость сечения захвата ядер U^{238} показана на рис. 17.3.4. Сечение тория имеет примерно ту же зависимость. Отношение захвата ядрами воспроизводящих материалов к суммарному значению сечений деления и захвата в делящемся изотопе в широком интервале энергий составляет примерно 1:10. Следовательно, 10%-е обогащение приводит к коэффициенту воспроизводства, близкому к единице.

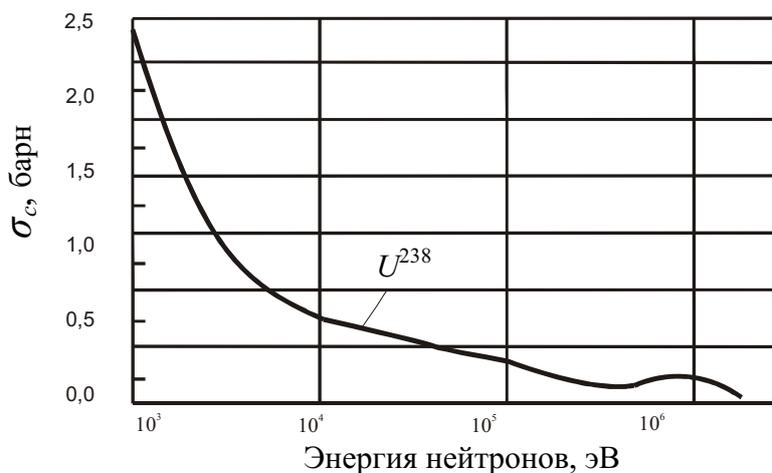


Рис. 17.3.4. Поперечное сечение захвата U^{238}

На примере Pu^{239} можно видеть, что число вторичных нейтронов, испущенных в одном акте деления, возрастает с увеличением энергии (рис. 17.3.5). Аналогичный ход кривой ожидается для всех делящихся изотопов. Однако, как видно из табл. 17.3.2, в которой все величины соответствуют энергии падающего нейтрона, равной 1,5 МэВ, число вторичных нейтронов, испущенных на одно деление, изменяется от изотопа к изотопу.

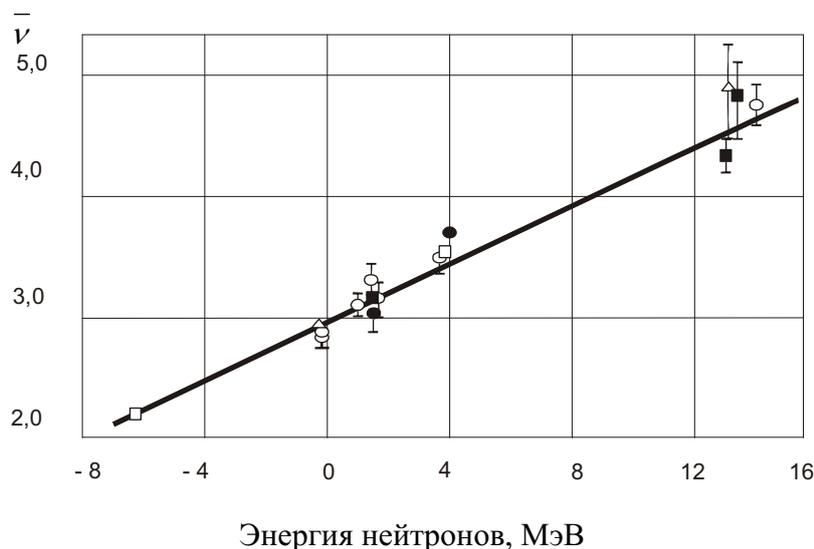


Рис. 17.3.5. Среднее число вторичных нейтронов для Pu^{239}
 ● – Лос-Аламос; Δ – Харуэлл; \circ – СССР;
 ■ – Франция; \square – последние данные

Таблица 17.3.2

Число вторичных нейтронов ν , испущенных
 в одном акте деления при энергии падающего нейтрона 1,5 МэВ

Изотоп	Th	U^{233}	U^{235}	U^{239}	Pu^{239}	Pu^{240}	Pu^{241}
ν	2,4	2,65	2,64	2,60	3,01	3,0	3,1

Из сравнения сечений взаимодействия непосредственно следует, что Pu^{241} вносит больший вклад в реактивность, чем Pu^{239} , а Pu^{240} в этом отношении лучше по сравнению с U^{238} .

На рис. 17.3.6 представлен параметр $(\nu\sigma_f - \sigma_f - \sigma_c)$, который в определенной степени отображает вклад в реактивность изотопов U^{233} и Pu^{239} (на один атом). Аналогичная величина для U^{238} и Pu^{240} представлена на рис. 17.3.7. Кривая для Th должна быть сходна с кривой для U^{238} , за исключением более слабого подъема при высоких энергиях, что вызвано меньшим сечением деления Th. Очевидно, что ниже пороговой энергии деления указанный параметр для воспроизводящих материалов становится отрицательным (равен $-\sigma_c$).

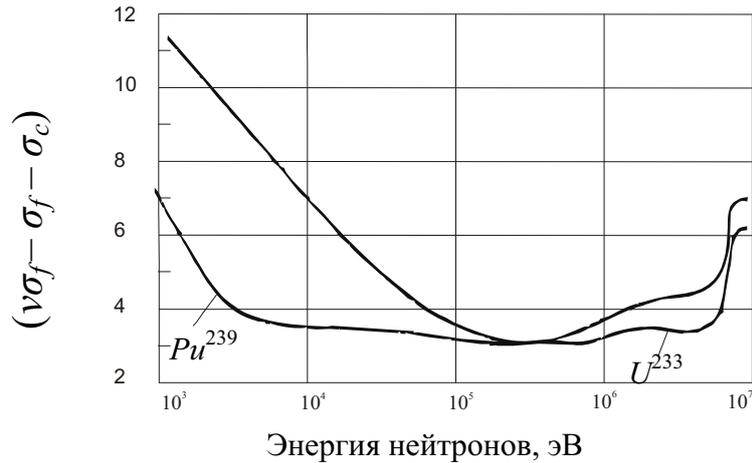


Рис. 17.3.6. Параметр реактивности для U^{233} и Pu^{239}

Тот же самый параметр был усреднен по спектрам четырех реакторов, сильно отличающихся своими нейтронными распределениями. В табл. 17.7.3 приведены результаты усреднения для четырех изотопов: U^{238} , Pu^{239} , Pu^{240} и Pu^{241} . Для материалов с пороговым делением наблюдается резкое изменение этой величины в зависимости от спектра. Действительно, для больших реакторов, в которых влияние рассеяния на утечку нейтронов из активной зоны не очень велико, присутствие в реакторе U^{238} может снизить реактивность. Иными словами, реакторы, в активной зоне которых меньше U^{238} , при прочих равных условиях будут иметь меньшую критическую массу.

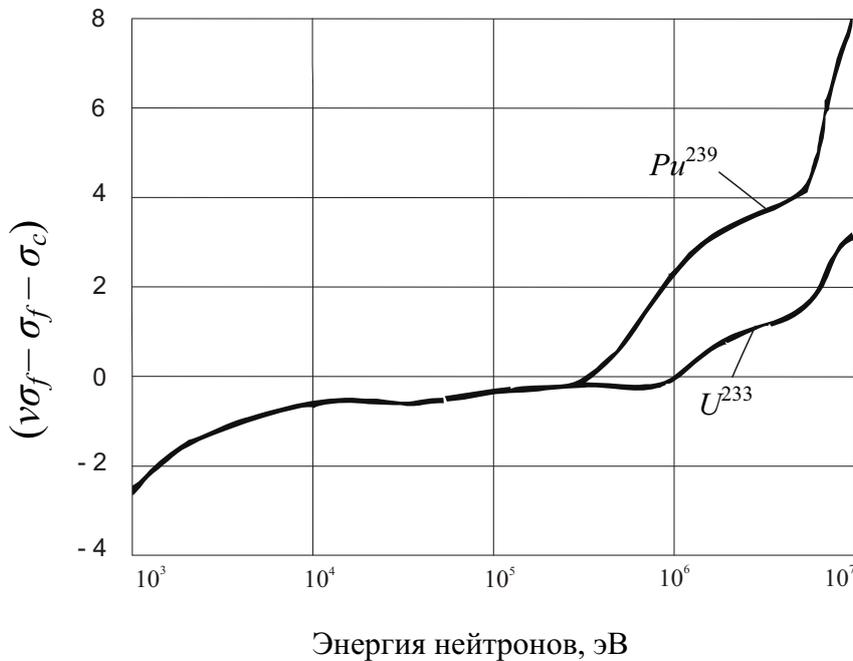


Рис. 17.3.7. Параметр реактивности для U^{238} и Pu^{240}

Таблица 17.3.3

Среднее значение параметра реактивности ($\nu\sigma_f - \sigma_f - \sigma_c$)

Типы реактора	U ²³⁸	Pu ²³⁹	Pu ²⁴²	Pu ²⁴¹	Pu ²⁴⁰
EBR-II	0,033	3,467	1,045	3,995	0,931
«Энрико Ферми»	-0,064	3,391	0,667	4,251	0,581
800 л (металлическое горючее)	-0,188	3,441	0,264	5,136	0,184
1500 л (окисное горючее)	-0,190	3,442	0,215	5,21	0,147

Коэффициент воспроизводства обычного реактора можно описать следующей формулой:

$$\text{Коэффициент воспроизводства} = \frac{\nu - 1 - \alpha - A - L + (\nu' - 1)F}{1 + \alpha},$$

которая представляет собой отношение числа нейтронов, затраченных на воспроизводство (путем захвата в воспроизводящем материале), к числу нейтронов, поглощенных (деление + захват) в изотопе, который делится под действием тепловых нейтронов. Здесь величина A – паразитный захват нейтронов в неделящихся и невоспроизводящих материалах; L описывает утечку нейтронов из зоны воспроизводства; F равно числу делений в воспроизводящем материале, когда в одном акте деления образуется ν' вторичных нейтронов; член $\frac{\nu - 1 - \alpha}{1 + \alpha}$ описывает вос-

производство за счет нейтронов от основного делящегося изотопа; член $(\nu' - 1)$ соответствует дополнительному вкладу в воспроизводство за счет нейтронов, возникших в результате порогового деления ядер воспроизводящего изотопа под действием быстрых нейтронов. В табл. 17.3.4 сравниваются результаты усреднения этих членов для соответствующих изотопов по спектру четырех различных реакторов. Видно, что для этих реакторов Pu²³⁹ и Pu²⁴¹ обладают значительно более высокой воспроизводящей способностью, чем U²³³. Воспроизводящая способность U²³⁵ самая низкая из всех приведенных изотопов. Во всех случаях характерно некоторое снижение воспроизводящей способности по мере смягчения нейтронного спектра. Поскольку величина α для U²³³ изменяется сравнительно слабо, возможно, что в реакторе с промежуточным спектром, средняя энергия которого значительно ниже средней энергии спектров для реакторов из табл. 17.3.4, воспроизводящая способность U²³³ будет такой же, как и у Pu²³⁹.

Среди воспроизводящих материалов Pu²⁴⁰, благодаря более высокому сечению деления, может обеспечить гораздо больший вклад от делений на быстрых нейтронах, чем U²³⁸. Вклад тория от деления на быстрых нейтронах весьма невелик.

Таблица 17.3.4

*Зависимость воспроизводящей способности
некоторых изотопов от спектра*

Тип реактора	$(\nu - 1 - \alpha)/(1 + \alpha)$				$(\nu - 1)\sigma_t$			
	Pu ²³⁹	Pu ²⁴¹	U ²³³	U ²³⁵	U ²³⁸	Pu ²⁴⁰	Pu ²⁴²	Th
EBR-II	1,785	1,862	1,438	1,173	0,187	1,349	1,302	0,034
«Энрико Ферми»	1,707	1,810	1,389	1,123	0,116	1,007	0,978	0,021
800 л (металлическое горючее)	1,559	1,755	1,329	1,041	0,081	0,745	0,724	0,014
1500 л (окисное горючее)	1,546	1,748	1,321	1,032	0,087	0,709	0,689	0 015

Рабочие характеристики реакторов. Основные расчетные характеристики широкого класса больших энергетических реакторов на быстрых нейтронах были получены в 1960 г. на основе имевшихся в то время измерений поперечных сечений. Некоторые характерные результаты приводятся здесь для того, чтобы дать представление об особенностях главных параметров реакторов. Расчеты проводились для реакторных систем сферической геометрии, имеющих типичную, но достаточно широкую по диапазону состава композицию. Коэффициент воспроизводства определялся как отношение количества образовавшихся изотопов, способных делиться под действием тепловых нейтронов, к количеству использованных изотопов.

Подробные данные, касающиеся геометрии активной зоны, состава и плотности применяемого горючего, приведены в табл. 17.3.5.

Таблица 17.3.5

Некоторые данные по реакторам

Материал	Объёмная доля в активной зоне	Горючее	Плотность, г/см ³
Делящийся и воспроизводящий	0,25	Pu – U ²³⁸	19
		PuO ₂ – UO ₂	8,4
Конструкционные	0,25	PuC – UC	11,39
Na	0,5	Th	11,58

Тип плутониевого горючего	Содержание плутония, ат. %			
	Pu ²³⁹	Pu ²⁴⁰	Pu ²⁴¹	Pu ²⁴²
A	100	0	0	0
B	74,7	10,2	12,4	2,7
C	40	10	25	25

Толщина отражателя:
45 см (уран), 54 см (торий)

Материал	Объёмная доля в зоне воспроизводства
U ²³⁸ или Th	0,6
Сталь	0,2
Натрий	0,2

В табл. 17.3.6 критические массы, коэффициент воспроизводства, коэффициент внутреннего воспроизводства и среднее значение величины α для Pu^{239} приводятся в зависимости от объема активной зоны для реакторов, которые работают на металлическом ($\text{Pu}^{239} + \text{U}^{238}$), окисном или карбидном горючем. Для всех реакторов предполагается, что 25 % объема активной зоны занято топливом, а 25 % – нержавеющей сталью. Плутониевое горючее содержит чистый изотоп Pu^{239} . Критические массы растут по мере увеличения реактора, в то время как коэффициент воспроизводства несколько падает, что обусловлено ростом величины α для Pu^{239} при снижении средней энергии нейтронов. При отсутствии таких замедлителей, как кислород или углерод и при более высокой концентрации сильного поглотителя, каким является U^{238} , чрезвычайно небольшое количество нейтронов попадает в область низких энергий. Результатом этого является снижение средней величины α для металлического горючего. Этот фактор, наряду с вкладом делений на быстрых нейтронах, который увеличивается при более высокой концентрации ядер U^{238} , приводит к существенному повышению коэффициента воспроизводства для металлического горючего.

Таблица 17.3.6

Рабочие характеристики реакторов, работающих на смеси U^{238} – Pu^{239} в виде металла, окиси или карбида (конструкционный материал – сталь, теплоноситель – Na)

Объем активной зоны, л	Вид горючего	Критическая масса, кг	Коэффициент воспроизводства	Коэффициент внутреннего воспроизводства	α для Pu^{239} (отношение захвата к делению)
800	Металл	431	1,82	0,73	0,19
	Окись	372	1,55	0,31	0,23
	Карбид	396	1,62	0,46	0,22
1500	Металл	686	1,79	0,91	0,20
	Окись	562	1,47	0,44	0,25
	Карбид	613	1,56	0,61	0,24
2500	Металл	1025	1,76	1,04	0,21
	Окись	806	1,42	0,54	0,27
	Карбид	897	1,52	0,73	0,25

В табл. 17.3.7 приведены аналогичные результаты, полученные для реакторов с топливом U^{233} –Th. Легко установить, что для этих реакторов коэффициент воспроизводства лежит в пределах между 1,2 и 1,3. Оказалось, что коэффициент α у U^{233} для довольно широкого круга изученных реакторов изменяется сравнительно слабо. Коэффициент вос-

производства этих реакторов ниже, чем у плутоний-урановых реакторов. Это происходит не только вследствие меньшей способности U^{233} к воспроизводству при высоких энергиях нейтронов, но и за счет меньшего вклада в воспроизводство от деления тория на быстрых нейтронах.

Таблица 17.3.7

Рабочие характеристики реакторов, работающих на смеси $Th-U^{233}$ в виде металла, окиси или карбида (конструкционный материал – сталь, теплоноситель – Na)

Объем активной зоны, л	Вид горючего	Критическая масса, кг	Коэффициент воспроизводства	Коэффициент внутреннего воспроизводства	α для U^{233} (отношение захвата к делению)
800	Металл	453	1,29	0,38	0,085
	Окись	371	1,23	0,27	0,099
	Карбид	410	1,26	0,38	0,096
1500	Металл	679	1,28	0,50	0,089
	Окись	539	1,21	0,39	0,106
	Карбид	616	1,24	0,52	0,102
2500	Металл	968	1,28	0,61	0,092
	Окись	755	1,19	0,49	0,112
	Карбид	890	1,23	0,62	0,106

Влияние более тяжелых изотопов плутония на рабочие параметры реактора проиллюстрировано в табл. 17.3.8. В этой таблице сравниваются реакторы с объемом активной зоны 1500 л, в которых используются в качестве горючего три гипотетические композиции: тип Pu-A, представляющий собой чистый Pu^{239} ; тип Pu-B, который соответствует смеси 75,3 % Pu^{239} , 10 % Pu^{240} , 12 % Pu^{241} и 2,7 % Pu^{242} ; тип Pu-C, для которого процентный изотопный состав характеризуется величинами 40 % Pu^{239} – 10 % Pu^{240} – 25 % Pu^{241} – 25 % Pu^{242} . Как и следовало ожидать, на основании приведенных выше соображений о сечениях взаимодействия, коэффициент воспроизводства растет по мере увеличения концентрации более тяжелых изотопов, тогда как критическая масса, измеренная для изотопов, делящихся под действием тепловых нейтронов, уменьшается.

Детально сечения захвата для всех продуктов деления пока ещё не измерены, тем не менее, можно провести некоторые теоретические оценки. В табл. 17.3.9 на примере реакторов, в которых в качестве горючего используются металл, окись и карбид, показано влияние продуктов деления на коэффициент воспроизводства и критическую массу. Объем активной зоны во всех случаях составляет 1500 л. Счи-

талось, что в каждом случае в активной зоне содержится одно и то же количество продуктов деления, которое составляет $8 \cdot 10^{20}$ атомов в 1 см^3 . Указанная концентрация продуктов деления возникнет после выгорания 3 % ядер в металлическом топливе $\text{Pu} + \text{U}^{238}$, что соответствует энерговыработке 33 000 МВт·сутки/т. Соответствующее выгорание тяжелых атомов в случае окисного топлива составляет 8,6 %, а в случае карбидного – 5,8 %. Как видно, влияние такого значительного количества продуктов деления на воспроизводство невелико, хотя им нельзя полностью пренебрегать.

Таблица 17.3.8

Критическая масса и коэффициент воспроизводства для реакторов на плутониевом горючем различного типа (объем активной зоны 1500 л)

Вид горючего	А		В		С	
	Критическая масса, кг	Коэффициент воспроизводства	Критическая масса, кг	Коэффициент воспроизводства	Критическая масса, кг	Коэффициент воспроизводства
Металл	686	1,79	635	1,90	552	2,08
Окись	562	1,47	514	1,57	542	1,72
Карбид	613	1,56	562	1,67	483	1,82

Таблица 17.3.9

Влияние продуктов деления ($8 \cdot 10^{20}$ атом/см³) на характеристики реактора с объемом зоны 1500 л

Вид горючего	Критическая масса, кг		Коэффициент воспроизводства	
	Неотравленный реактор	Реактор, отравленный продуктами деления	Неотравленный реактор	Реактор, отравленный продуктами деления
Металл	686	700	1,79	1,74
Окись	562	592	1,47	1,39
Карбид	613	630	1,56	1,47

Характеристики реакторов, не имеющих внутреннего воспроизводства, до настоящего времени еще детально не исследованы. К этой категории должны относиться реакторы с топливом на основе обогащенных окиси или металла, диспергированных в матрице из нержа-

вующей стали. В больших реакторах такого типа критические массы и коэффициенты воспроизводства, вообще говоря, будут гораздо ниже. В очень большом реакторе захват нейтронов в уране-238 или тории, находящихся в активной зоне, приводит к потере реактивности. Следовательно, критическая масса для систем, у которых в активной зоне отсутствует воспроизводящий материал, будет меньше. Однако при этом почти полностью отсутствует деление воспроизводящего материала на быстрых нейтронах (небольшой вклад за счет зоны воспроизводства сохраняется), а паразитный захват в плутонии должен заметно возрасть. В результате этого в аппаратах, работающих на обычном металлическом плутонии, может произойти снижение коэффициента воспроизводства до 0,6. В реакторе на U^{233} не должно быть такого большого падения этого коэффициента.

Реактивность. Уменьшение реактивности ⁷, связанное с равномерным выгоранием доли $\Delta M/M$ первоначальной критической массы, дается следующим приближенным соотношением:

$$\frac{\Delta k}{k} : \frac{\Delta M_c}{M_c} \approx (0,4 \dots 0,5)$$

$$\Delta M_c = M_c \frac{\text{Выгорание топлива, \%}}{\text{Обогащение топлива}} \cdot F \cdot (1 - \bar{A}),$$

где F – есть доля актов делений в делящемся изотопе, происходящих в активной зоне, а величина \bar{A} представляет собой коэффициент внутреннего воспроизводства, равный отношению числа делящихся ядер, возникших в активной зоне, к полному числу ядер делящегося изотопа, исчезнувших в зоне при работе реактора (за счет захвата или деления).

Изменение реактивности зависит главным образом от произведения выгорания горючего на величину $(1 - \bar{A})$. Безусловно, если вновь образовавшийся делящийся изотоп отличается от распавшегося, то в записанное выше соотношение должен войти относительный вклад реактивности каждого из двух изотопов.

Радиальный рост топливного сердечника внутри оболочки под облучением будет лишь незначительно влиять на реактивность в соответствии с небольшим перемещением геометрической границы между натрием и другими материалами. С другой стороны, аксиальный рост означает прямое изменение плотности горючего по всей активной зоне в целом. Влияние такого перемещения горючего на реактивность можно грубо оценить с помощью соотношения

⁷ Реактивность $\Delta k/k$ характеризует отклонение от критичности, иными словами, показывает отличие коэффициента размножения нейтронов от единицы.

$$\frac{\Delta k}{k} \approx -0,3 \frac{\Delta L}{L},$$

где $\frac{\Delta L}{L}$ – относительное удлинение при фиксированных радиусе активной зоны и массе горючего. Числовой фактор в этом уравнении будет изменяться с изменением таких параметров зоны, как ее размеры и отношение высоты к диаметру. В табл. 17.3.10 приведены данные для трех реакторов, характеризующие потери запаса реактивности, обусловленные выгоранием горючего и накоплением продуктов деления в активной зоне реактора. В этой же таблице приводятся величины приращения реактивности за счет накопления плутония в зоне воспроизводства. В качестве примера было выбрано произвольное выгорание, равное 5 % делящихся атомов для металлического горючего и 10 % для окиси и карбида. У всех трех реакторов потеря реактивности связана, главным образом, с выгоранием топлива в зоне. Уменьшение реактивности в случае окиси и карбида значительно выше, так как эти композиции дают относительно низкий коэффициент внутреннего воспроизводства. Влияние накопления продуктов деления на реактивность ограничено, поскольку оно нивелируется приростом реактивности за счет накопления плутония в зоне воспроизводства. Изменение изотопного состава плутония влияет на величину запаса реактивности вследствие изменения выгорания топлива в активной зоне.

Потеря реактивности при чистом Pu^{239} выше, чем в случае равновесной смеси изотопов, полученной в процессе воспроизводства горючего. Разница в потерях для этих двух случаев того же порядка, что и потеря реактивности за счет накопления продуктов деления.

В быстром реакторе уменьшение запаса реактивности даже на 2...3 % может оказаться существенным для компенсации с помощью регулирующих стержней. Небольшие размеры активной зоны и отсутствие эффективных поглотителей в сочетании с требованием обеспечения критической безопасности – все это в значительной мере ограничивает возможность корректировки реактивности. В этом отношении помогает частичная перегрузка, что достигается ценой простоя реактора (в этом случае не возникает затруднений, связанных с образованием ксенона). Тем не менее, постоянство уровня реактивности представляется чрезвычайно желательным и, в принципе, для больших энергетических реакторов на быстрых нейтронах не лежит за пределами достижимого. Коэффициент внутреннего воспроизводства может быть легко повышен путем увеличения плотности или объемной доли топливной смеси. Это вызовет относительно слабое изменение критической массы или полного коэффициента воспроизводства.

Таблица 17.3.10

Изменение реактивности при выгорании

Тип реактора		Коэффициент воспроизводства	Коэффициент внутреннего воспроизводства	Количество атомов Pu + U в $1 \text{ см}^3 (\times 10^{24})$	Выгорание атомов Pu + U, %	Натриевый коэффициент			
Объём активной зоны, л	Вид горючего					Выгорание в зоне	Накопление горючего в зоне воспроизводства	Отравление продуктами деления	Всего
800	Металл	1,82	0,73	0,012	5	- 0,054	+0,026	- 0,017	- 0,045
1500	Окись	1,47	0,44	0,00467	10	- 0,169	+0,025	- 0,037	- 0,181
1500	Карбид	1,56	0,61	0,0069	10	- 0,146	+0,031	- 0,028	- -0,144

Влияние потери натрия на реактивность. Потеря части или всего натрия из реактора вызывает изменение реактивности благодаря следующим факторам:

1. Натрием захватывается небольшое количество нейтронов, что и определяет увеличение реактивности при его утечке. Вообще говоря, этот эффект незначителен, так как сечение захвата натрия очень мало. Однако натрий обладает большим резонансным поглощением при 3 кэВ, и поэтому в случае больших быстрых реакторов, которые работают на керамическом топливе, этим явлением пренебрегать нельзя.

2. В случае утечки натрия уменьшается рассеяние нейтронов. Вероятность вылета нейтронов из активной зоны возрастет, а реактивность уменьшится. Основной вклад в этот эффект будет вносить натрий, расположенный вблизи границы активной зоны. Изменение направления движения нейтронов в центральной части зоны меньше отражается на вероятности их вылета.

Небольшие реакторы, имеющие большой вылет нейтронов, будут более чувствительны к изменению вероятности рассеяния, чем большие. Реакторы, в которых основную роль в рассеянии играет именно натрий, при потере теплоносителя в наибольшей степени увеличат вылет нейтронов.

3. Уменьшение упругого и неупругого рассеяния на ядрах натрия приведет к сдвигу нейтронного спектра в сторону больших энергий. Вероятность деления таких изотопов, как U^{238} и Pu^{240} , станет выше. Захват и деление во всех изотопах будет наблюдаться при более высокой средней

энергии. Однако сечение захвата ядер Pu^{239} при возрастании энергии спадает гораздо быстрее, чем его сечение деления. То же самое можно заметить и относительно сечения захвата большинства сильно поглощающих изотопов, таких, например, как Nb и U^{238} . Следовательно, среднее число нейтронов $\eta(E)$, возникших при поглощении одного нейтрона (деление и захват без деления в любых материалах активной зоны), возрастает за счет сдвига спектра в область более высоких энергий, что приводит к увеличению реактивности. Этот эффект проиллюстрирован рис. 17.3.8, где представлены результаты исследований реактора с объемом активной зоны 1500 л, который работает на топливной композиции PuC–UC. В качестве конструкционных материалов в этом реакторе используется сталь или ниобий.

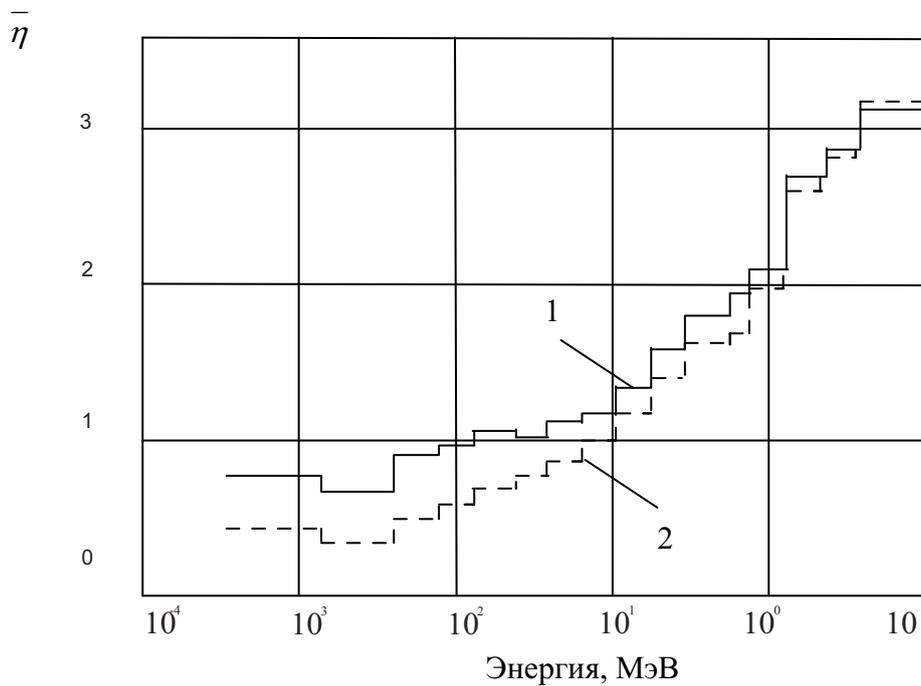


Рис. 17.3.8. Зависимость отношения захвата к полному сечению поглощения ($\bar{\eta}$) от энергии нейтронов (объем активной зоны 1500 л, горючее PuC–UC):
1 – сталь; 2 – ниобий

Общее влияние потери теплоносителя на реактивность будет отрицательным, если вклад от нейтронного вылета окажется преобладающим. Этот эффект отмечается в случае реакторов EBR-II и «Энрико Ферми». Как показано на рис. 17.3.9, натриевый коэффициент становится менее отрицательным (или более положительным), когда при заданном составе активной зоны размеры реактора возрастают. Каждому составу соответствует некоторый размер активной зоны, при котором начинают преобладать спектральные эффекты и общее изменение реактивности оказывается положительным. Реактор, которому соответствуют данные рис. 17.3.9, явля-

ется уран-плутониевым реактором со сталью или ниобием в качестве конструкционных материалов. Натрий занимает 50 % общего объема активной зоны. В случае стали положительный коэффициент отмечается при объеме зоны около 1200 л, тогда как при ниобии пороговое значение спада реактивности соответствует объему ниже 500 л. Расчеты были проведены для сферической геометрии, а натриевый коэффициент реактивности оценивался для случая потери натрия только из активной зоны.

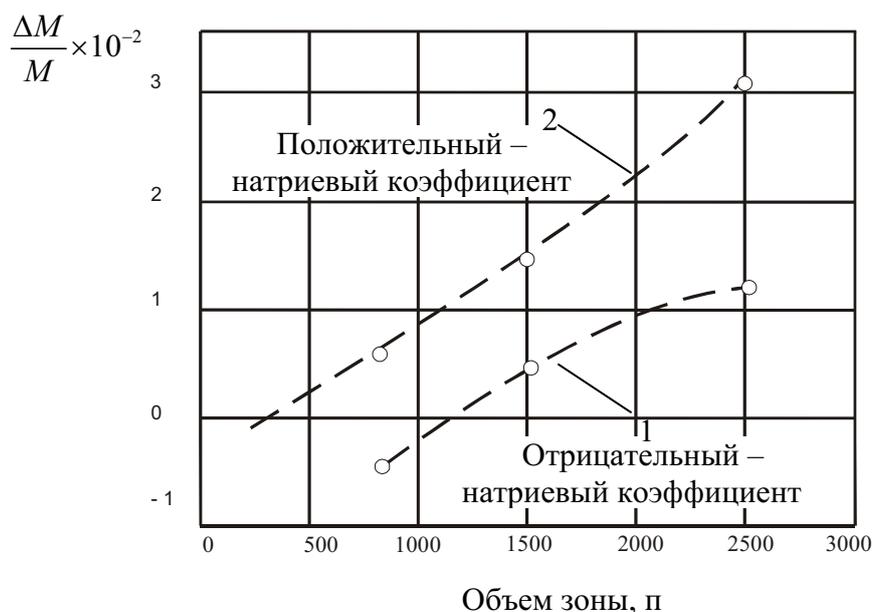


Рис. 17.3.9. Изменение реактивности при удалении 40% Na из активной зоны реактора на металлическом плутонии: 1 – сталь; 2 – ниобий

Если применяется топливный материал с пониженной плотностью, т. е. в ТВЭЛах будет содержаться меньшее количество U^{238} , то при больших размерах активной зоны натриевый коэффициент имеет положительный знак. На рис. 17.3.10 приведена зависимость натриевого коэффициента от размеров активной зоны реактора, в котором в качестве топлива применяется карбид и окись. В случае PuC–UC пороговое значение объема активной зоны для положительного натриевого коэффициента реактивности, по видимому, должно лежать выше 2000 л, в то время как для окиси эта величина превышает 3000 л. К сожалению, эти объемы, вероятно, меньше тех, которые могут обеспечить получение мощности более 1000 МВт.

Если прирост реактивности, вызванный удалением натрия, всегда будет меньше той величины, которая может быть скомпенсирована другими эффектами реактивности, то для больших энергетических реакторов на быстрых нейтронах потеря теплоносителя не будет иметь большого значения. Как правило, за счет доплер-эффекта или теплового

расширения горючего величина изменения реактивности составляет только 1 % $\Delta k/k$, причем предполагается, что это имеет место при высоких рабочих температурах. С другой стороны, расчет показывает, что для некоторых композиций больших активных зон максимальный прирост реактивности при полной утрате натрия составит 3 % $\Delta k/k$.

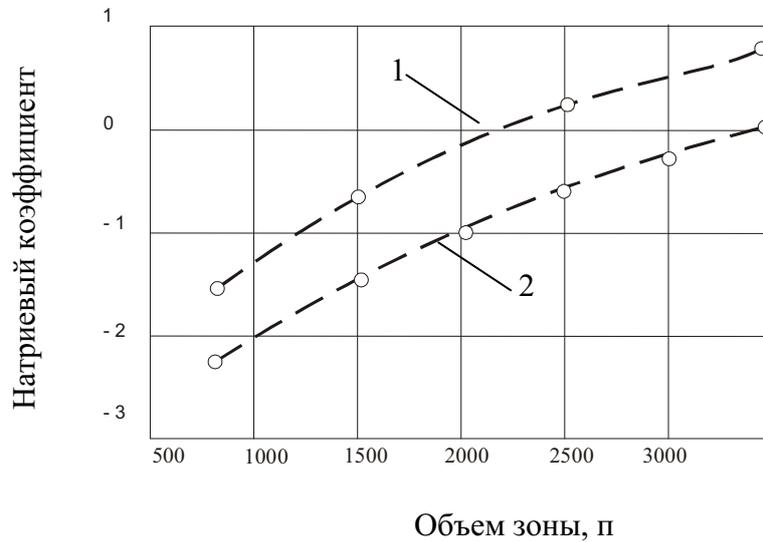


Рис. 17.3.10. Зависимость натриевого коэффициента реактивности от объема активной зоны:
1 – PuC-сталь; 2 – PuO₂-сталь

Следует отметить, что при рассмотрении потери натрия необходимо учитывать режимы работы реактора. Так, образование более тяжелых изотопов плутония в процессе топливного цикла может почти на 1,2 % $\Delta k/k$ превышать величину изменения реактивности в начале кампании. Разница между изменением реактивности может превышать 2 % $\Delta k/k$, если в одном случае топливо нагрето до температуры плавления, а в другом находится при комнатной температуре. Кроме того, влияние потери теплоносителя может возрасти, если он теряется сразу из всего реактора. И наоборот, существуют такие конструкции реакторов, в которых удаление натрия только из внутренней части реактора добавляет 3 % от $\Delta k/k$ к тому изменению реактивности, которое наблюдается при полном удалении натрия из всего реактора.

Определение всех возможных вариантов влияния потери натрия на реактивность с целью обеспечения приемлемой величины колебания реактивности (за счет натриевого эффекта) без ухудшения других рабочих параметров реактора в настоящее время является главной задачей исследования физики больших энергетических реакторов на быстрых нейтронах.

Отрицательный натриевый коэффициент реактора, работающего на смеси Pu и U²³⁸, электрическая мощность которого составляет

1000 МВт, может быть достигнут в том случае, если объем активной зоны будет находиться в пределах от 3000 до 6000 л. Возможно даже, что верхний предел еще больше.

Из рис. 17.3.11 видно, что при заданных композициях активной зоны и объеме натриевый коэффициент сильно зависит от объемной доли натрия в зоне. Для типичных композиций больших реакторов натриевый коэффициент при малых объемных концентрациях натрия имеет небольшое положительное значение. Увеличиваясь с ростом содержания натрия и достигая некоторого максимального значения между 50 и 70 об. % содержания натрия, этот коэффициент затем резко падает, становясь отрицательным. Для достижения отрицательного натриевого коэффициента реактивности необходимо увеличить высоту зоны (объем зоны) и повысить объемную концентрацию натрия.

Рис. 17.3.11 соответствует реактору, работающему на окисном топливе. Для реакторов на сплаве Pu с U^{238} , имеющих те же самые объемные концентрации теплоносителя в активной зоне, натриевый коэффициент реактивности должен быть более положительным, благодаря повышенной концентрации U^{238} в горючем.

Можно ожидать, что высокое объемное содержание натрия в активной зоне приведет к уменьшению коэффициента воспроизводства. Главной причиной этого является уменьшение вклада делений ядер U^{238} под действием быстрых нейтронов. Может быть ухудшена также эффективность зоны воспроизводства по отношению к захвату нейтронов. Внутреннее воспроизводство в активной зоне будет изменяться аналогично отношению количеств ядер U^{238} к Pu^{239} , что приведет к гораздо большей потере реактивности при том же уровне выгорания.

Другим путем достижения отрицательного натриевого коэффициента при большом объемном содержании натрия в зоне является «сплющивание» зоны. Реактор с отношением высоты активной зоны к её диаметру, меньшим единицы, должен обладать большей критической массой, и, следовательно, более высоким коэффициентом размножения k_{∞} и повышенным вылетом нейтронов в сравнении с реактором того же объема, но с отношением L/D , равным единице. Точно так же можно было бы ожидать, что два реактора с одинаковым составом активной зоны, один из которых «приплюснут», а у другого отношение L/D равно единице, должны иметь одинаковый коэффициент размножения k_{∞} и поэтому одинаковый вылет нейтронов. Исследования показали, что натриевый коэффициент для указанных двух реакторов оказался неидентичным. «Сплющенный» реактор обладает более положительным натриевым коэффициентом реактивности. Этот факт вынуждает применять более обогащенное топливо и ещё сильнее деформировать активную зону для

достижения коэффициента реактивности, равного коэффициенту меньшего по размеру почти сферического реактора. Тем не менее, задавая высоту ниже некоторого предела, в принципе возможно достичь требуемых характеристик активной зоны. Этот предел может быть гораздо меньше 65 см (зависит от конструкции реактора). Кроме того, требуется достаточно высокая объемная концентрация теплоносителя в реакторе.

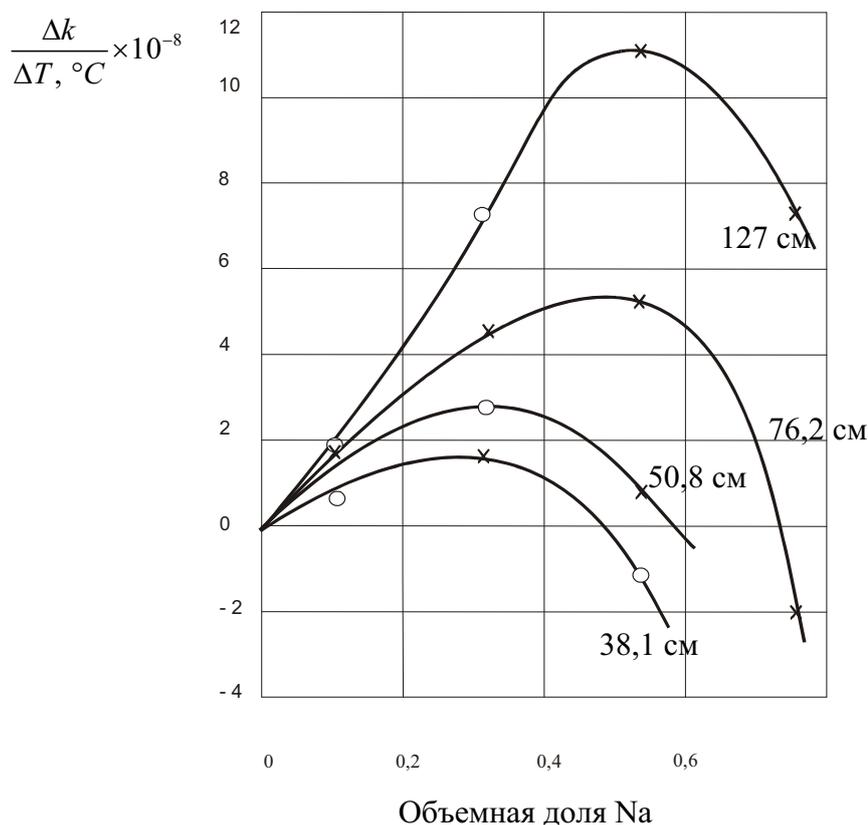


Рис. 17.3.11. Зависимость натриевого температурного коэффициента реактивности $\left(\frac{\Delta k}{\Delta T}\right)$ от высоты активной зоны и объемной доли натрия для бесконечного плоского реактора (кривые соответствуют различным значениям высоты активной зоны):

- o – интерполированные и экстраполированные точки;
- x – расчет отношение объема горючего к объему стали равно 2,0)

С другой стороны, деформация зоны влияет на величину коэффициента воспроизводства. Если ухудшение коэффициента воспроизводства, обусловленное вылетом нейтронов из зоны воспроизводства, нежелательно, могут применяться толстые торцевые отражатели. Последнее сопряжено с большими экономическими затратами, если не будут предложены какие-либо новые конструкции ТВЭЛов или новая схема циркуляции теплоносителя. Кроме того, в «сплюсненной» зоне может

оказаться недостаточно эффективным использование теплоносителя, особенно для горючего с низким коэффициентом теплопроводности.

Возможны также другие геометрические варианты активной зоны с целью достижения высокой удельной мощности. При этом не должно быть никаких осложнений, связанных с положительным коэффициентом реактивности при утечке натрия. Обычно это почти критические зоны с высокообогащенным топливом, которые вместе с отражателем образуют критическую массу.

Можно ожидать, что реакторы большого диаметра с равномерным распределением топлива по объему активной зоны будут иметь большой радиальный коэффициент неравномерности энерговыделения (отношение максимальной мощности к средней). Это заметно снизит энерговыделение с одного килограмма делящегося материала. Отсюда следует, что возможность выравнивания неравномерности энерговыделения по радиусу путем создания зон с различным обогащением представляет большой интерес. К сожалению, такой метод способствует возникновению отрицательного натриевого коэффициента реактивности. Повышение среднего уровня энерговыделения позволяет использовать активные зоны меньшего объема при той же мощности. Кроме того, более высокая относительная концентрация горючего вблизи границ активной зоны повышает статистический вес нейтронов в пограничных областях по отношению к центру. Таким образом, вклад в натриевый коэффициент реактивности, обусловленный вылетом нейтронов, должен увеличиться.

Поскольку изменение реактивности, связанное с потерей натриевого теплоносителя, сильно зависит от расположения части реактора, из которой произошла утечка, необходимо детальное рассмотрение возможных последствий в каждом таком случае. Быстрая утечка натрия через дно реакторного корпуса должна, по-видимому, сначала снизить реактивность, так как натрий исчезает из верхней зоны воспроизводства. Реактивность начнет возрастать в тот момент, когда уровень натрия будет лежать несколько ниже верхней точки активной зоны. Максимальное положительное значение реактивности может наблюдаться при положении уровня натрия где-то между центром и нижней границей активной зоны. Безусловно, предполагается отсутствие других явлений, которые могли бы накладываться на эффекты, вызванные утечкой натрия.

Выброс натрия при вскипании может привести к потере теплоносителя сначала из центральных областей активной и верхней зон воспроизводства. Изменение реактивности в этом случае должно отличаться от изменения при равномерном понижении уровня по активной зоне или от случая, когда натрий исчезает из всего реактора в целом.

Расчеты показывают, что коэффициент реактивности при утечке натрия только из активной зоны сравнительно мало зависит от конструкции зоны воспроизводства. Однако падение уровня реактивности при исчезновении натрия из зоны воспроизводства очень велико, если объемное содержание натрия в ней высокое. К сожалению, такая зона неэффективна с точки зрения полезного захвата нейтронов, что может явиться причиной заметного уменьшения коэффициента воспроизводства. Необходимы определенные конструктивные решения, чтобы эти два эффекта дали положительный результат одновременно.

Очевидно, существуют основные критерии для отыскания оптимальной конструкции больших энергетических реакторов – бридеров, использующих смеси $\text{Pu}^{239}\text{-U}^{238}$. Задача усложняется из-за отсутствия данных по нейтронным сечениям и достаточно тщательно разработанных методик расчета по сравнению с теми, которыми обычно пользуются для расчета пространственной зависимости натриевого коэффициента реактивности при решении двумерной задачи. Легко показать необходимость точного знания поперечных сечений. Проведенные измерения для отдельных областей энергий показали, что изменение отношения $\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$ для Pu^{239} может привести к изменению натриевого ко-

эффициента реактивности на 25 %, в особенности для реакторов на окисном горючем. Поэтому естественно ожидать, что сравнительно небольшие отклонения от действительных величин поперечных сечений более тяжелых изотопов плутония (для которых данные отсутствуют) приведут к 25%-му изменению натриевого коэффициента в аналогичных реакторных установках (при одинаковых топливных композициях).

Отмеченные неточности не так велики, чтобы затушевывать основную роль, которую играет конструкция реактора. Однако они указывают на то, что для получения приемлемых натриевых коэффициентов необходимо проявлять известную осторожность. Так как наши возможности предсказывать и измерять эти коэффициенты возрастают, выполнение требований безопасности эксплуатации реакторов в дальнейшем может быть облегчено.

Другие теплоносители. Ввиду того что возникновение положительного коэффициента реактивности при утечке натрия определяется в основном замедляющей способностью этого элемента, можно надеяться, что этот эффект будет менее выражен при использовании тяжелого теплоносителя. В целях оценки изменения реактивности при потере теплоносителя были проделаны соответствующие расчеты для нескольких больших реакторов, охлаждаемых свинцово-висмутовой эвтектикой. Эти два элемента относятся к числу элементов с «магическим чис-

лом» нуклонов, имеют малое сечение захвата нейтронов и высокий порог неупругого рассеяния, что делает их идеальными с точки зрения требований, предъявляемых к теплоносителям. В реакторах, в которых потеря натрия приводила к большому положительному коэффициенту реактивности, в случае использования сплава свинец–висмут при потере теплоносителя возникает высокий отрицательный коэффициент реактивности. Такой теплоноситель, как калий, также должен способствовать снижению положительного коэффициента.

В качестве возможного теплоносителя быстрого реактора исследовался литий. Как и ожидалось, даже слабо поглощающий изотоп Li^7 в больших реакторах дает более положительный коэффициент, чем натрий, что является следствием его повышенной замедляющей способности. Добавление к литию небольшого количества изотопа Li^6 ухудшает его характеристики. Изотоп Li^6 является сильным поглотителем нейтронов и его быстрое удаление из активной зоны вызывает значительный прирост реактивности.

Маловероятно, чтобы реакторы, охлаждаемые гелием или водяным паром, обладали бы заметными эффектами реактивности, связанными с колебаниями давления теплоносителя, если только его плотность не станет настолько большой, что замедляющая способность начнет играть ощутимую роль.

Допплер-эффект. Нагревание горючего изменяет частоту колебаний атомов, приводя к перераспределению относительных скоростей между нейтронами и атомами. Любая самоэкранировка резонансных поглотителей при этом уменьшается, и увеличение вероятностей взаимодействий отражается на реактивности. Если нагреть только один делящийся материал, следствием этого должно быть возрастание реактивности, вызванное увеличением вероятности деления по сравнению с вылетом. Если же изотоп с большим поперечным сечением захвата, сравнимым, например, с сечением U^{238} , равномерно перемешан с достаточным количеством делящегося изотопа, эффект Доплера, связанный с нагреванием горючего, будет приводить к снижению реактивности.

Самоэкранировка резонансов мала при высоких энергиях нейтронов. Расширение резонансных уровней, увеличение их плотности и ослабление резонансов – все эти факторы вызывают перекрытие уровней. В реакторах среднего размера, типа реакторов EBR-II и «Энрико Ферми», имеющих относительно высокое обогащение горючего и жесткий нейтронный спектр, влияние эффекта Доплера на реактивность должно быть, по видимому, невелико, намного меньше отрицательного эффекта реактивности, вызванного тепловым расширением горючего в этих реакторах.

С другой стороны, в больших реакторах на быстрых нейтронах, особенно в тех, которые работают на карбидных или окисных топливных керамиках, т. е. в тех реакторах, для которых отношение замедляющей способности к сечению поглощения достаточно велико, чтобы обеспечить заметное количество нейтронов с энергией ниже 10 кэВ, эффект Доплера может быть значительным. Для некоторых реакторов расчетное значение коэффициента Доплера при рабочих температурах горючего оказалось равным $-1 \cdot 10^{-5} \Delta k/k$ на 1°C . Такие реакторы должны терять около $0,015 \Delta k/k$ при нагревании топлива от комнатной до рабочей температуры. Их реактивность будет снижаться почти на $0,007$, когда температура горючего повысится от рабочей до точки плавления. В этой области температур коэффициент Доплера для таких реакторов падает при увеличении температуры, грубо говоря, по закону $1/T$.

Быстрое возникновение отрицательного эффекта Доплера выдвигает некоторые дополнительные требования к контролю реактивности. Наличие этого эффекта, однако, сильно повышает безопасность эксплуатации реактора и в какой-то степени решает проблему стабильности его работы. Доплер-эффект уменьшает случайные резкие изменения реактивности, которые могли бы приводить к чрезмерному увеличению температуры горючего. В том случае, когда положение становится настолько серьезным, что для ликвидации аварийной ситуации требуется очень быстрое создание давления и расчленение критической массы, отрицательный доплер-эффект может заметно облегчить положение. При наличии большого положительного коэффициента Доплера безопасность обслуживания реактора становится проблематичной. По этой причине маловероятно развитие больших гетерогенных энергетических установок на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением, использующих высокообогащенное горючее, диспергированное в каком-либо слабо поглощающем материале, например цирконии.

Энергетический спектр нейтронов в больших быстрых реакторах на металлическом топливе можно регулировать и сдвигать в сторону низких энергий путем введения в активную зону заранее определенных небольших количеств замедляющего вещества. В этом случае эффект Доплера и коэффициент воспроизводства будут теми же самыми, что и у реактора на керамическом горючем с таким же отношением воспроизводящего материала к делящемуся.

Наоборот, уменьшение количества натрия в зоне сделает нейтронный спектр жестче и снизит эффект Доплера, определяющийся дополнительным повышением температуры горючего. По некоторым оценкам удаление натрия из активной зоны большого реактора с керамическим топливом при первоначальном объемном содержании натрия 52 % сни-

зит коэффициент Допплера в два раза. Некоторые результаты таких расчетов воспроизведены в табл. 17.3.11.

Расчеты показали, что для реакторов, имеющих первоначальное объемное содержание натрия 70 %, коэффициент Допплера при потере теплоносителя снижается почти в четыре раза. Это резкое уменьшение влияния эффекта Допплера всегда значительно меньше возможного увеличения реактивности, вызванного утечкой натрия из большого реактора, и приводит к необходимости рассмотрения вопроса о добавлении определенных количеств замедляющего материала в активную зону (возможно, окиси бериллия), что сделает коэффициент Допплера менее чувствительным к утечке натрия, однако, приведёт к уменьшению коэффициента воспроизводства в плутониевых реакторах.

Таблица 17.3.11

Влияние доплер-эффекта на реактивность в больших быстрых реакторах, работающих на $PuO_2-U^{238}O_2$ и $PuC-U^{238}C$

Pu:U ²³⁸	Присутствие Na	300...2500 К		300...750 К		1500...2500 К	
		$-\Delta k, \%$	$-\frac{\Delta k}{\Delta T} \cdot 10^5$	$-\Delta k, \%$	$-\frac{\Delta k}{\Delta T} \cdot 10^5$	$-\Delta k, \%$	$-\frac{\Delta k}{\Delta T} \cdot 10^5$
О к и с ь							
1:9	Да	2,63	1,15	1,09	2,40	0,59	0,59
1:9	Нет	1,44	0,65	0,63	1,40	0,29	0,29
1:7	Да	1,81	0,79	0,77	1,73	0,40	0,40
1:7	Нет	0,92	0,40	0,39	0,87	0,18	0,18
К а р б и д							
1:9	Да	1,95	0,89	0,82	1,82	0,40	0,40
1:9	Нет	1,11	0,48	0,47	1,05	0,20	0,20
1:7	Да	1,30	0,59	0,54	1,20	0,29	0,29
1:7	Нет	0,63	0,29	0,27	0,60	0,12	0,12

Отрицательный коэффициент Допплера, вероятно, можно создать более простыми средствами. По-видимому, для этой цели достаточно иметь сравнительно небольшие отношения воспроизводящего материала к делящемуся (например, 2:1), хотя это требует дальнейшей теоретической и экспериментальной проверки.

Другие топливные циклы. Поскольку мировые ресурсы атомного топлива в основном связаны с Th и U²³⁸, можно ожидать, что для каждого из этих изотопов, которые являются сырьем для получения вторичного горючего, определится свой способ применения в реакторах-воспроизводителях, причем U²³³ и Pu²³⁹ будут служить в качестве основных делящихся изотопов. Обычно говорят о топливных циклах U²³⁸-Pu²³⁹

и $\text{Th}^{232}\text{-U}^{233}$. В последнем случае коэффициент воспроизводства в больших быстрых реакторах составит 1,20...1,25. Это меньше, чем при топливном цикле $\text{U}^{238}\text{-Pu}^{239}$, но все же значительно выше единицы. Однако может оказаться, что более приемлемые рабочие характеристики будут получены при использовании «смешанных» топливных систем, подобных Th-Pu^{239} или $\text{U}^{238}\text{-U}^{233}$.

Поперечное сечение деления ядер U^{233} при увеличении энергии нейтронов от 6 до 100 кэВ спадает более плавно, чем сечение Pu^{239} . Кроме того, отношение захвата к делению для быстрых нейтронов у изотопа U^{233} меньше и плавно изменяется с энергией, тогда как это же отношение для Pu^{239} обнаруживает резкий спад между 30 и 300 кэВ. Следовательно, U^{233} должен обеспечивать гораздо меньшее по сравнению с Pu^{239} увеличение реактивности, вызванное сдвигом спектра в область более высоких энергий нейтронов при потере натрия из активной зоны. В реакторе на U^{233} возникает меньше трудностей, связанных с возникновением положительного натриевого коэффициента реактивности.

Поперечное сечение деления Th по сравнению с U^{238} гораздо меньше, а энергетический порог деления у него выше. Поэтому в случае Th вклад делений на быстрых нейтронах в коэффициент воспроизводства будет очень малым. Однако по этой же причине прирост реактивности, обусловленный увеличением числа делений на быстрых нейтронах, при потере натрия будет меньше. Это приведет к увеличению отрицательного натриевого коэффициента. Кроме того, плотность металлического тория меньше плотности урана. Из двух реакторов, работающих на металлическом горючем, в которых объемная доля урана и воспроизводящего материала одинакова, ториевый будет характеризоваться меньшим захватом и рассеянием нейтронов, что также увеличивает отрицательный натриевый коэффициент.

В реакторе на ториевом топливе возникают осложнения, связанные с проблемой регулирования. После захвата нейтрона ядром Th сначала образуется ядро изотопа Pa^{233} с периодом полураспада 27,4 суток, которое превращается в ядро U^{233} (промежуточное ядро в цепочке превращений $\text{U}^{238}\text{-Pu}^{239}$ ядро Np^{239} имеет период полураспада лишь 2,33 суток). Поэтому в ториевом реакторе будет наблюдаться накопление значительного количества Pa^{233} . Если такой реактор выключить после длительной работы на повышенной мощности, то в результате распада изотопа Pa^{233} , накопившегося в активной зоне, высвободится значительная реактивность. Так, для реальной конструкции реактора с топливным циклом Th-U^{233} посчитано, что в течение 22 суток высвободится 1...0,75 % $\Delta k/k$, а полный достижимый уровень может составить 4 % $\Delta k/k$. Конечно, эта реактивность теряется в начальный момент работы

реактора, что в определенной мере затрудняет оценку полного запаса реактивности на выгорание. Оценки показывают, что даже при коэффициенте внутреннего воспроизводства, равном единице, во время работы такого реактора будет теряться значительная доля реактивности. В рассмотренной конструкции аппарата значительное поглощение нейтронов ядрами тория не приводит к немедленному образованию U^{233} до момента перегрузки ТВЭЛов. Таким образом, если в активной зоне в качестве воспроизводящего материала применяется торий, требуется значительно больший рабочий запас реактивности. Торий, помещенный в зону воспроизводства, будет оказывать гораздо меньшее влияние на величину реактивности, так как вклад расположенных в этом месте реактора делящихся изотопов в общую реактивность гораздо меньше.

Накопление изотопов Pu^{240} или U^{234} при повторном топливном цикле, вообще говоря, делает натриевый коэффициент реактивности более положительным. Это происходит потому, что, с одной стороны, указанные изотопы имеют гораздо большее сечение деления, а с другой – более низкий энергетический порог деления по сравнению с U^{238} . В связи с этим можно ожидать, что U^{233} окажется лучше Pu^{239} . При прочих равных условиях более низкое отношение захвата к делению в U^{233} будет приводить к гораздо меньшему равновесному накоплению изотопа U^{234} по сравнению с накоплением Pu^{240} при использовании в качестве горючего Pu^{239} .

Таблица 17.3.12

Характеристики основных делящихся и воспроизводящих изотопов

Изотоп	Воспроизводство	Натриевый коэффициент
Th ^{232*}	Плохое	Приемлемый
U ²³⁸	Хорошее	Неприемлемый
U ²³³	–	Приемлемый
Pu ²³⁹	–	Неприемлемый

* При использовании тория (Th) возникают затруднения в регулировании реактора.

Табл. 17.3.12 характеризует делящиеся и воспроизводящие вещества с точки зрения воспроизводства и натриевого коэффициента реактивности. В этой таблице нет сравнения делящихся изотопов Pu^{239} и U^{233} по воспроизводству по той причине, что может быть равноценно использован любой из них.

Топливный цикл U^{238} – Pu^{239} содержит такую пару изотопов, которая дает наибольший положительный натриевый коэффициент. Однако топливный цикл Th– Pu^{239} гораздо лучше в этом отношении, несмотря на потерю в коэффициенте воспроизводства. Кроме того, U^{233} в паре с U^{238} мо-

жет иметь вполне приемлемый натриевый коэффициент обеспечения воспроизводства, что облегчает разрешение вопросов управления реактором.

В табл. 17.3.13 в зависимости от комбинации делящихся и воспроизводящих материалов сравнены коэффициент воспроизводства и натриевый коэффициент реактивности. Приведенные результаты относятся к сферическому реактору с объемом активной зоны 3000 л, в котором применяется металлическое горючее. Все реакторы имеют одинаковый объемный состав зоны: 15 % горючего, 18 % стали и 67 % натрия. Зона воспроизводства во всех случаях содержит 40 % металлического урана. Из приведенных данных видно, что для всех топливных композиций, за исключением $U^{238}-Pu^{239}$, изменение реактивности при постепенном удалении натрия из зоны отрицательно. При использовании в этих реакторах U^{238} вместо Th^{232} коэффициент воспроизводства становится выше примерно на 0,24.

Таблица 17.3.13

*Критическая масса, коэффициент воспроизводства и натриевый коэффициент в быстрых реакторах (объем активной зоны 3000 л)**

Тип горючего	Критическая масса, кг	Коэффициент воспроизводства	Натриевый коэффициент **
Th- U^{233}	918	1,27	-0,031
$U^{238}-U^{233}$	878	1,50	-0,012
Th- Pu^{239}	1060	1,36	-0,013
$U^{238}-Pu^{239}$	1030	1,60	+0,0025

* Все реакторы содержат 15 об. % горючего, 18 об. % стали, 67 об. % Na.

** Здесь и в дальнейшем натриевый коэффициент означает изменение реактивности при удалении 40 % Na из активной зоны.

Таким образом, имеется уверенность в том, что для больших реакторов, содержащих изотоп Pu^{239} , при использовании в активной зоне тория в качестве воспроизводящего материала проблема натриевого коэффициента реактивности в значительной мере облегчится, но произойдет некоторое снижение коэффициента воспроизводства и появятся дополнительные вопросы, связанные с регулированием реактора. В связи с этим интересно поведение уран-плутониевых и торий-плутониевых сплавов в реакторе. Первые из этих сплавов имеют низкую точку плавления и обнаруживают значительное распухание в условиях облучения при рабочих температурах. У сплавов Th-Pu более высокая точка плавления, и предварительные реакторные испытания позволяют думать, что они обладают хорошей радиационной стойкостью.

Ядерные характеристики Th и U^{238} , приведенные в табл. 17.3.13, при использовании топлива в керамическом виде в первом приближении должны быть одинаковы.

Особый интерес представляет реактор на горючем $U^{238}-U^{233}$. Коэффициент воспроизводства в этом случае гораздо больше, чем для системы $Th-U^{233}$, проблема регулирования, вызванная накоплением Pa^{233} несколько облегчена, а натриевый коэффициент носит ярко выраженный отрицательный характер⁸. Поэтому есть все основания надеяться не только на возможность повышения концентрации топлива в активной зоне (и связанное с этим увеличение воспроизводства), но и на увеличение объема зоны, что не должно привести к возникновению положительного натриевого коэффициента реактивности. Коэффициент внутреннего воспроизводства может быть близок к единице. Поэтому при прочих равных условиях относительно слабое изменение величины α для U^{233} дает небольшое уменьшение коэффициента воспроизводства в случае окисного или карбидного топлива $U^{238}-U^{233}$ и минимальное изменение натриевого коэффициента.

При радиационных испытаниях ТВЭЛы на основе металлического урана, окиси, карбида или сульфида показывают хорошую стойкость. Следовательно, есть основания полагать, что еще долгое время горючее $U^{238}-U^{233}$ в одной из перечисленных форм может служить основным типом горючего для реакторов на быстрых нейтронах. Такой тип реактора при выборе оптимального уровня выгорания плутония должен удовлетворить мировые потребности в расщепляющихся материалах. Зона воспроизводства реактора любого типа для получения делящихся изотопов должна изготавливаться из тория, U^{238} или из комбинации этих материалов.

Рабочие параметры реакторов на смешанном горючем. Были проведены оценки рабочих характеристик больших реакторов на быстрых нейтронах. В основу расчета положено приближение сферической геометрии. Безотносительно к другим предположениям зона воспроизводства всегда содержала по объему 40 % металлического U^{238} , 15 % нержавеющей стали и 45 % натрия. Толщина зоны составляла 45 см. С наружной стороны к зоне воспроизводства примыкал отражатель толщиной 30 см, состоящий из 80 % стали и 20 % натрия. В расчете использовалась 16-групповая система констант, подготовленная на основании измерений величины сечений взаимодействия для Pu^{239} .

Коэффициент воспроизводства определялся как отношение полного числа ядер, возникших в активной зоне и в зоне воспроизводства и способных делиться под действием тепловых нейтронов, к числу атомов, разделившихся в активной зоне реактора. Коэффициентом внутреннего воспроизводства называется такое же отношение, но только для делящихся ядер, образовавшихся исключительно внутри активной зоны.

⁸ Реактор на горючем $U^{238}-U^{233}$, благодаря заметному вкладу от деления ядер U^{238} , должен иметь большую долю запаздывающих нейтронов в сравнении с реактором на горючем $Th-U^{233}$.

Критическая масса и коэффициент воспроизводства определялись для реактора, который не отравлен продуктами деления. Накопление продуктов деления и более тяжелых изотопов не учитывалось.

Под натриевым коэффициентом реактивности понималось изменение реактивности при равномерной по зоне утечке натриевого теплоносителя в количестве 40 % от первоначально имевшегося в активной зоне. Во всех расчетах в качестве конструкционного материала активной зоны была взята сталь.

Таблица 17.3.14

Основные характеристики больших быстрых реакторов на металлическом топливе $U^{238}-Pu^{239}$

Объём активной зоны, л	Содержание горючего, % об.	Атомное отношение U^{239}/Pu^{239}	Содержание Na, % об.	Критическая масса, кг	Натриевый коэффициент	Коэффициент воспроизводства	
						внутренний	полный
3000	8,06	4,0	74	916	-0,012	0,43	1,43
3000	15,0	7,3	67	1030	+0,0025	0,75	1,60
4000	15,0	7,9	67	1290	+0,0069	0,83	1,59

Примечание. Там, где не указано особо, все реакторы имеют сферическую геометрию. Активная зона содержит 15 % об. горючего, 15 % об. конструкционных материалов и 70 % об. Na. Зона воспроизводства имеет толщину 45 см, содержит 40 % об. U^{238} , 15 % об. стали и 45 % об. Na и имеет отражатель. Состав отражателя: 60 % об. стали и 20 % об. Na.

В табл. 17.3.14 приведены основные данные, иллюстрирующие зависимость натриевого коэффициента реактивности и коэффициента воспроизводства от размеров активной зоны реактора на металлическом топливе $U^{238}-Pu^{239}$. Для реактора с объемом активной зоны 3000 л натриевый коэффициент положителен при объемном содержании топливного сплава 15 %, однако он становится отрицательным, если концентрация горючего упадет до 8 % при одновременном увеличении содержания натрия. Если объем активной зоны увеличить до 4000 л, то при концентрации топливного сплава 15 % об. натриевый коэффициент реактивности станет более положительным. Коэффициент воспроизводства при фиксированной композиции зоны нечувствителен к размеру активной зоны. Он заметно падает, когда атомное отношение U^{238} к Pu^{239} снижается с 7,3 до 4,0, что в основном вызвано уменьшением вклада делений на быстрых нейтронах.

В табл. 17.3.15 атомное отношение металлических тория и Pu^{239} составляет 4:1 (или 6:1), в то время как размеры активной зоны изменяются. Объемная доля горючего, естественно, убывает с ростом размера активной

зоны. При объеме зоны в 1000 л натриевый коэффициент еще отрицателен, а топливная смесь занимает 14 % объема. Коэффициент воспроизводства снижается с 1,42 при 2000 л до 1,33 при 4000 л, что главным образом вызвано увеличением α для Pu^{239} . При соотношении Th и Pu^{239} 6:1 и объеме зоны 3000 л топливо занимает 25 % объема; коэффициент воспроизводства равен 1,42, а натриевый коэффициент еще отрицателен.

Таблица 17.3.15

Основные характеристики больших быстрых реакторов на металлическом горючем Th–Pu²³⁹

Объём активной зоны, л	Содержание горючего, % об.	Атомное отношение Th/Pu ²³⁹	Содержание Na, % об.	Критическая масса, кг	Натриевый коэффициент	Коэффициент воспроизводства	
						внутренний	полный
2000	17,9	4,0	64,1	830	–0,013	0,46	1,42
2500	16,4	4,0	65,6	948	–0,013	0,47	1,39
3000	15,3	4,0	66,7	1060	–0,012	0,47	1,36
4000	13,8	4,0	68,3	1270	–0,011	0,49	1,33
1500	32,3	6,0	49,6	802	–0,0044	0,65	1,50
3000	25,1	6,0	56,9	1250	–0,0024	0,68	1,43

Следовательно, при указанных размерах для получения отрицательного натриевого коэффициента наиболее желательно металлическое горючее в виде сплава тория с плутонием. Несколько худшие показатели можно ожидать для торий-плутониевой смеси на основе окислов или карбидов.

Таблица 17.3.16

Основные характеристики больших быстрых реакторов на металлическом U²³⁸–U²³³

Объём активной зоны, л	Содержание горючего, % об.	Атомное отношение U ²³⁸ /U ²³³	Содержание Na, % об.	Критическая масса, кг	Натриевый коэффициент	Коэффициент воспроизводства	
						внутренний	полный
1500	15	6,85	67	545	–0,020	0,53	1,51
3000	15	8,8	67	875	–0,012	0,70	1,50
3000	25	12,9	57	1021	–0,0012	1,00	1,64
4000	15	9,6	67	1080	–0,0085	0,77	1,50

В табл. 17.3.16 представлены аналогичные параметры реакторов на металлическом горючем U²³⁸–U²³³. При объеме активной зоны 4000 л

и содержании горючего 15 % об. натриевый коэффициент при утечке натрия только из активной зоны отрицателен, а коэффициент воспроизводства равен 1,50. Если объем зоны уменьшить до 3000 л, то содержание горючего поднимется до 25 % об. В этом случае натриевый коэффициент останется по-прежнему отрицательным, коэффициент воспроизводства станет равным 1,64, а коэффициент внутреннего воспроизводства равным единице.

Результаты дальнейших расчетов реакторов с горючим на основе $U^{238}-U^{233}$ в виде металла, окиси или карбида представлены в табл. 17.3.17. Были исследованы реакторы с объемом активной зоны 3000 и 6000 л, где во многих из рассмотренных вариантах зона воспроизводства толщиной 45 см имела более низкую, чем обычно, концентрацию урана (и, следовательно, повышенное содержание натрия).

Таблица 17.3.17

*Рабочие параметры реакторов с топливной смесью $U^{238}-U^{233}$
в виде металла, окиси или карбида**

Тип реактора			Атомное отношение U^{238}/U^{233}	Критическая масса, кг	Натриевый коэффициент		Коэффициент воспроизводства		
Объем активной зоны, л	Вид горючего	Содержание, %			Активная зона	Активная зона + зона воспроизводства	внутренний	полный	
		топлива	Na						
<i>Зона воспроизводства содержит 40 % U^{238} и 45 % Na</i>									
3000	Металл	20	67	11,1	940	-0,0068	-0,0091	0,87	1,61
3000	«	27	57	13,7	1050	-0,0001	-0,0016	1,05	1,67
6000	«	20	67	13,1	1620	+0,0020	+0,0007	1,04	1,61
6000	«	27	57	15,6	1850	+0,0061	+0,0053	1,22	1,67
3000	Окись	20	67	6,1	840	-0,0150	-0,0180	—	—
3000	«	27	57	8,0	900	-0,0048	-0,0068	0,69	1,41
6000	«	20	67	7,7	1390	-0,0034	-0,0051	0,69	1,35
6000	«	27	57	9,6	1540	+0,0040	+0,0029	0,85	1,39
3000	Карбид	20	67	8,0	870	-0 0096	-0,0121	0,68	1,45
3000	«	27	57	10,1	950	-0,0015	-0,0033	0,85	1,50
6000	«	15	70	7,7	1350	-0,0059	-0,0078	0,68	1,35
6000	«	20	67	10,0	1470	+0,0006	-0,0008	0,87	1,46
6000	«	27	57	11,7	1660	+0,0058	+0,0048	1,01	1,48

Зона воспроизводства содержит 20 % U^{238} и 65 % Na									
3000	Металл	20	67	11,1	940	-0,0070	-0,0118	0,87	1,48
3000	«	27	57	13,7	1050	-0,0003	-0,0034	1,05	1,56
6000	«	20	67	13,1	1620	+0,0021	-0,0006	1,04	1,52
6000	«	27	57	15,6	1850	+0,0062	+0,0045	1,22	1,60
3000	Окись	20	67						
3000	«	27	57						
6000	«	20	67						
6000	«	27	57						
3000	Карбид	20	67	8,0	870	-0,0098	-0,0153	0,69	1,33
3000	«	27	57	10,1	950	-0,0017	-0,0053	0,85	1,39
6000	«	15	70	7,7	1350	-0,0057	-0,0097	0,69	1,24
6000	«	20	67	10,0	1470	+0,0008	-0,0023	0,84	1,34
6000	«	27	57	11,7	1660	+0,0058	+0,0039	1,01	1,41

* В качестве конструкционного материала в активной зоне и зоне воспроизводства применяется сталь. Плотности топлива в виде металла, окиси и карбида составляют 19, 10 и 13 г/см³ соответственно.

Активная зона объемом 3000 л с концентрацией горючего (в виде металла, окиси или карбида) до 27 % об. во всех трех случаях имеет отрицательный эффект реактивности. Плотность материалов в зоне воспроизводства почти не влияет на критическую массу и при таких больших размерах оказывает очень слабое влияние на изменение реактивности при утечке теплоносителя из одной только активной зоны; коэффициент воспроизводства падает, поскольку увеличивается утечка нейтронов из зоны воспроизводства.

Реактор с объемом активной зоны 6000 л и 20%-м содержанием топлива на основе окиси, благодаря пониженной плотности горючего, также имеет отрицательный натриевый эффект реактивности.

Натриевый коэффициент для карбидного топлива отрицателен в случае активной зоны объемом 6000 л и с содержанием горючего 15 % об., а для металлического топлива, при тех же размерах зоны и композиции в сферическом реакторе, натриевый коэффициент должен быть близок к нулю.

Очевидно, с помощью методов, описанных ранее, реакторы на топливе U^{238} - U^{233} в любой из трех возможных форм могут быть сконструированы таким образом, чтобы при размерах активной зоны, значительно превышающих 6000 л, давать отрицательный натриевый коэффициент реактивности.

Установлено, что если зона воспроизводства содержит 45 % об. натрия и окружена отражателем, натриевый коэффициент реактивности

при утечке натрия из активной зоны и из зоны воспроизводства более отрицателен, чем в том случае, когда натрий теряется из одной лишь активной зоны. Для зоны воспроизводства с отражателем, имеющей 65 % об. натрия, разница между этими случаями больше; однако на долю натрия из зоны воспроизводства приходится менее 0,01 $\Delta k/k$ (если возможна грубая линейная экстраполяция на полную потерю натрия).

Если удалить отражатель, а зону воспроизводства сделать тоньше, то утечка натрия из этой зоны приведет к большей потере реактивности (табл. 17.3.18). Приведенные в таблице данные соответствуют реактору с объемом активной зоны 3000 л, содержание натрия в активной зоне составляет 70 % об., а в зоне воспроизводства – 45 % об. Коэффициент реактивности при удалении натрия только из активной зоны становится более отрицательным при переходе от зоны воспроизводства толщиной 45 см с отражателем к зоне воспроизводства толщиной 30 см без отражателя. Если происходит утечка натрия и из зоны воспроизводства, натриевый коэффициент становится более отрицательным, а при аналогичном изменении зоны воспроизводства и отражателя он изменяется на большую абсолютную величину. Коэффициент воспроизводства снижается с 1,50 до 1,23, что вызвано главным образом утечкой нейтронов из зоны воспроизводства.

Рассматриваемая зона воспроизводства при удалении натрия содержит еще значительное количество рассеивающего материала в виде U^{238} и стали, поэтому увеличение натриевого коэффициента является небольшим. Расчетным путем установлено, что при наличии тонких зон воспроизводства с содержанием натрия 60...70 % об. при плохом отражении нейтронов удаление натрия из зоны воспроизводства приводит к гораздо большему изменению реактивности.

Таблица 17.3.18

Зависимость натриевого коэффициента от толщины зоны воспроизводства (объем активной зоны 3000 л; горючее $U^{238}-U^{235}$ в виде металла)

Тип зон воспроизводства	Натриевый коэффициент		Коэффициент воспроизводства	
	Активная зона	Активная зона + зона воспроизводства	внутренний	полный
45 см, с отражателем	-0,0124	-0,0151	0,70	1,50
45 см, без отражателя	-0,0126	-0,0156	–	–
38 см, без отражателя	-0,0128	-0,0163	–	–
30 см, без отражателя	-0,0137	-0,0180	0,69	1,23

Если потеря реактивности, обусловленная утечкой натрия из периферийных областей активной зоны, станет значительной, и ее необходимо будет учитывать в связи с проблемой безопасности больших энергетических реакторов на быстрых нейтронах, может потребоваться разработка конструкций зоны воспроизводства на основе других конструктивных решений. Возможен вариант, предполагающий вылет нейтронов из активной зоны через область, заполненную натрием первичного контура, и их захват делящимся изотопом в более отдаленных точках. В случае, когда главным фактором, влияющим на безопасность работы больших энергетических быстрых реакторов, станет изменение реактивности в связи с потерей натрия только из центральной части активной зоны, может возникнуть необходимость и более жестких ограничений на конструкции зоны воспроизводства. Например, для реактора на металлическом топливе $U^{238}-Pu^{239}$ потеря всего натрия только из одной половины внутренней части активной зоны вызывает увеличение реактивности на $0,017 \Delta k/k$. Это возрастание значительно больше, чем при утечке натрия равномерно из всей активной зоны. Действительно, при утечке 40 % об. натрия из внутренней части активной зоны отмечается повышенный рост реактивности, равный $0,019 \Delta k/k$.

Интересно отметить, что утечка всего натрия из внутренней области активной зоны в реакторе с топливом $U^{238}-U^{233}$ вызывает уменьшение реактивности, равное $0,008 \Delta k/k$. Для меньших центральных областей натриевый коэффициент даже в этом реакторе может стать положительным. Правда, это не вызовет особых трудностей.

Избежать нежелательных эффектов можно путем создания реакторов на основе двух типов топливных композиций. В центральной части активной зоны можно использовать топливные композиции, которые препятствуют возникновению положительного натриевого эффекта при утечке теплоносителя из этой области.

Очень большие реакторы. В табл. 17.3.19 представлены данные, характеризующие натриевый коэффициент реактивности и коэффициент воспроизводства в реакторе с объемом активной зоны 8000 л, работающем на различных комбинациях делящихся и воспроизводящих материалов. В сферических реакторах, содержащих 15 % об. горючего и 70 % об. натрия, натриевый коэффициент для всех реакторов, за исключением реактора на топливе $Th-U^{233}$, по-видимому, должен быть положительным. Поэтому для этих реакторов можно уменьшить высоту зоны. С точки зрения изменения реактивности, при потере теплоносителя комбинация $Th-U^{233}$ должна быть особенно хороша в очень больших реакторах, предназначенных для опреснения воды. В табл. 17.3.20 представлены натриевый коэффициент реактивности и другие ядерные ха-

раактеристики сферических реакторов с объемом активной зоны 25 000 и 50 000 л, активная зона которых содержит 15 % об. топливной композиции Th-U²³³ и 70 % об. натрия или свинца. Оказывается, что натриевый коэффициент реактивности для реакторов с объемом активной зоны 25 000 л по-прежнему остается отрицательным.

Таблица 17.3.19

Рабочие характеристики сферических реакторов с объемом активной зоны 8000 л (металлическое горючее)

Тип горючего	Зона воспроизводства содержит 40 % U ²³⁸ и 45 % Na				
	Критическая масса, кг	Натриевый коэффициент		Коэффициент воспроизводства	
		Активная зона	Активная зона + зона воспроизводства	внутренний	полный
Th-U ²³³	1880	-0,0190	-0,0212	0,61	1,21
U ²³⁸ -U ²³³	1860	+0,0017	+0,0005	0,93	1,48
Th-Pu ²³⁹	2230	+0,0004	-0,0014	0,65	1,28
U ²³⁸ -Pu ²³⁹	2250	+0,0177	+0,0167	0,98	1,55
Th-U ²³³	1880	-0,0184	-0,0230	0,61	1,11
U ²³⁸ -U ²³³	1860	+0,0022	-0,0004	—	—
Th-Pu ²³⁹	2230	+0,0018	-0,0020	—	—
U ²³⁸ -Pu ²³⁹	2250	+0,0177	+0,0156	0,98	1,46

Таблица 17.3.20

Рабочие характеристики очень больших реакторов (топливо Th-U²³³)

Объем активной зоны, л	Теплоноситель	Критическая масса, кг	Коэффициент воспроизводства		Натриевый коэффициент
			внутренний	полный	
25000	Na	4600	0,82	1,03	-0,00005
50000	Na	8440	0,91	1,06	+0,012
25000	Pb	4070	0,89	1,08	-0,010
50000	Pb	7600	0,97	1,10	+0,0005

Можно ожидать, что при использовании расплавленного свинца в качестве теплоносителя, изменение реактивности, в случае его потери, будет более отрицательным, чем для натрия. В активной зоне объемом 25 000 л, когда натриевый коэффициент близок к нулю, свинец (или свинец-висмут) приведет к существенно отрицательному эффекту. Од-

нако результаты расчета показывают, что для сферической активной зоны объемом 50 000 л, в которой топливом служит Th-U²³³, даже свинец дает небольшой положительный коэффициент, который должен быть еще более положительным, если вместо тория используется U²³⁸.

Таким образом, для очень больших натриевых реакторов система Th-U²³³ явно облегчает возможность ликвидации положительного коэффициента реактивности, возникающего в момент сброса теплоносителя. Конечно, существует также возможность использования либо тяжелого теплоносителя, например свинца, либо газа⁹, которые очень слабо влияют на реактивность.

Кроме того, существует возможность создания такой конструкции активной зоны, которая исключает утечку натрия, или, в крайнем случае, эффекты реактивности будут незначительными, даже если такая потеря произойдет. Может быть также создана конструкция реактора безопасная в эксплуатации при наличии положительного натриевого коэффициента.

Повторное использование горючего. Равновесный изотопный состав горючего во время повторного топливного цикла зависит не только от конструкции аппарата, но и от типа воспроизводящего материала, загруженного в активную зону. Исходный состав горючего определяет время, необходимое для достижения равновесного изотопного состава, а не конечный изотопный состав.

Равновесный изотопный состав, характерный для повторного топливного цикла, рассчитывался для большинства реакторов, работающих на плутоний-урановом топливе. Оценки были сделаны в предположении, что воспроизводящийся плутоний имеет тот же состав, что и первоначально загруженный в активную зону. Полученные результаты приведены в табл. 17.3.21. При загрузке типа Pu-A (чистый Pu²³⁹) накапливается небольшое количество Pu²⁴², а Pu²⁴¹ во всех рассмотренных случаях в равновесном состоянии накапливается только около 5%. Если же в загруженном материале присутствует большая доля более тяжелых изотопов, конечный изотопический состав сильно зависит от коэффициента внутреннего производства. Большое внутреннее воспроизводство увеличивает накопление изотопа Pu²³⁹ и снижает накопление более тяжелых изотопов. Поэтому в реакторе на металлическом горючем и с более высоким коэффициентом воспроизводства в равновесном состоянии содержится меньше Pu²⁴¹ и Pu²⁴², чем в реакторе на основе окисного горючего при загрузке по типу Pu-C. Во всех рассмотренных примерах доля плутония в горючем в состоянии равновесия была взята большей, чем в начальный момент.

⁹ Для реакторов, охлаждаемых газом или паром, прекращение теплосъема, в случае утечки газа или остановки циркуляционного насоса, представляет главную опасность. Возможно применить затопление зоны водой, содержащей, например, нейтральный поглотитель, но эта задача пока не решена.

Таблица 17.3.21

*Равновесный изотопный состав горючего
при повторном плутониевом цикле*

Тип реактора		Тип загрузкиемого Pu	Pu ²³⁹	Pu ²⁴⁰	Pu ²⁴¹	Pu ²⁴²	Pu/U ²³⁸ (атомное)	
Объём активной зоны, л	Вид горючего						равновесное	начальное
800	Металл	А	0,653	0,293	0,041	0,013	0,172	0,128
800	»	С	0,544	0,281	0,066	0,109	0,189	0,163
800	Окись	А	0,609	0,324	0,049	0,018	0,510	0,336
800	»	С	0,288	0,266	0,121	0,325	0,795	0,439
1500	»	А	0,582	0,343	0,054	0,021	0,391	0,253
1500	»	В	0,481	0,372	0,088	0,059	0,425	0,269
1500	»	С	0,329	0,287	0,109	0,275	0,542	0,323

Проведен детальный анализ установления равновесной концентрации изотопов плутония для реактора на металлическом топливе (тип Pu–А) с объемом активной зоны 800 л (табл. 17.3.22), а для реактора на окисном топливе (типа Pu–А) с объемом активной зоны 1500 л (табл. 17.3.23) и для реактора на окисном топливе (тип Pu–С) с объемом активной зоны 1500 л (табл. 17.3.24). В этих расчетах принято, что реакторы в среднем в течение цикла критичны, выгорание тяжелых атомов для металла составляет 5 %, а для окиси – 10 %. Содержание Pu²³⁹ изменялось за 8...9 циклов на 80 % от начальной концентрации. Для каждого цикла даны начальный, конечный и средний композиционные составы.

Таблица 17.3.22

*Процесс установления равновесной концентрации
(объем активной зоны 800 л, начальное
плутониевое горючее типа А в виде металла)*

Номер цикла	U ²³⁸	Pu ²³⁹	Pu ²⁴⁰	Pu ²⁴¹	Pu ²⁴²
1	0,881	0,119	0	0	0
	0,837	0,105	0,007	0,000	0,000
	0,859	0,112	0,004	0,000	0,000
2	0,876	0,117	0,007	0,000	0,000
	0,832	0,104	0,013	0,000	0,000
	0,854	0,110	0,010	0,000	0,000
4	0,868	0,112	0,018	0,001	0,000
	0,825	0,100	0,022	0,002	0,000
	0,846	0,106	0,020	0,001	0,000

Окончание табл. 17.3.22

Номер цикла	U ²³⁸	Pu ²³⁹	Pu ²⁴⁰	Pu ²⁴¹	Pu ²⁴²
7	0,861	0,107	0,030	0,003	0,000
	0,818	0,097	0,031	0,004	0,000
	0,839	0,101	0,030	0,003	0,000
12	0,855	0,102	0,037	0,005	0,001
	0,812	0,094	0,038	0,005	0,001
	0,832	0,098	0,038	0,005	0,001
20	0,851	0,100	0,042	0,006	0,001
	0,809	0,092	0,042	0,006	0,002
	0,830	0,096	0,042	0,006	0,001
30	0,851	0,099	0,042	0,006	0,002
	0,808	0,091	0,043	0,006	0,002
	0,829	0,095	0,043	0,006	0,002

Примечание. Для каждого цикла даны начальное, конечное и среднее значения равновесной концентрации.

Таблица 17.3.23

Процесс установления равновесной концентрации (объем активной зоны 1500 л, начальное плутониевое горючее типа А в виде окиси)*

Номер цикла	U ²³⁸	Pu ²³⁹	Pu ²⁴⁰	Pu ²⁴¹	Pu ²⁴²
1	0,767	0,233	0	0	0
	0,712	0,167	0,021	0,001	0,000
	0,739	0,197	0,012	0,0004	0,000
2	0,752	0,227	0,021	0,001	0,000
	0,697	0,163	0,037	0,003	0,000
	0,724	0,192	0,030	0,002	0,000
4	0,731	0,214	0,050	0,005	0,000
	0,678	0,154	0,060	0,007	0,001
	0,701	0,182	0,056	0,006	0,001
7	0,713	0,201	0,074	0,010	0,002
	0,662	0,146	0,079	0,011	0,002
	0,687	0,171	0,077	0,010	0,002
12	0,702	0,192	0,089	0,014	0,004
	0,651	0,141	0,090	0,014	0,004
	0,676	0,164	0,090	0,014	0,004
20	0,696	0,189	0,094	0,015	0,005
	0,647	0,139	0,094	0,015	0,005
	0,672	0,162	0,095	0,015	0,005
30	0,696	0,188	0,095	0,015	0,006
	0,616	0,138	0,095	0,015	0,006
	0,671	0,161	0,095	0,015	0,006

* См. примечание к табл. 17.3.22.

Таблица 17.3.24

*Процесс установления равновесной концентрации (объем активной зоны 1500 л, начальное плутониевое горючее типа С в виде окиси)**

Номер цикла	U ²³⁸	Pu ²³⁹	Pu ²⁴⁰	Pu ²⁴¹	Pu ²⁴²
1	0,716	0,114	0,028	0,071	0,071
	0,666	0,098	0,034	0,039	0,063
	0,691	0,105	0,032	0,053	0,067
2	0,691	0,128	0,042	0,058	0,081
	0,644	0,105	0,046	0,033	0,071
	0,668	0,116	0,044	0,014	0,076
4	0,661	0,135	0,063	0,047	0,093
	0,617	0,109	0,064	0,030	0,081
	0,638	0,121	0,064	0,038	0,087
7	0,638	0,132	0,083	0,045	0,102
	0,596	0,106	0,080	0,030	0,088
	0,616	0,118	0,082	0,037	0,094
12	0,624	0,127	0,096	0,046	0,106
	0,583	0,102	0,092	0,031	0,091
	0,603	0,114	0,094	0,038	0,099
20	0,619	0,125	0,102	0,047	0,107
	0,578	0,101	0,096	0,032	0,093
	0,598	0,112	0,099	0,039	0,110
30	0,618	0,124	0,103	0,047	0,108
	0,578	0,101	0,097	0,032	0,093
	0,598	0,112	0,100	0,039	0,100

* См. примечание к табл. 17.3.22.

Во всех расчетах предполагалось, что потери плутония между циклами отсутствуют. Однако эти потери за один цикл равны 2 % и слабо влияют на равновесные концентрации изотопов (табл. 17.3.25).

Таблица 17.3.25

Зависимость равновесного изотопного состава от потери плутония при переработке

Тип за-гружае-мого Pu	Потери на цикл, %	U ²³⁸	Pu ²³⁹	Pu ²⁴⁰	Pu ²⁴¹	Pu ²⁴²
А	0	0,708	0,170	0,100	0,016	0,006
	2	0,714	0,174	0,093	0,014	0,005
С	0	0,631	0,118	0,105	0,041	0,105
	2	0,638	0,119	0,099	0,041	0,103

Примечание. В табл. 17.3.25, 17.3.26, 17.3.27 данные приведены для реакторов с объемом активной зоны 1500 л, с топливом на основе окиси плутония.

В табл. 17.3.26 сравниваются критические массы начальные и после достижения равновесной концентрации различных изотопов, а также коэффициенты воспроизводства для соответствующих моментов времени. Активная зона рассмотренного реактора принималась разной по составу 1500 л, а начальная загрузка топливом бралась по типу Pu–А, Pu–В или Pu–С. Во всех трех случаях при достижении равновесного состояния критическая масса реактора снижалась, а коэффициент воспроизводства возрастал. Интересно отметить, что коэффициент воспроизводства для равновесного состава при начальной загрузке топливом по типу Pu–С на 0,49 больше, чем для реактора, работающего на чистом Pu²³⁹, тогда как критическая масса в первом случае составляет всего 0,75. Такое большое различие вызвано значительным вкладом от делящихся под действием быстрых нейтронов ядер Pu²⁴⁰ и Pu²⁴².

Таблица 17.3.26

*Начальные и равновесные критические массы
и коэффициент воспроизводства**

Тип загружаемого Pu	Критическая масса смеси Pu ²³⁹ + Pu ²⁴¹ , кг		Коэффициент воспроизводства**	
	начальная	равновесная	начальное состояние	равновесное состояние
А	562	496	1,47	1,67
В	514	468	1,57	1,80
С	442	421	1,72	1,96

* См. примечание к табл. 17.3.25.

** Отношение (Pu²³⁹ + Pu²⁴¹) израсходованного к (Pu²³⁹ + Pu²⁴¹) образовавшемуся.

Однако не все показатели реактора улучшаются при изменении плутониевого состава во время повторения топливного цикла. Натриевый коэффициент для активной зоны объемом 1500 л, работающей на окисном топливе с первоначальной загрузкой типа Pu–А или Pu–С, изменяется при переходе к равновесному изотопному составу и становится заметно менее отрицательным. О значениях натриевого коэффициента можно судить по величинам изменения критической загрузки (табл. 17.3.27), которые вызывают такой же эффект реактивности, что и удаление 40 % об. натрия из активной зоны. Интересно отметить, что реактор с топливом типа Pu–С в начале обладает более отрицательным коэффициентом, чем с топливом типа Pu–А. Этот коэффициент испытывает значительное изменение и становится менее отрицательным при достижении равновесного изотопного состава. Следует отметить также, что изменение за время начального топливного цикла достаточно велико, чтобы повлиять на кинетику экспериментов.

Таблица 17.3.27

Изменение натриевого коэффициента при повторных топливных циклах*

Тип загружаемого Pu	Номер цикла	$\Delta M/M$	Тип загружаемого Pu	Номер цикла	$\Delta M/M$
А	1	-0,0115	С	1	-0,0130
	3	-0,0091		3	-0,0074
	6	-0,0077		6	-0,0041
	9	-0,0089		8	-0,0032
	12	-0,0064		10	-0,0028
	Равновесное состояние	-0,0061		Равновесное состояние	-0,0021

* См. примечание к табл. 17.3.25.

Кроме того, в течение топливного цикла может довольно сильно измениться доля запаздывающих нейтронов. Расчеты показывают, что эта величина, в зависимости от начального состава топлива, может колебаться от 2 до 10 % при выгорании тяжелых атомов, равных 10 %. Доля запаздывающих нейтронов становится больше для более тяжелых изотопов плутония (табл. 17.3.28). Однако для ядер U^{238} она превосходит долю запаздывающих нейтронов для Pu^{242} , в связи с чем ее изменение с выгоранием будет в каждом конкретном случае определяться конструкцией реактора и может как возрасть, так и снижаться.

Таблица 17.3.28

Доля запаздывающих нейтронов $\bar{\beta}$
при делении под действием быстрых нейтронов

Делящийся изотоп	$\bar{\beta}$	Делящийся изотоп	$\bar{\beta}$
Pu^{239}	0,0020*	U^{235}	0,0065*
Pu^{240}	0,0027*	U^{238}	0,0147*
Pu^{241}	0,0053**	U^{233}	0,0027*
Pu^{242}	0,0080***	U^{232}	0,0205*

* Keepin G.R. Neutron Data for Reactor Kinetics. Nucleonics, 20, No. 8. (1962).

** Reactor Physics Constants, ANL-6300, to be published.

*** Оценочный расчет.

Тем не менее, можно ожидать, что в любом реакторе на топливе $Pu-U^{238}$ эффективная доля запаздывающих нейтронов превышает ту же величину для реактора на чистом Pu^{239} более чем на 0,0020. Для реакторов с объемом активной зоны 1500 л и различными типами горючего эта величина колеблется в пределах от 0,0032 до 0,0059 (табл. 17.3.29).

Таблица 17.3.29

*Доля запаздывающих нейтронов $\bar{\beta}$
для различных типов плутониевого горючего*

Загружаемое горючее	Вид горючего	$\bar{\beta}$
Pu-A	Металл	0,00454
	Окись	0,00326
	Карбид	0,00372
Pu-B	Металл	0,00501
	Окись	0,00384
	Карбид	0,00427
Pu-C	Металл	0,00596
	Окись	0,00491
	Карбид	0,00530

Установлено, что изменение доли запаздывающих нейтронов, при переходе от одного реактора к другому, должно быть больше, чем изменение при переходе от начального изотопного состава к равновесному для одного и того же реактора.

Выше отмечалось, что реактор на топливной смеси U^{233} -Th не будет иметь ощутимой выгоды от увеличения доли запаздывающих нейтронов за счет деления ядер воспроизводящего материала. Деление ядер тория происходит сравнительно редко, поэтому доля запаздывающих нейтронов в таком реакторе будет очень близка к 0,0021, что соответствует чистому U^{233} . Накопление U^{235} при повторном топливном цикле будет увеличивать эту величину, но одновременно будет снижаться коэффициент воспроизводства и ухудшаться натриевый коэффициент.

В самом деле, вследствие более низкого отношения захвата к делению в U^{233} накопление U^{234} , U^{235} и более тяжелых изотопов урана в реакторе, который работает на Th- U^{233} , при последующих топливных циклах будет гораздо меньше, чем в системе U^{238} -Pu²³⁹.

17.4. Исследовательские реакторы

Уран естественного изотопного состава не позволяет получить высокое значение коэффициента размножения нейтронов k_{∞} . В частности, при использовании в качестве замедлителя обычной воды вообще нельзя достичь критичности. В уран-графитовых реакторах $k_{\infty} \leq 1,07$, а в тяжеловодных реакторах $k_{\infty} \leq 1,27$. Высокообогащенный (~90 %) уран позволяет иметь $k_{\infty} \approx 2$ в реакторе с любым из обычных замедлителей.

Сравним топливные составляющие стоимости реакторов на природном и высокообогащенном уране при одинаковой производительности по нейтронам. Будем считать, что в реакторе с природным ураном (например,

с графитовым замедлителем) $k_{\infty} = 1,05$ [и, следовательно, $(k_{\infty} - 1)/k_{\infty} \approx 0,05$], а в реакторе с высокообогащенным ураном $k_{\infty} \approx 2[(k_{\infty} - 1)/k_{\infty} = 0,5]$. Таким образом, для одинаковой производительности по нейтронам мощность уран-графитового реактора должна быть приблизительно в 10 раз больше, соответственно в единицу времени должно сгорать в 10 раз больше топлива.

Как видно из табл. 17.4.1, стоимость единицы массы ^{235}U , содержащегося в металле, обогащенном до 90 %, в 3 раза выше, чем в металле природного изотопного состава. Поэтому при одинаковой производительности по нейтронам затраты на топливо для уран-графитового реактора должны быть приблизительно в 3 раза выше, чем для реактора с ураном 90%-го обогащения (без учета стоимости отработанных ТВЭЛов; учет ее не может заметным образом изменить соотношения топливных затрат). Кроме того, для отвода большей мощности в уран-графитовом реакторе потребуется более мощное технологическое оборудование. Далее, большие размеры уран-графитового реактора (диаметр активной зоны несколько метров) требуют огромного здания. Следовательно, реакторы с высокообогащенным топливом требуют не только меньших затрат на топливо, но и меньших капитальных затрат.

Таблица 17.4.1

Стоимость ^{235}U в зависимости от обогащения

Обогащение, %	0,7	1,0	1,5	2,0	4,0	10,0	20,0	50,0	90,0
Стоимость, $\frac{\text{долл}}{\text{г } ^{235}\text{U}}$	5,7	7,6	9,7	11,0	13,4	15,3	16,4	16,8	17,1

В связи с большой загрузкой ($\sim 1 \text{ т } ^{235}\text{U}$) плотность потока тепловых нейтронов в уран-графитовом реакторе значительно ниже (при одинаковой производительности по нейтронам). Если, например, загрузка реактора с ураном 90%-го обогащения составляет 10 кг (а минимальная критическая загрузка может быть всего 0,3 кг), то различие плотности потока тепловых нейтронов, как это следует из ниже приведенной формулы, равно 10.

$$\varphi_a^{i \text{ аен}} \approx \frac{\chi k_V v q_V / E_f}{\Sigma_R}$$

Отметим еще большую разницу в стоимости первой загрузки: 1 т ^{235}U , содержащегося в естественном уране ($5,7 \cdot 10^6$ долл.), дороже 10 кг высокообогащенного урана ($171 \cdot 10^3$ долл.) более чем в 30 раз. Таким образом, в исследовательских реакторах целесообразно использовать высокообогащенное топливо.

При изменении обогащения урана от 20 до 90 % размножающие свойства активной зоны практически зависят только от концентрации

^{235}U и очень слабо от концентрации ^{238}U . В этой области слабо меняется и стоимость единицы массы ^{235}U . Казалось бы, что разница в выборе обогащения урана (в пределах 20...90 %) не должна заметно влиять на параметры исследовательских реакторов. Однако в исследовательских реакторах по технологическим соображениям, как правило, используются дисперсионные ТВЭЛы, в которых допустимая глубина выгорания топлива зависит от вида разбавителя и его концентрации в сердечнике. Чем выше концентрация разбавителя, тем больше допустимая глубина выгорания топлива. При заданном соотношении ядер ^{235}U и разбавителя, т. е. при заданной допустимой глубине выгорания, уменьшение обогащения урана (т. е. уменьшение концентрации ^{235}U) приводит к ухудшению физических характеристик.

При обогащении урана выше 90 % стоимость единицы массы ^{235}U значительно возрастает. Следовательно, наиболее выгодно обогащение ~ 90 %. По этой причине во многих исследовательских реакторах в России используют уран 90%-го обогащения, а в США – уран 93%-го обогащения.

18. ТЕХНИКА БЕЗОПАСНОСТИ [5]

К проблемам техники безопасности технологии топливных соединений относятся: радиотоксичность соединений, химическая токсичность, взрыво- и пожароопасность и вопросы безопасности, связанные с возможностью возникновения самоподдерживающейся цепной реакции (СЦР).

При разработке процессов изготовления и использования ядерного топлива необходимо учитывать, что уран, плутоний и торий являются α -активными и сильно токсичными материалами. Эти вещества, попав в организм человека, в течение длительного времени облучают ткани и разрушают их. Радиоактивные частицы в костных тканях могут вызвать резкое уменьшение лейкоцитов в крови, а затем и лучевую болезнь. Частицы ядерного топлива могут попасть в организм при вдыхании, с пищей, питьевой водой, через ранки или царапины. Допустимые количества радиоактивного вещества в теле человека составляют доли микрограмма ($Pu \sim 0,6$ мкг). В связи с этим установлены жесткие нормы предельно допустимых концентраций в воздухе рабочих помещений и питьевой воде.

Для предотвращения опасности превышения норм загрязнения особо необходимо обратить внимание на операции, связанные с выделением дыма, пыли, различных порошков, а также на операции, связанные с высокотемпературным нагревом; такие операции должны проводиться в герметичных камерах и аппаратах. Операции с компактным необогащенным ураном и торием без нагрева и пыления можно осуществлять в открытых камерах.

Требования к производственным помещениям, в которых ведутся работы с ядерным топливом, а также нормы предельно допустимых концентраций радиоактивных веществ, регламентируются Основными санитарными правилами обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ – 99) в зависимости от степени радиотоксичности материала и его количества на рабочем месте.

Внешнее облучение α -частицами не представляет большой опасности в связи с низкой проникающей способностью частиц. Но при наличии большого количества топлива в контакте с бериллием может возникнуть опасность внешнего облучения нейтронами, γ -квантами и β -частицами, проникающая способность которых значительно выше, чем α -частиц. Особенно высокой проникающей способностью обладают нейтроны и γ -кванты, которые сильно действуют на лимфатические же-

лезы и костный мозг. Защита от γ -излучения может быть осуществлена введением экранов из материалов с высоким атомным номером (свинец и др.). Защита от нейтронного излучения является более сложной задачей и должна решаться в каждом конкретном случае.

Плутоний характеризуется высокой радиотоксичностью. Работа с его соединениями должна проводиться с тщательным выполнением всех необходимых мер техники безопасности. Радиотоксичность изотопов плутония отличается друг от друга на много порядков. Изотопный состав плутония изменяется в зависимости от происхождения плутония (типа реактора, в котором облучался уран, и длительности облучения), а также срока его хранения.

При значительных количествах плутония кроме α -излучения существенное значение имеют и другие виды его излучения, обусловленные присутствием различных изотопов и примесей: β -излучение, связанное с присутствием ^{241}Pu и продуктов деления урана, испытывающих β -распад; γ -излучение технического плутония, вызванное примесями продуктов деления урана и накопившимся за время хранения ^{241}Am ; нейтронное излучение, возникающее вследствие ядерных реакций α -частиц плутония с некоторыми элементами, содержащимися в нем (Li, Be, B, F, Cl, O и др.). В чистом плутонии содержание этих примесей пренебрежимо мало, однако соединения плутония с этими элементами, в том числе бориды и особенно бериллиды, обладают высокой нейтронной радиотоксичностью.

Эффективность поглощения γ -излучения зависит от материала поглотителя. Ориентировочная толщина различных материалов, которая уменьшает интенсивность γ -излучения PuO_2 в 10 раз, составляет, мм: 0,2...1 (свинец), 3...4 (свинцовое стекло), 4...5 (нержавеющая сталь), более 30...50 (обычное стекло). Но поскольку энергетические спектры γ -излучения изотопов Pu различаются, то эффективность поглощения при заданном материале экрана зависит и от изотопного состава.

Интенсивность нейтронного излучения существенно зависит от состава плутонийсодержащих соединений (табл. 18.1) вследствие реакции (α, n).

Таблица 18.1

*Интенсивность нейтронного излучения плутония
в некоторых соединениях*

Изотоп	Интенсивность излучения, нейтр/(г·с)		
	Pu	PuF	PuO ₂
^{238}Pu	$2,6 \cdot 10^3$	$2 \cdot 10^6$	$1,7 \cdot 10^4$
^{239}Pu	$3 \cdot 10^{-2}$	$4,3 \cdot 10^3$	$4,5 \cdot 10^1$
^{240}Pu	$1 \cdot 10^3$	$1,7 \cdot 10^4$	$1,2 \cdot 10^3$
^{242}Pu	$1,7 \cdot 10^3$	$1,9 \cdot 10^3$	$1,7 \cdot 10^3$

По возрастанию степени пирофорности их можно расположить примерно в такой последовательности: двуокись урана, диборид урана, мононитрид урана, фосфиды и сульфиды урана, дикарбид урана, монокарбид урана, металлический уран.

При воспламенении различные порошки горят сравнительно спокойно (например, горение порошка карбида урана носит характер тления с превращением его в окись). Гасить загоревшийся порошок необходимо только сухими порошкообразными материалами, например фтористым кальцием, понижающим температуру очага горения. В тех случаях, когда нежелательно загрязнение продукта, при небольших количествах горящего материала можно иногда приостановить распространение горения, прижав место горения массивным металлическим предметом. Ни в коем случае нельзя гасить горящий порошкообразный материал водой – реакция может усилиться или сильной струей углекислотного огнетушителя – может произойти раздувание горящего порошка.

При хранении плутонийсодержащих материалов (сплавов, порошков карбидов и окислов) в герметичных контейнерах иногда развивается значительное внутреннее давление, которое может приводить к выбросу продуктов при вскрытии контейнера. Возникновение внутреннего давления связано с присутствием адсорбированных примесей, разогревом материала, радиолитическими и каталитическими реакциями.

Для уменьшения опасности возникновения давления необходимо ограничивать количество летучих примесей и обеспечивать допустимый уровень содержания влаги в камерах. Основными примесями, адсорбируемыми двуокисью плутония, являются вода, углекислый газ, окись углерода и окислы азота, а также углеводороды и кислород.

Если соединения плутония хранились длительное время, то перед использованием их целесообразно подвергать химической переработке для ликвидации чрезмерного окисления и снижения интенсивности γ -излучения, связанного с накоплением америция. Перед загрузкой и герметизацией контейнеров двуокись плутония следует тщательно очищать от примесей и обезгаживать.

Практически все технологические операции получения топлива и снаряжения его в оболочку должны проводиться в защитных камерах. Обеспечение ядерной безопасности чрезвычайно важно, и в каждом конкретном случае необходим детальный анализ допустимых условий работы, чтобы исключить опасность возникновения СЦР.

Необходимо на всех операциях технологии изготовления ТВЭЛа и ТВС не накапливать топливо в количествах, достаточных для поддержания ценной реакции. Критическая масса топлива зависит от многих факторов: формы, материалов, среды и т. д. Разберем влияние некоторых из них.

Форма системы. Форма системы оказывает большое влияние на утечку нейтронов из системы. Утечка будет тем больше, чем больше отношение площади наружной поверхности системы к ее объему. Из правильных геометрических тел одинакового объема наименьшим отношением площади наружной поверхности к объему обладает сфера. Поэтому наименьшую критическую массу имеют системы сферической формы. Если рассматривать цилиндрические системы одного объема, но с различными высотами и радиусами, то наиболее опасным будет цилиндр, у которого высота примерно равна диаметру. Известно, что при заданном составе системы критический объем равностороннего цилиндра на 14 %, а критический объем куба на 24 % больше, чем критический объем сферы.

Опасность изменения формы системы необходимо постоянно иметь в виду при работе с делящимися веществами. Например, не всегда проволоку из делящихся веществ можно сматывать в клубок или складывать вместе разрубленные куски проволоки.

Действие отражателей. При наличии отражателей часть вылетающих из активной зоны нейтронов возвращается обратно после столкновения с материалом отражателя. Таким образом, присутствие отражателя приводит к уменьшению вылета нейтронов из активной зоны, а следовательно, к уменьшению критических параметров системы. Вылет нейтронов из активной зоны уменьшается при увеличении толщины отражателя. При этом наиболее эффективно действует первый слой отражателя толщиной порядка длины миграции быстрого нейтрона в отражателе. Для отражателя из воды эта толщина составляет 6 см, для отражателя из графита 50 см, для бетона 30 см. Дальнейшее увеличение толщины отражателя приводит к незначительному уменьшению критических параметров. Например, критическая масса сферы из ^{235}U без отражателя 48 кг, при окружении её слоем воды толщиной 5,1 см – 24 кг, при 10,2 см – 22,9 кг. В случае бесконечного водного отражателями критическая масса равна 22,8 кг.

В реальных условиях делящиеся вещества всегда окружены отражателями – вода, стены и пол помещения, стенки оборудования, люди, руки людей при охвате ими деталей. Для металлического урана-235 и плутония-239 лучшими материалами отражателями являются бериллий, его окись, вода, тяжелая вода, графит.

Плотность системы. С увеличением плотности делящегося вещества увеличивается концентрация ядер вещества в единице объема. На пути нейтронов чаще попадают ядра делящихся нуклидов. Следовательно, критические параметры системы уменьшаются при увеличении плотности системы.

Таблица 18.2

Требования к защитным камерам различного назначения

Соединение	Основное назначение камеры	Основные параметры камеры	Возможные конструкции камеры
1. ThO ₂ , UO ₂ (уран природный и обогащенный ²³⁵ U)	Предохранение работающего персонала от аэрозолей, α- и β-излучения, химической токсичности	Герметичность (не очень жесткие требования). Воздушная атмосфера, в некоторых случаях осушенная до содержания воды 1...10 г/м ³	Перчаточные металлические или из прозрачной пластмассы
2. PuO ₂ ; (U, Pu)O ₂ ; ²³³ UO ₂	То же, что в п. 1; защита от γ- и нейтронного излучения	То же, что в п. 1; при значительно более жестких требованиях к герметичности (шлюзовые устройства, объединение камер в цепочки)	То же, что в п. 1; экраны для защиты от γ- и нейтронного излучения
3. Карбиды, нитриды, бориды, сульфиды, фосфиды урана и тория (²³⁸ U, ²³⁵ U)	То же, что в п. 1; предохранение материалов от окисления кислородом и парами воды	Высокая герметичность (для исследовательских целей – наивысшая), атмосфера благородных газов (аргон, гелий) с содержанием воды и кислорода 0,1...100 мг/м ³	То же, что в п. 1; иногда с возможностью вакуумирования. Системы очистки благородных газов от O ₂ и H ₂ O, герметизация перчаточных люков
4. Карбиды, нитриды, бориды, сульфиды, фосфиды плутония и ²³³ U	То же, что в п. 2; предохранение материалов от окисления кислородом и парами воды	То же, что в п. 2 и 3	То же, что в п. 2 и 3
5. Облученное топливо высокой активности	Предохранение персонала от α-, β- и γ-излучения	Мощная радиационная защита. Атмосфера в соответствии с требованиями технологии	Исполнение по типу защитных камер, дистанционное управление, манипуляторы

Для того чтобы система без отражателя оставалась критичной при равномерном изменении плотности, необходимо, чтобы линейные размеры системы изменялись обратно пропорционально плотности. Отсюда следует, что критическая масса сферы без отражателя будет изменяться обратно пропорционально квадрату плотности. Для бесконечно длинных цилиндров критическая масса на единицу длины обратно пропорциональна плотности. В случае бесконечных пластин масса на единицу площади остается неизменной.

Действие замедлителей. Вероятность взаимодействия нейтрона с ядром зависит от энергии нейтрона, и для медленных нейтронов она значительно выше. Если ядра способны делиться под действием медленных нейтронов, т. е. являются делящимися ядрами, то сечение деления для таких ядер также резко возрастает при уменьшении энергии нейтронов. Поэтому критические массы систем с замедлителями значительно меньше критических масс систем без замедлителей. Например, для уран-водных систем с бесконечным водным отражателем критическая масса изменяется от 22,8 кг (металл) до 0,82 кг (раствор) в зависимости от содержания водорода в системе.

Система с замедлителем может быть создана как при перемешивании делящегося вещества с замедляющими веществами (растворы, порошки из делящегося вещества, содержащие графит, масла воду и т. п.), так и при сочетании деталей или кусков делящегося вещества с замедлителями (стружка в воде, прутки в масле и т. д.).

Взаимодействие систем. При совместном размещении нескольких подкритических систем часть нейтронов, вылетев из одной системы, попадет в другие и вызовет, в свою очередь, деление ядер и испускание нейтронов деления, часть из которых может вернуться в первоначальную систему и вызвать новое деление и т. д. Обмен нейтронов между системами (т. е. взаимодействие систем) приведет к тому, что эффективный коэффициент размножения сборки из нескольких систем $k_{эф.сб}$ будет больше, чем $k_{эф}$ каждой из систем, и в некоторых случаях может быть, что $k_{эф.сб} \geq 1$, т. е. возникнет СЦР.

Обычно считают, что две системы взаимодействуют, если расстояние между ними меньше половины максимального габаритного размера взаимодействующих систем или меньше 0,3 м.

Отметим, что СЦР может произойти в результате нейтронного взаимодействия делящихся веществ, находящихся в двух сейфах, если сейфы установить близко один от другого. Нейтроны свободно проходят через стенки сейфов, так как сталь является слабым поглотителем нейтронов.

Рассмотрим зависимость критической массы сферы из урана-235 от концентрации урана в водных растворах и гомогенных металл-

водных смесях (рис. 18.1), где обогащение урана будет составлять 93 % система имеет бесконечный водный отражатель.

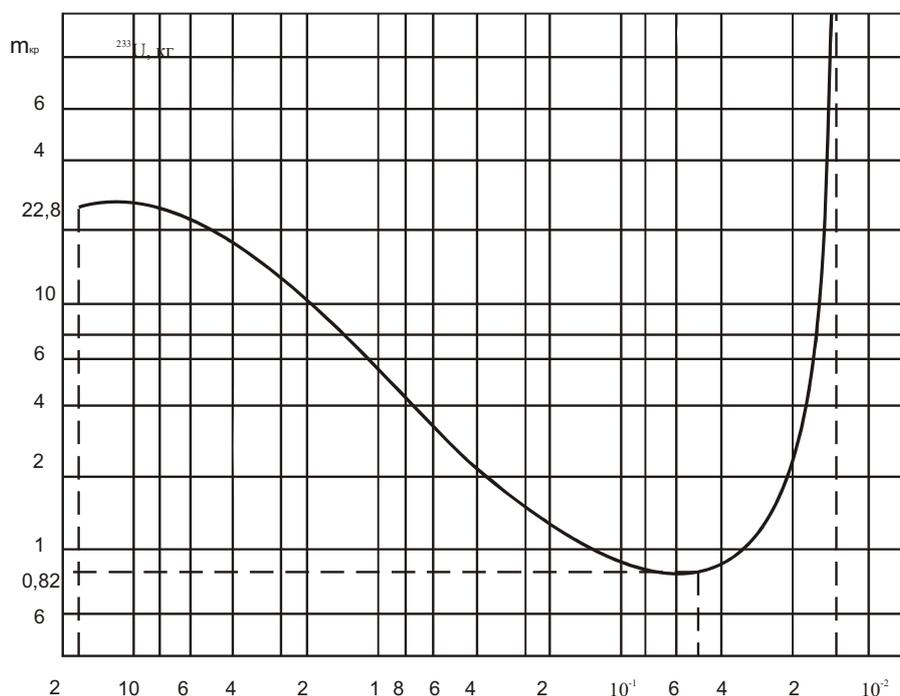


Рис. 18.1. Критическая масса гомогенной сферы из ^{235}U с бесконечным водным отражателем ^{233}U , кг

При разбавлении водой критическая масса системы первоначально возрастает. На этом этапе эффект уменьшения плотности преобладает над эффектом замедления. По мере дальнейшего разбавления замедление нейтронов в воде становится все более эффективным и критическая масса уменьшается до тех пор, пока не достигнет минимума. После этого добавление воды вызывает увеличение критической массы, так как начинает сказываться поглощение нейтронов водородом, и при концентрации урана-235 в растворе, равной 11 г/л (предельная критическая концентрация), критическая масса становится бесконечно большой. Доля нейтронов, поглощаемых водородом, в этом случае настолько велика, что k_{∞} становится меньше единицы и СЦР невозможна. Минимальное значение критической массы водного раствора урана-235 составляет 0,82 кг и называется минимальной критической массой урана-235. Она достигается при концентрации ^{235}U в растворе 50 г/л.

При растворении урана-233 и плутония-239 зависимости их критических масс от концентрации аналогичны зависимости, представленной на рис. 18.1. Значения некоторых критических параметров систем, содержащих ^{235}U , ^{233}U и ^{239}Pu и имеющих бесконечный водный отражатель, приведены ниже.

	²³⁵ U	²³³ U	²³⁹ Pu
	Масса, кг		
Сфера (раствор)	0,82	0,59	0,51
Сфера (металл)	22,8	7,5	5,6
	Диаметр бесконечного цилиндра, мм		
Раствор	137	111	124
Металл	78	48	43
	Толщина бесконечной пластины, мм		
Раствор	43	30	33
Металл	15	7	6
	Предельная критическая концентрация в воде, г/л		
Раствор	11	10,9	7,3

Исходя из значений критических параметров систем, содержащих делящиеся вещества, устанавливают допустимые значения параметров таких систем (допустимые массы, объемы, концентрации). Например, допустимые массы делящихся веществ определяются как $m_{\text{до}} = m_{\text{крит}} / K$, где K – коэффициент запаса, который учитывает возможность случайной двойной загрузки системы (при этом система останется подкритической).

Ниже приведены допустимые массы (кг) систем из делящихся веществ с водным отражателем.

	²³⁵ U	²³³ U	²³⁹ Pu
Водные растворы, смеси и т. д.	11,0	0,25	0,25
Металлические слитки	0,35	3,0	2,6

Значение критических параметров для систем, содержащих уран-235, сильно меняется при изменении обогащения урана: так как уран-238 является поглотителем нейтронов, критическая масса урана-235 растет при уменьшении обогащения урана. В табл. 18.3 представлены допустимые значения массы урана в воде при любом объемном отношении урана к воде в зависимости от обогащения урана. Считается, что система имеет бесконечный водный отражатель.

Таблица 18.3

Допустимые значения массы урана в воде при водном отражателе

Обогащение урана, %	Масса ²³⁵ U, кг	Общая масса урана, кг	Обогащение урана, %	Масса ²³⁵ U, кг	Общая масса урана, кг
100	0,35	0,35	8	0,65	8,2
75	0,36	0,48	6	0,71	12
50	0,39	0,78	5	0,80	16
40	0,41	1,02	3	1,04	35
30	0,44	1,47	2	1,36	68
20	0,48	2,4	1	0,80	080
10	0,60	6,0			

Необходимо отметить, что допустимые количества делящихся веществ всегда устанавливаются при определенных условиях, которым должна удовлетворять данная конкретная система. Например, указанные выше допустимые количества неприменимы при проведении работ с системами, содержащими замедлители лучшие, чем вода, с делящимися веществами повышенной плотности или имеющими отражатели лучшие, чем вода.

Протекание СЦР в растворах с делящимися веществами заслуживает наибольшего внимания по следующим причинам: большая распространенность таких растворов на радиохимических заводах; малая критическая масса делящихся нуклидов в растворах; высокая мобильность жидких сред.

Облучение персонала в случае СЦР происходит за счет как мгновенной радиации, которая действует в течение долей секунды, так и запаздывающей радиации, обусловленной продуктами деления, образовавшимися в результате СЦР. Вклад последней в суммарную дозу может достигать 50 %, поэтому важна немедленная эвакуация персонала при получении сигнала об СЦР.

При решении задач ядерной безопасности необходимо тщательно оценивать надежность технических и организационных мер по предупреждению возникновения СЦР, а также прогнозировать ее последствия в случае аварии. Считается, что любые технические достижения в области обнаружения СЦР системой аварийной сигнализации (САС) и быстрого определения характеристик СЦР окажутся эффективными только в случае высокой квалификации обслуживающего персонала и быстроты его ответной реакции.

КОНТРОЛЬНЫЕ ВОПРОСЫ

§1

1. Что такое ядерное топливо (ядерное сырьё)?
2. В чём отличие аморфной и кристаллической структуры твёрдого вещества?
3. Назовите и поясните типы связей в кристаллических решетках.
4. Назовите распространённые типы решеток кристаллов и нарисуйте их.
5. В чём отличие сплава от химического соединения?
6. Назовите и охарактеризуйте типы бинарных сплавов.
7. Какие типы сплавов используются в ядерных реакторах?
8. Нарисуйте диаграмму состояний чистого вещества.
9. Нарисуйте и объясните диаграмму равновесия на каком-либо примере.
10. В чём заключается правило Н.С. Курнакова?
11. Нарисуйте и объясните диаграмму тройного сплава (системы).
12. Когда применяется порошковая металлургия?

§2

1. Каков механизм деструктивного воздействия нейтронов на вещество?
2. Как действуют осколки деления на вещество топлива?
3. От чего зависит температура пика деления?
4. Что такое пик деления и каковы его размеры?

§3

1. Каков состав природного урана?
2. Запишите реакцию получения ^{233}U .
3. Назовите фазы урана, их структуру и температурные области существования.
4. Каковы свойства α -урана?
5. Какова совместимость урана с теплоносителями (H_2O , CO_2 , Na, K)?
6. Какова совместимость урана с материалами оболочек ТВЭЛ (Al, Mg, Zn, Fe, нерж. сталь)?
7. Что такое твёрдое распухание?
8. Объясните механизм разупрочнения урана при термоциклировании. Когда последнее имеет место?
9. Что такое коэффициент радиационного роста?
10. Какие существуют теории радиационного роста?

11. Когда возникает радиационная ползучесть? Какова её скорость?
12. Каковы принципы газового распухания урана и когда оно имеет место?
13. Когда наступает катастрофическое распухание урана?
14. Назовите меры защиты урана от радиационного и температурного воздействий.

§4

1. Каковы недостатки металлического урана как ядерного топлива?
2. Назовите требования, предъявляемые к сплавам урана.
3. Перечислите типы (группы) сплавов урана и приведите примеры.
4. Что такое фиссиум?
5. Какова цель создания сплавов урана с низким содержанием легирующих добавок?
6. Какова цель создания сплавов урана с большим содержанием легирующих добавок?
7. Когда требованием минимума сечения поглощения легирующей добавки можно пренебречь?
8. Виды сердечников из металлического урана и его сплавов?
9. Меры безопасности при работе с металлическим топливом?
10. Охарактеризуйте способы плавки и литья сердечников ТВЭЛ из сплавов урана?
11. Что такое обработка давлением. Виды обработки?
12. Как применяется порошковая металлургия при изготовлении металлического топлива?

§5

1. Назовите достоинства диоксида урана как ядерного топлива.
2. Какова теплопроводность диоксида урана и градиенты температур в нём?
3. Каковы требования к пористости изделий из диоксида урана?
4. Какова совместимость диоксида урана с теплоносителями и материалами оболочек ТВЭЛ?
5. В чём отличие эксплуатационных свойств UO_2 и U_3O_8 ?
6. Сформулируйте требования к таблетке диоксида урана и сделайте пояснения.
7. То же сделайте по отношению к порошку диоксида урана.
8. В чём состоит идея создания порошка сферических частиц диоксида урана?
9. Каковы структурные изменения в диоксиде урана при облучении?
10. Как протекает газовое распухание диоксида урана при облучении?
11. Каковы причины изменения физических свойств диоксида урана при облучении?

12. Какие виды топливных сердечников из диоксидов урана вам известны?
13. Какова последовательность в технологии изготовления таблетки из диоксида урана?
14. Охарактеризуйте технологические приемы, которые применяют для изготовления топливных сердечников из диоксида урана?
15. В чем заключается особенность «таблеточного» производства и как они сказываются на экономике процесса?
16. Назовите основные этапы изготовления таблетки из смешанного (U, Pu)O₂ топлива?
17. Какие меры безопасности необходимы при изготовлении изделий:
 - а) из диоксида урана,
 - б) из смешанного (U, Pu)O₂ топлива?

§6

1. Каковы достоинства и области применения карбидов урана?
2. В чём различие взаимодействия с оболочкой ТВЭЛ карбидов до-стехиометрического и застехиометрического составов?
3. Какова совместимость карбидов урана с другими материалами активной зоны реактора?
4. Каковы структурные изменения в карбидах при облучении?
5. Охарактеризуйте типы карбидных сердечников ТВЭЛ.
6. Как влияет технология изготовления сердечников из карбидов на поведение их в реакторе?
7. Почему технологический зазор между карбидным сердечником и металлической оболочкой ТВЭЛ делают большим, нежели в случае оксидного сердечника?
8. Какие виды топливных сердечников из карбидов урана вам известны?
9. С чем связана высокая точность изготовления карбидных сердечников?
10. В чем заключаются особенности технологии карбидных сердечников?

§7

1. Почему все изотопы плутония искусственные?
2. По какой реакции образуется ²³⁹Pu?
3. Какие свойства плутония как топлива являются положительными?
4. Почему плутоний считается токсичным элементом?
5. В чём причина саморазогрева плутония?
6. Какова структура металлического плутония?
7. Почему плутоний металлический неприменим как топливо?
8. С какими целями создают сплавы плутония?
9. Каковы особенности смешанного уран-плутониевого оксидного топлива?
10. В каких реакторах и почему применяется плутониевое топливо?

11. Назовите виды топливных сердечников из сплавов плутония?
12. Охарактеризуйте технологии литья и обработки топливных сердечников из сплавов плутония?
13. Какие меры безопасности предусматриваются при изготовлении сердечников из сплавов плутония?

§8

1. Охарактеризуйте применимость изотопа ^{232}Th как ядерного топлива?
2. Какова радиационная стабильность металлического тория?
3. Каковы ограничения по применению уран-ториевых сплавов?
4. Какими преимуществами обладает диоксид тория при облучении в реакторе по сравнению с UO_2 ?
5. В чем состоит проблема реализации ториевого цикла?
6. Запишите реакцию получения ^{233}U из ^{232}Th .
7. Запишите реакцию образования изотопа ^{232}U .
8. Как осуществляется плавка и литье тория?
9. Виды обработки тория давлением и виды изделий из тория.
10. Какова технология изготовления металлокерамики на основе тория?

§9

1. Какое ядерное топливо называется дисперсионным? Назовите виды ДТ.
2. Приведите возможные комбинации топлива и матриц для дисперсионного топлива.
3. От каких дефектов зависит радиационная прочность дисперсионного топлива?
4. Что собой представляет топливная частица дисперсионного ядерного топлива?
5. В каких реакторах применяется ДТ и почему?
6. Как конструктивно может выглядеть ТВЭЛ на основе ДТ?

§10

1. Какие достоинства имеет реактор с жидким ядерным топливом?
2. Назовите требования, предъявляемые к топливу ЖСР.
3. Какие вещества могут служить топливом для ЖСР?
4. В чем заключаются достоинства и недостатки мононитрида урана как ядерного топлива?
5. Охарактеризуйте ядерное топливо:
 - а) PuN , б) ThN , в) U_3Si , г) US .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Герасимов В.В., Монахов В.С. Материалы ядерной техники. – М.: Атомиздат, 1976. – 260 с.
2. Жуков В.А., Соловьёв Г.И. Радиационные эффекты в реакторных материалах. – М.: Изд-во МИФИ, 1987. – 43 с.
3. Муругов В.М., Троянов М.Ф., Шмелев А.Н. Использование тория в ядерных реакторах. – М.: Энергоатомиздат, 1983. – 95 с.
4. Новиков В.М., Игнатъев В.В., Федулов В.И., Чередников В.Н. Жидкосольевые ЯЭУ. Перспективы и проблемы. – М.: Энергоатомиздат, 1990. – 191 с.
5. Самойлов А.Г. Тепловыделяющие элементы ядерных реакторов. – М.: Энергоатомиздат, 1985. – 222 с.
6. Самойлов А.Г. Дисперсионные твэлы. Т. 1. – М.: Энергоиздат, 1982. – 224 с.
7. Скоров Д.М., Бычков Ю.Ф., Дашковский А.И., Чепкунов В.В. Реакторное материаловедение. – М.: Атомиздат, 1968. – 386 с.
8. Травин О.В., Травина К.Т. Материаловедение. – М.: Metallurgy, 1989. – 383 с.
9. Урсу И. Физика и технология ядерных материалов. – М.: Энергоатомиздат, 1988. – 479 с.
10. Фрост Б. Твэлы ядерных реакторов. – М.: Энергоатомиздат, 1986. – 247 с.
11. Шевелев Я.В., Клименко А.В. Эффективная экономика ядерного топливно-энергетического цикла. – М.: Изд-во РГТУ, 1996. – 736 с.
12. Справочник по ядерной энерготехнологии / Ф. Ран, А. Адамантиадес, Дж. Кентон, Ч. Браун – М.: Изд-во РГТУ, 1996. – 736 с.
13. Бать М.И. Теоретическая механика в примерах и задачах. Статика и кинематика: учебное пособие для вузов / М.И. Бать, Г.Ю. Джанелидзе, А.С. Кильзон. – 10-е изд., перераб. и доп. – СПб.: Политехника, 1995. – 670 с.
14. Материалы для реакторов с натриевым теплоносителем: доклады, представленные на симпозиум, состоявшийся в США (9 ноября 1963 г.) / пер. D/D/ Чепкунов; под ред. И.С. Головина. – М.: Атомиздат, 1966. – 331 с.
15. Коллиер Дж. Введение в ядерную энергетику / Дж. Коллиер, Дж. Хьюитт. – М.: Энергоатомиздат, 1989. – 255 с.
16. Поглащающие материалы для регулирования ядерных реакторов / пер. с англ.; под ред. Б.Г. Арабея и В.В. Чекунова. – М.: Атомиздат, 1965. – 450 с.
17. Торий в ядерном топливном цикле / В.И. Бойко и др. – М.: Руда и металлы, 2006. – 360 с.
18. Корсаков В.С. Технология реакторостроения / В.С. Корсаков, В.Ф. Выговский, В.И. Михан. – 2-е изд., перераб. и доп. – М.: Атомиздат, 1992. – 432 с.

Учебное издание

Бойко Владимир Ильич
Колпаков Геннадий Николаевич
Селиваникова Ольга Валерьевна

ТОПЛИВНЫЕ МАТЕРИАЛЫ В ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКЕ

Учебное пособие

Редактор	<i>Д.В. Заремба</i>
Верстка	<i>К.С. Чечельницкая</i>
Дизайн обложки	<i>О.Ю. Аршинова О.А. Дмитриев</i>

Подписано к печати 03.09.2008. Формат 60x84/16. Бумага «Снегурочка».

Печать XEROX. Усл. печ. л. 10,82. Уч.-изд. л. 9,78.

Заказ 790. Тираж 200 экз.



Томский политехнический университет
Система менеджмента качества
Томского политехнического университета сертифицирована
NATIONAL QUALITY ASSURANCE по стандарту ISO 9001:2000



ИЗДАТЕЛЬСТВО  ТПУ. 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.