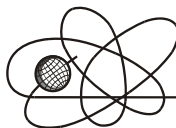




Российская Академия Наук

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ИНСТИТУТ ПРОБЛЕМ
БЕЗОПАСНОГО РАЗВИТИЯ
АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ**



ИБРАЭ

RUSSIAN ACADEMY OF SCIENCES

**NUCLEAR SAFETY
INSTITUTE**

Препринт ИБРАЭ № ИБРАЭ-2015-05

Preprint IBRAE-2015-05

Л.А. Большов, А.А. Солодов

КОМПОЗИТНОЕ ТОПЛИВО ДЛЯ РЕАКТОРА БРЕСТ

УДК: 621.039.542/544 , 621.038.8 , 621.039.59

Л.А. Большов, А.А. Солодов. Композитное топливо для реактора БРЕСТ. – Препринт / Ин-т проблем безопас. развития атом. энергетики РАН, № ИБРАЭ-2015-05. – М. ИБРАЭ РАН, 2015 – 20 с. – Библиограф.: 23 назв. – 55 экз.

Изложен анализ служебных, технологических и стоимостных характеристик нового таблеточного композитного топлива для быстрого энергетического реактора. Топливный сердечник имеет структуру сэндвича и выполнен из тонких таблеток оксидного или нитридного топлива, переложенных молибденовыми прокладками. Молибденовые прокладки придают сердечнику высокую радиальную теплопроводность при типичной ее величине 25 или 40 Вт/(м К) для сердечников с оксидными или нитридными таблетками. Ключевой момент конструкции – изготовление шайб из молибдена, сильно обогащенного по нейтронопрозрачным изотопам $^{92,94}\text{Mo}$ или $^{98,100}\text{Mo}$. Отмечена уникальная особенность Mo, состоящая в низком собственном радиационном фоне после облучения в реакторе и выдержке ~ 1 год, что делает возможным быстрый рецикл постреакторного молибдена. Приведена оценка стоимости смесей изотопов Mo 92,94 или Mo 98,100 . Дополнительные затраты на производство изотопов молибдена для композитного топлива первой загрузки остаются умеренными. Эта величина достигает 3 – 6 ЕРР на 1 кг композита, что соответствует затратам на 1 кг слабообогатленного урана для топлива медленных реакторов.

В композитном топливе с нитридными таблетками молибденовые прокладки блокируют фрагментацию таблеток. Последнее выключает основные механизмы повреждения оболочки твэла с нитридными таблетками. Таким образом, новое топливо с нитридными таблетками следует предварительно оценивать как надежное и безопасное кандидатное топливо для реактора БРЕСТ.

©ИБРАЭ РАН, 2015

L.A. Bolshov, A.A. Solodov. The composite fuel for BREST reactor. Preprint № ИБРАЭ - 2015-05. Moscow Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (IBRAE RAN), 2015. – 20 p. – Refs.: 23 items

The revue is exposed on operational, technological and cost properties of the novel nuclear fuel for fast power reactor. The fuel element is made as a sandwich structure of thin oxides or nitride pellets and interposed molybdenum spacers. The molybdenum spacers are responsible for the high effective heat conduction constant of the fuel, typically in the range of 25 W/m·K or 40 W/m·K if oxide/nitride pellets are used. The startpoint of the design is that molybdenum would be enriched in neutron – transparent isotopes $^{92,94}\text{Mo}$ or $^{98,100}\text{Mo}$. The unique property of molybdenum from the viewpoint of recycling of that material is that its specific activity is low after postreactor storing ~ 1 year long, which enables recycling of molybdenum used after relatively short stay. The estimate is performed on the isotopes $^{92,94}\text{Mo}$ and $^{98,100}\text{Mo}$ mixtures cost. The cost of Mo isotopes production for first – loading fuel is rather moderate. That value estimate is 3 – 6 SWU for 1 kG of composite, essentially in the range of cost of 1 kG of low–enriched uranium for slow-reactor fuel.

By the virtue of specific structure of composite nitrides fuel as thin nitrides pellets and molybdenum spacers the blocking of pellets fragmentation is achieved. So the general degradation mechanism of fuel rods with nitrides pellets is turned off. The novel composite nitrides fuel should be regarded as reliable and safe candidate fuel for the BREST reactor.

©Nuclear Safety Institute, 2015

Композитное топливо для реактора БРЕСТ

Л.А. Большов, А.А. Солодов

ИНСТИТУТ ПРОБЛЕМ БЕЗОПАСНОГО РАЗВИТИЯ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ

113191, Москва, ул. Б. Тульская, 52

тел.: (095) 955-22-19, (499) 739-43-41, эл. почта: manacevich@gmail.com

Содержание

1 Введение	3
2 Конструкция и служебные характеристики сердечника на основе (U,Pu)O ₂	6
3 Регенерация конструкционного молибдена	8
4 Стоимость изотопов молибдена	10
5 Регенерация нитридного композитного топлива	11
6 Фрагментация нитридного композитного топлива	12
7 Стоимость композитного нитридного топлива	14
8 Обсуждение	15
9 Литература	19

1 Введение

В работе излагается описание нового ядерного топлива, предложенного в патенте [1]. При разработке топлива работы [1] преследовалась цель получить гарантированно работоспособное нитридное топливо для реактора БРЕСТ. Известно, что принятое в проекте реактора БРЕСТ таблеточное нитридное топливо в настоящее время не имеет статуса доказанно надежного топлива. Состояние проблемы изложено в докладе [2]; данные по нитриднему топливу систематизированы в монографиях [3,4]. Существует убеждение, что нитридное топливо во всех своих аспектах будет доработано. Однако в настоящее время его пригодность для использования в коммерческом энергетическом реакторе, строго говоря, остается под вопросом. Поэтому для проекта БРЕСТ может оказаться полезным обсуждение новых идей, направленных на разработку полноценной или по крайней мере “страховочной” версии топлива. Страховочным считается любое работоспособное и надежное топливо, неприемлимое по тем или иным причинам, например, вследствие высокой стоимости.

Выбор для реактора БРЕСТ нитридного топлива в качестве базового имеет серьезные основания [3,4]. Хорошо изученное таблеточное оксидное топливо обладает важными достоинствами. Это, в первую очередь, химическая инертность оксидов (U,Pu)O₂, сравнительно простая технология оксидной таблетки, а также наличие промышленных технологий регенерации отработавшего топлива. Однако оксидное топливо плохо вписывается в схему быстрого энергетического реактора. Топливные фазы (U,Pu)O₂ имеют низкую теплопроводность. Поэтому при технически оптимальных тепловых нагрузках оксидная таблетка имеет высокую температуру и слабо удерживает газообразные продукты деления. Выход газов из топлива в ходе кампании ведет к опасному росту давления под оболочкой твэла. Следующее осложнение вызвано тем, что оксидное топливо плохо удерживает Cs,Te и I, которые (при растущем кислородном потенциале выгорающего топлива) ускоряют коррозию внутренней стенки оболочки твэла [3].

Недостатки оксидного топлива стимулировали разработку “продвинутых” ядерных топлив для быстрых реакторов на основе карбидов (U,Pu)C или нитридов (U,Pu)N [3,4]. Считается, что наиболее привлекательно топливо на основе нитридов (U,Pu)N, которое при температурах на оси таблетки до 1100 °C распухает медленнее других топлив и удерживает газообразные продукты деления вплоть до выгораний ~8% FIMA [3,4]. Однако уже первые реакторные испытания выявили ненадежность твэлов с карбидными и нитридными таблетками, что обусловлено исключительно низкой пластичностью и хрупкостью нитридных и карбидных фаз при обычных рабочих температурах топлива.

Известно, что в быстрых реакторах используются режимы с высокой тепловой нагрузкой на топливо. Оксидная таблетка в подобных режимах имеет высокую температуру, оказывается достаточно пластичной, однако слабо удерживает газы. При этом оболочка твэла, если она способна противостоять давлению топлива ~ 10 МПа без заметных деформаций, сдерживает увеличение диаметра пористой оксидной таблетки, направляя распухание “внутри таблетки” (см. [3], с. 120–122). Твердотельное увеличение объема топлива компенсируется (благодаря давлению оболочки на топливо) сжатием присутствующих в таблетке пор.

Картина взаимодействия карбидного или нитридного топлива с оболочкой твэла кардинально отличается от изложенной. Пластическая деформация нитридов или карбидов требует весьма больших напряжений (см. рис. 3), поэтому распухающее топливо легко деформирует оболочку твэла. Поскольку при больших флюенсах стандартные оболочечные материалы мало пластичны, растяжение оболочки ведет к ее разрыву и разгерметизации твэла.

Чтобы обойти проблему механического взаимодействия таблетки и оболочки, была предложена конструкция с повышенным исходным зазором между сердечником и оболочкой твэла, обычно достигающим 0,25–0,5 мм и в ряде случаев 0,8 мм [3,4]. Для создания теплового контакта сердечник–оболочка зазор заполняется свинцом или натрием. В подобной конструкции выгорающая таблетка распухает практически как свободное тело. Однако твэлы с карбидными или нитридными таблетками и с повышенными зазорами также оказались ненадежными вследствие фрагментации таблеток. Испытания показали, что фрагментация делает живучесть твэла недопустимо низкой. Например, в экспериментах с таблетками карбидного топлива уже при выгораниях ~ 2% FIMA повреждалось ~ 0.1–1% оболочек твэлов (см. [3], с. 301–308; [4], рис. 8.22, 8.23, 8.24). Карбидное таблеточное топливо оценивается как непригодное для использования в энергетических реакторах.

Фрагментация топлива начинается уже в начале кампании. Тепловое расширение более нагретой сердцевинки таблетки вызывает растяжение ее периферических участков. Поскольку фазы (U,Pu)C и (U,Pu)N обладают низкой тепловой и радиационной ползучестью, растягивающие напряжения приводят к появлению микротрещин (см. [3], с. 301–308). Более серьезные последствия вызывает неоднородное по радиусу распухание выгорающей таблетки (см. раздел 6). Скорость распухания топлива определяется локальной температурой; сердцевина распухает быстрее периферии и расклинивает таблетку. Опубликованные фотографии поперечных разрезов твэлов с нитридными таблетками показывают, что при значительных выгораниях у большинства таблеток образуются характерные радиальные клиновидные трещины; заметная доля таблеток распадается на несколько частей [3,5,6]. С некоторой вероятностью происходит также смещение фрагментов; подобное событие увеличивает эффективный диаметр таблетки, причем зазор между оболочкой твэла и некоторыми таблетками целиком или частично выбирается уже

в начале кампании. Дальнейшее распухание топлива ведет к “жесткому нагружению” оболочки твэла и ее повреждению.

Обнаружено, что с малой, но заметной вероятностью фрагментация хрупких таблеток приводит к появлению мелких осколков. Осколки попадают в зазор между таблеткой и оболочкой и образуют концентраторы напряжений, что при последующем распухании топлива приводит к повреждению оболочки [2,3]. Набранная к настоящему времени статистика показывает, что данный механизм вызывает повреждение твэла с вероятностью 1:1000 [2]. Этот наиболее неприятный и трудно контролируемый механизм получил название “несистемный фактор”.

В литературе описаны попытки улучшить карбидное или нитридное топливо быстрых реакторов с помощью конструктивных приемов, учитывающих неизбежную фрагментацию таблеток. К числу продуктивных следует отнести идею пластичной оболочки, которая находится в плотном контакте с таблеткой, удерживает фрагменты таблетки от смещений и (как следствие пластичности) остается работоспособной при распухании топлива. Для проверки этой идеи в проекте EBR-II были испытаны твэлы с ниобиевыми оболочками и карбидными таблетками. Принималась линейная тепловая нагрузка 750 – 950 Вт/см, температура оболочек достигала 500 – 800 °С. Топливо облучалось до выгораний 7,1–9,3 % FIMA. Распухание таблеток в этих экспериментах оценивалось величиной $\Delta V/V \cong 10\text{--}20\%$. Деформации оболочек твэлов достигали 2–8 %, однако твэлы сохраняли герметичность (см. [3], с. 305).

В американском проекте реактора SP-100 [7] испытывались твэлы с нитридными таблетками и облегающими ниобиевыми оболочками (как в проекте EBR-II). Оболочки твэлов работали при температурах 900 – 1200 °С. При указанных температурах ниобиевые оболочки, очевидно, не были подвержены радиационному охрупчиванию, оставались пластичными и показали высокую надежность. Однако использование ниобия в коммерческом энергетическом реакторе исключено, так как постреакторный ниобий сильно радиотоксичен и не подлежит регенерации. На практике (например в проекте реактора БРЕСТ) в качестве оболочечного материала обычно принимается сталь ферритно-мартенситного класса. Оболочки работают при 400–600 °С и при высоких флюэнсах сохраняют малый запас пластичности (некоторое исключение составила бы оболочка из стали ЭП-823 [20]). Таким образом, идея пластичной оболочки в данном случае не работает.

В некоторых конструкциях твэлов с нитридными таблетками использовался повышенный зазор таблетка – оболочка, заполненный натрием, причем для фиксации фрагментов столбик таблеток помещали во вспомогательную облегающую тонкую оболочку (shroud tube, чулок), которую выполняли из стали 316 SS при толщине оболочки 0,076 мм [7]. Твэлы со вспомогательными оболочками показали высокую работоспособность.

Было найдено, что при увеличении пористости нитридных таблеток газовыделение увеличивается, а распухание таблеток несколько снижается, что улучшает условия механического взаимодействия таблетки и оболочки. Была высказана идея использовать топливо с компромиссной плотностью 85 % от теоретической. Испытания показали, что данная идея продуктивна и что при снижении плотности нитридного топлива надежность твэлов возрастает [3,5,6].

Реакторные испытания нитридных топлив показали, что при температурах ниже 900 °С выход газов и распухание нитридных таблеток определяются только механизмами радиационной диффузии и радиационной ползучести, слабо зависящими от температуры топлива (см. раздел 6, рис. 3). Поэтому в режимах с температурой на оси нитридной таблетки ≤ 900 °С распухание

таблетки квазиоднородно по радиусу, что исключает расклинивающий эффект сердцевины и появление широких радиальных трещин. Однако для стандартного нитридного топлива выбор максимальной температуры таблетки ~ 900 °С нежелателен, поскольку это ограничение задает неоправданно низкие тепловые нагрузки на топливо.

В обзоре таблеточных топлив необходимо рассмотреть нестандартные решения, направленные на исправление недостатков оксидной таблетки. Например, в оксидное топливо был введен дисперсный молибден в количестве до 20 % по объему, что в несколько раз увеличило теплопроводность топлива (см. [3], рис. 1.9, поз. 21 – 26). Однако топливо с большой долей дисперсной металлической фазы заведомо плохо удерживает газообразные продукты. Предложено также топливо, в котором радиальная теплопроводность оксидного топлива повышена за счет установки между таблетками теплопроводящих прокладок, выполненных из оксида бериллия [8]. Подобное топливо не вписывается в схему коммерческого энергетического реактора, так как на участках регенерации топлива и фабрикации таблеток возникают осложнения, обусловленные общей и нейтронной токсичностью бериллия.

В настоящей работе изложен анализ композитного топлива, краткое описание которого дано в патенте [1]. При разработке топлива работы [1] ставилась задача блокировать фрагментацию нитридной таблетки, причем были использованы обе отмеченные выше идеи (введение в конструкцию топлива теплопроводящих прокладок и использование для этой цели молибдена). Приведены расчетные служебные характеристики композитных топливных сердечников, выполненного на основе оксидов (U,Pu)O₂, а также нитридов (U,Pu)N. Изложены схемы регенерации композитного топлива, дана оценка его стоимостных характеристик.

2 Конструкция и служебные характеристики сердечника

Композитное топливо, предложенное в [1], схематически показано на рис. 1. Сердечник имеет структуру сэндвича, составленного из тонких топливных таблеток 1, между которыми установлены металлические прокладки 2, выполненные из молибдена. Прокладки играют роль теплопроводов и до некоторой степени армируют топливо. Толщину таблеток и молибденовых прокладок можно выбрать в интервале величин ~ 3 мм и $\sim 0,75$ мм.

К материалу прокладок 2 (рис. 1) предъявляются специфические требования: слабое поглощение нейтронов, высокая теплопроводность, совместимость с топливом, возможность регенерировать облученный материал прокладок, химическая инертность, устойчивость в условиях тяжелой аварии. Поиск по базам данных показывает, что данному набору требований удовлетворяет нейтронопрозрачный металлический молибден изотопного состава $^{92,94}\text{Mo}$ или $^{98,100}\text{Mo}$. Ядерные характеристики этого материала можно оценить по данным таблицы 1. Теплопроводность молибдена весьма высока: при 1000 К $\lambda_{\text{Mo}} = 112$ Вт/(м·К) [9], что почти в 7 раз выше теплопроводности топливных нитридов ($\lambda_{\text{UN}} \approx 17$ Вт/(м·К) при 1000 К) и в 28 раз выше теплопроводности топливных оксидов ($\lambda_{\text{UO}_2} < 4$ Вт/(м·К) при 1000 К).

Изотопы молибдена $^{92,94}\text{Mo}$ или $^{98,100}\text{Mo}$ слабо поглощают нейтроны, примерно как природный свинец. Таким образом, сплавы типа Mo–Ru–C или TZM с молибденом изотопного состава $^{92,94}\text{Mo}$ или $^{98,100}\text{Mo}$ (далее – “конструкционный молибден”) благодаря общей с природным молибденом инертности, тугоплавкости, высокой теплопроводности, а также нейтронопрозрачно-

сти, можно считать почти идеальным материалом активной зоны. Регенерация облученного “конструкционного молибдена” и композитного топлива (рис. 1) рассмотрена в разделах 3 и 5.

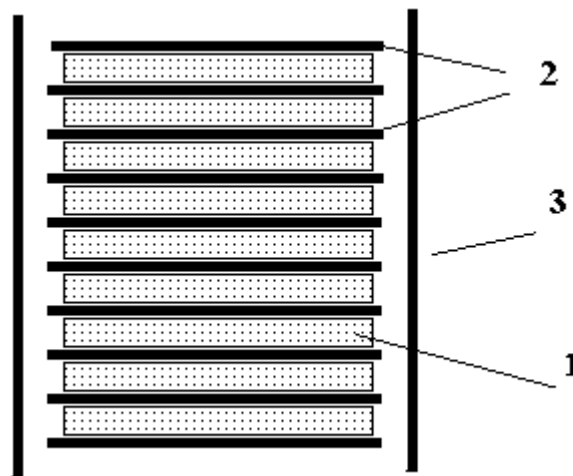


Рис. 1. Топливный сердечник, предложенный в [1] :

1 – таблетка, выполненная из оксидов $(U,Pu)O_2$ (либо нитридов $(U,Pu)N$, карбидов $(U,Pu)C$, смешанных оксидов $(Th,U)O_2$, фторидов $UF_4-(U,Pu)F_3$) ; 2 – прокладки из молибдена изотопического состава $^{92,94}Mo$ или $^{98,100}Mo$; 3 – оболочка твэла

В сердечнике по рис. 1 могут использоваться любые совместимые с молибденом топливные фазы: оксиды $(U,Pu)O_2$ или $(Th,U)O_2$, нитриды $(U,Pu)N$ или карбиды $(U,Pu)C$. В некоторых приложениях, например для дожигания малых актиноидов, может использоваться топливо на основе фторидов $UF_4-(U,Pu,Am,...)F_3$.

Таблица 1. Распространенность изотопов Мо, сечения тепловых нейтронов $\sigma(n,\gamma)$ и резонансные интегралы I_γ [9,10]

Изотоп Мо	доля, ат. %	$\sigma(n,\gamma), 10^{-28} \text{ м}^2$	I_γ , барн	примечание
92	14.80	0.019	0.8537	$Mo^{93} \rightarrow Nb^{93} : \varepsilon, E_\gamma < 30 \text{ кэВ}$
94	9.30	0.015	(<1.0 ?)	
95	15.90	14.0	110.2–118.0	
96	16.70	0.5	17.0	
97	9.60	2.1	17.0	
98	21.40	0.130	6.9	
100	9.60	0.199	3.87	

Анализ нового топлива следует начинать с простейших вариантов, поэтому в данном разделе рассмотрены служебные характеристики “консервативного” топлива, выполненного на основе оксидов $(U,Pu)O_2$. По стоимостным соображениям (см. раздел 4) практический интерес имеют сердечники с объемной долей молибдена в топливе 10–20 %. Например, возможен выбор толщины таблеток 2 мм или 3 мм при толщине прокладок 0.22–0.50 мм или 0.33–0.75 мм. Диаметр сердечника может быть выбран в интервале величин 10–15 мм.

При 1000 К табличные теплопроводности λ_{Mo} и λ_{UO_2} молибдена и смешанного оксидного топлива отличаются в ~ 28 раз ($\lambda_{Mo}=112 \text{ Вт/(м К)}$, $\lambda_{UO_2} \leq 4 \text{ Вт/(м К)}$) [3,4,9]). В приближении

тонкой таблетки эффективная радиальная теплопроводность λ^{eff} топлива, показанного на рис. 1, пропорциональна объемным долям компонентов. Пусть $0,1 < f < 0,2$ – объемная доля молибдена в композитном топливе по рис. 1. В приближении тонкой таблетки радиальная теплопроводность λ^{eff} выражается формулой :

$$\lambda^{\text{eff}} \equiv \lambda^{\text{eff}}(f) \cong f \cdot \lambda_{\text{Mo}} + (1-f) \cdot \lambda_{\text{UO}_2} \quad (1)$$

Численно, в интервале объемных долей молибдена $0,1 < f < 0,2$ при 1000 К выполнено

$$\lambda^{\text{eff}}(0.1) \approx 15 \text{ Вт/(м К)}, \lambda^{\text{eff}}(0.15) \approx 20 \text{ Вт/(м К)}, \lambda^{\text{eff}}(0.2) \approx 25 \text{ Вт/(м К)}.$$

Очевидно, молибденовые прокладки придают оксидному топливу по рис. 1 исключительно высокую теплопроводность. Это позволяет увеличить диаметр твэла, сохраняя величину удельной тепловой нагрузки на топливо на обычном уровне $\sim 50\text{--}100$ Вт/г [3,4]. Перепад температур ΔT между осью и периферией топливного сердечника оценивается по известной формуле

$$\Delta T = \frac{dW/dl}{4\pi \lambda^{\text{eff}}} \quad , \quad (2)$$

где dW/dl – линейная тепловая нагрузка на твэл. В проектах коммерческих быстрых реакторов может приниматься линейная нагрузка $dW/dl \approx 500$ Вт/см. При указанном выборе и объемной доле молибдена в топливе $f = 0.10, 0.15$ и 0.20 перепад ΔT температур между осью и периферией сердечника с оксидными таблетками не превышает $\Delta T \approx 280$ К, 210 К и 170 К.

Из приведенных оценок следует, что при обычно принимаемой линейной нагрузке на твэл композитное топливо остается “холодным” даже в варианте, когда таблетки 1 (рис. 1) выполнены из оксидов (U,Pu)O₂. Пусть, например, температура горячего пятна оболочки достигает ~ 600 °С и используется гелиевый подслои. При гелиевом подслое скачок температуры в зазоре оболочка–сердечник имеет типичную величину ~ 150 °С [4]. Таким образом, температура на оси оксидных таблеток не превышает 950 °С при объемной доле молибдена в топливе $f = 0.15$ или $f = 0.2$.

Известно, что оксидное топливо, работающее при температурах до ~ 1000 °С, удерживает газообразные продукты деления до выгораний $\sim 7\%$ FIMA (см. [3], рис. 1.22, поз. 11). Следовательно, композитное топливо, выполненное по рис. 1 на основе оксидных фаз, по теплопроводности выше, а по удержанию газов практически эквивалентно нитриднему топливу, которое способно удерживать газы до выгораний $\sim 8\%$ FIMA. Изложенные оценки подводят к первому неожиданному выводу: композитное топливо рис. 1 с оксидными топливными таблетками, по видимому, хорошо вписывается в схему быстрого реактора и способно заменить стандартное нитридное таблеточное топливо.

3 Регенерация конструкционного молибдена

Сплавы на основе молибдена изотопного состава $^{92,94}\text{Mo}$ или $^{98,100}\text{Mo}$ имеют высокую стоимость (см. раздел 4), поэтому применение подобных материалов для создания композитного топлива по рис. 1 предполагает его рецикл и малые потери в ходе кампании или регенерации топлива. Потери изотопов молибдена, применяемых в конструкции композитных сердечников с оксидными таблетками, могут возникать в кампании вследствие окисления прокладок. Однако, осколочный молибден блокирует этот эффект. Действительно, при малых выгораниях топлива (U,Pu)O₂ осколочный молибден входит в мелкодисперсные внутризеренные и зернограничные включения металлической фазы. В ходе кампании кислородный потенциал топлива

возрастает, и часть осколочного молибдена переходит в оксидные формы. Таким образом, осколочный молибден служит геттером и защищает молибденовые прокладки от окисления.

При регенерации оксидного топлива в ходе головной операции таблетки растворяют в азотной кислоте. Чтобы исключить растворение прокладок и потери изотопов молибдена, в [1] предложено выполнять на прокладках 2 тонкие покрытия из хрома, устойчивого в азотной кислоте. Головную операцию можно организовать следующим образом. Отработавшее топливо загружается в решетку, выполненную из коррозионностойкого материала, и подвергается растворению в азотной кислоте. После растворения топлива прокладки остаются в решетке и в виде цельных деталей выводятся в отдельный технологический поток. Мелкодисперсный осколочный молибден уходит в раствор, что исключает перемешивание осколочного и “конструкционного” молибдена. Таким образом, топливо с оксидными таблетками по рис. 1 легко вписывается в известные схемы переработки оксидного топлива, его конструкция позволяет организовать рецикл изотопов молибдена, избегая их потерь и загрязнений осколочным молибденом.

При сборке твэла дистанционными методами, отделенные от раствора и не имеющие дефектов молибденовые детали можно отжечь, восстановить хромовый защитный слой и использовать повторно. Кроме того, имеющиеся технологии позволяют провести регенерацию постреакторного молибдена с глубокой очисткой по активирующим примесям (остаточные актиноиды, Tc и легирующие). Молибденовые детали можно фторировать до MoF_6 и провести ректификационную очистку гексафторида молибдена. Далее MoF_6 восстанавливается до металла. При ректификационной очистке MoF_6 по примесям (например, TcF_6) достигнуты коэффициенты очистки порядка $\sim 10^8$ [11]. Поэтому активность MoF_6 после ректификационной очистки фактически определяется собственной активностью молибдена.

Важной характеристикой технологии регенерации является радиационная обстановка на рабочих участках. Собственную активность постреакторного молибдена после выдержки в течение ~ 1 года и удаления примесных элементов определяет единственный долгоживущий изотоп молибдена ^{93}Mo [9]. Ядро ^{93}Mo претерпевает электронный захват, ведущий в основное состояние ядра Nb^{93} , либо в изомерное состояние Nb^{93m} со временем жизни $\tau_{1/2} = 13,6$ лет и энергией уровня 29 кэВ. При изомерном переходе 29 кэВ $\text{Nb}^{93m} \rightarrow \text{Nb}^{93}$ излучается оже-электрон, выход гамма-квантов 29 кэВ сильно подавлен. Ядерные переходы $\text{Mo}^{93} \rightarrow \text{Nb}^{93}$ или $\text{Mo}^{93} \rightarrow \text{Nb}^{93m}$ сопровождаются перестройкой электронных оболочек атома Nb и рентгеновским излучением с границей спектра ~ 19 кэВ [12]. По приведенным данным, активность регенерированного молибдена практически исчерпывается рентгеновским излучением с границей спектра 19 кэВ, защита от которого требует тонких экранов [12]. Следовательно, радиационную обстановку на участке работы с регенерированным молибденом можно считать несложной.

Изложенные материалы показывают, что имеющиеся технологии позволяют после сравнительно короткой выдержки провести рецикл постреакторного молибдена. Очевидно, что именно рецикл делает возможным применение “конструкционного молибдена” в промышленных масштабах. Следует отметить, что эффективная стоимость изотопов Mo, циркулирующих в замкнутом топливном цикле, приближается к затратам на рецикл, которые существенно ниже, чем стоимость получения изотопов. В целом, предложенная в [1] конструкция композитного топливного сердечника (рис. 1) с оксидами $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ не сталкивается с нерешенными технологическими проблемами фабрики или регенерации топлива.

4 Стоимость изотопов молибдена

Чтобы получить нужные нейтронные характеристики “конструкционного молибдена”, суммарное содержание изотопов $\text{Mo}^{92,94}$ или $\text{Mo}^{98,100}$ в этом материале следует довести до уровня $\sim 90 - 95\%$. В настоящее время изотопы молибдена можно получать на газовых центрифугах исходя из MoF_6 , то есть тем же методом, по которому проводят обогащение урана [13]. Так как доля нейтронпрозрачных изотопов $\text{Mo}^{92,94}$ или $\text{Mo}^{98,100}$ в природном молибдене в 30–40 раз выше распространенности U^{235} (0.72% [9]), то при сопоставимых масштабах производства стоимость целевых нейтронпрозрачных изотопов молибдена может быть по крайней мере в 30 раз ниже стоимости эквимольных количеств высокообогащенного U^{235} .

При упрощенных оценках стоимости изотопов молибдена, например смеси изотопов $^{98,100}\text{Mo}$, природный молибден (см. табл. 1) можно моделировать как бинарную смесь, состоящую из модельных изотопов “ ^{95}Mo ” и “ ^{99}Mo ” с содержанием первого и второго 75 и 25 ат. %. Калибровку цены ЕРР удобно проводить по урану, принимая эквивалентность 1 кг обогащенного урана и 4,2 моля обогащенного молибдена, то есть эквимольных количеств двух элементов. Опорной величиной служит работа (стоимость) разделения изотопов урана с теми же концентрациями целевого изотопа на входе и выходах каскада центрифуг. Затраты в единицах ЕРР в гипотетическом процессе получения концентрата изотопа ^{235}U при атомной доле ^{235}U в продукте, сырье и отвале z_p , z_f и z_w оцениваются по формуле [13]:

$$\Delta U = P \cdot (2z_p - 1) \ln\left(\frac{z_p}{1 - z_p}\right) + W \cdot (2z_w - 1) \ln\left(\frac{z_w}{1 - z_w}\right) - F \cdot (2z_f - 1) \ln\left(\frac{z_f}{1 - z_f}\right), \quad (3)$$

где P , F и W – масса целевого продукта, использованного сырья и отвального урана. Расчет по формуле (3) (при заданных величинах $z_p = 0,95$, $z_w = 0,05$, $z_f = 0,25$ и $P = 1$ кг) показывает, что в данной задаче получение 1 кг обогащенного урана требует ~ 16 ЕРР, в отвал уходит ~ 3 кг урана, расход сырья составляет ~ 4 кг/кг целевого обогащенного урана.

При оценке затрат на получение 4,2 моля изотопной смеси $^{98,100}\text{Mo}$, обогащенной по сумме изотопов $^{98,100}\text{Mo}$ до уровня $\sim 95\%$, учитывается выигрыш при переходе от UF_6 к MoF_6 .

Во-первых, разность $\Delta\mu$ масс модельных изотопов (отвального “ ^{95}Mo ” и целевого “ ^{99}Mo ”) равна $\Delta\mu = 4$ вместо $\Delta\mu = 3$ в задаче разделения изотопов урана. Кроме того, имеется технический эффект, обусловленный различием молекулярных масс UF_6 ($\mu \cong 342$) и MoF_6 ($\mu \cong 210$). По литературным данным, при переводе центрифуги с UF_6 на MoF_6 при неизменном $\Delta\mu$ ее разделительная мощность возрастает примерно в 1,5 раза (см. [14], с. 155 – 168, рис. 5.5.1). С учетом указанных факторов для затрат на получение изотопов $^{98,100}\text{Mo}$ (при суммарной доле целевых изотопов в продукте 95 % и доле целевых изотопов в отвале 5%) следует оценка:

$$\Delta U = 5 - 6 \text{ ЕРР} / (4,2 \text{ мол. целевого } ^{98,100}\text{Mo}) .$$

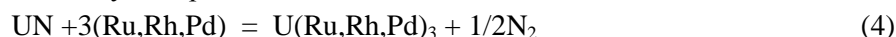
В конструкции сердечника (рис. 1) на 1 кг топливных оксидов ($\sim 96 \text{ см}^3$ топлива) при объемной доле молибдена $f = 0,10, 0,15$ и $0,20$ заложено $\sim 11, 20$ и 24 см^3 молибдена, что эквивалентно $\sim 1, 2$ и $2,5$ молям смеси изотопов $^{98,100}\text{Mo}$. Следовательно, в вариантах объемной доли молибдена в топливе $f = 0,10, 0,15$ и $0,20$ удельные затраты на производство изотопов молибдена могут достигать $\sim 1,5 \text{ ЕРР}$, $\sim 3 \text{ ЕРР}$ и $\sim 4,5 \text{ ЕРР} / (\text{кг топл. окс.})$. Для сравнения, затраты на получении 1 кг слабообогащенного 3,3 % – го урана для топлива энергетических медленных реакторов составляют 5 ЕРР/кг [18].

Таким образом, можно сделать второй неожиданный вывод: удельные затраты на изотопы молибдена для композитного топлива первой загрузки (ЕРР/(кГ композита)) примерно равны затратам (ЕРР/кг) на получение слабообогатенного урана для топлива медленных реакторов. Рецикл конструкционного молибдена снижает эффективную стоимость применяемых изотопов молибдена, вероятно, на порядок или больше.

5 Регенерация нитридного композитного топлива

В данном разделе рассмотрена регенерация композитного топлива (рис. 1) с нитридными таблетками. При анализе рецикла конструкционного молибдена необходимо: 1 – оценить возможность рецикла и 2 – отследить его потери изотопов в кампании и в ходе регенерации.

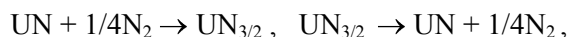
Потери изотопов молибдена в кампании. Если нитридное топливо дефицитно по азоту, то возможны потери изотопов молибдена из-за реакций прокладок 2 (рис. 1) со свободным или почти свободным ураном топлива с образованием взаимных растворов Мо и U или интерметаллида U_2Mo . Кроме того, теоретически возможно перемешивание осколочного и конструкционного молибдена, что увеличило бы затраты на рецикл. Однако в ходе кампании показатель стехиометрии x топлива $(U,Pu)N_{1+x}$ возрастает так как при делении 100 т.я. образуется менее 100 ядер нитридообразующих элементов Y,Zr,Nb,RE. Кроме того, как отмечено в [7], осколочные металлы Ru,Rh,Pd энергично вытесняют азот из нитридов $(U,Pu)N$ по реакции, равновесие которой сильно сдвинуто вправо :



Последние измерения термодинамических потенциалов реакции (4) опубликованы в [16]. Таким образом, топливо $(U,Pu)N_{1+x}$ остается в ходе кампании избыточным по азоту, что блокирует реакции конструкционного молибдена и топлива.

Головная операция регенерации нитридного топлива. В некоторых схемах регенерации нитридного топлива головная операция состоит в растворении нитридных таблеток в азотной кислоте (см. например [15]). Для композитного нитридного топлива (рис. 1) эту операцию удобно организовать по схеме раздела 3, которая позволяет разделить топливо и конструкционный молибден и направить эти компоненты в разные технологические цепочки.

Однако при переработке нитридного топлива более естественно применить бескислородные технологии. В голове технологической цепочки можно использовать химическое диспергирование топлива. В данном варианте композитное топливо загружается в корзину с решетчатым дном. Проводится азотирование – деазотирование топлива по реакциям [3] :



которые превращают топливо в порошок и не затрагивают молибден. Топливный порошок вместе с осколочным молибденом отсеивается и передается на следующие операции, тогда как задержанные на решетке молибденовые детали выводятся в собственный цикл регенерации, рассмотренный в разделе 3.

Возможен также “мокрый” вариант разделения топлива и молибдена в ходе электрохимического передела отработавшего нитридного топлива или в рамках “фторидной схемы”, основанной на фторировании нитридов во фторидных расплавах. В первом случае таблетки загружают в анодную корзину электролизера с ванной на основе жидкой эвтектики LiCl–KCl и проводят анодное растворение таблеток, получая топливный сплав в виде катодного осадка. При прове-

дении этой операции детали из инертного молибдена остаются в анодной корзине и далее передаются в собственный технологический поток (см. раздел 3). Осколочный молибден в виде взвеси мелкодисперсных частиц переходит в солевую ванну электролизера.

Таким образом, композитное топливо (рис. 1) на основе нитридов легко вписывается в основные схемы переработки нитридного топлива и не ставит дополнительных проблем. Структура топлива позволяет организовать рецикл конструкционного молибдена, избегая потерь изотопов либо их загрязнения осколочным молибденом.

6 Фрагментация композитного нитридного топлива

Подробные данные о поведении таблеток, выполненных из смешанных нитридов (U,Pu)N, в кампаниях с выгоранием 5 – 10 % FIMA опубликованы в работах [5,6]. В этих работах испытывались нитридные таблетки плотностью 85 % т. п. в твэлах с гелиевым зазором. Для нитридных таблеток характерно образование клиновидных радиальных трещин, а также корреляция газовой выделения и изменений пористости с локальной температурой (рис. 2).

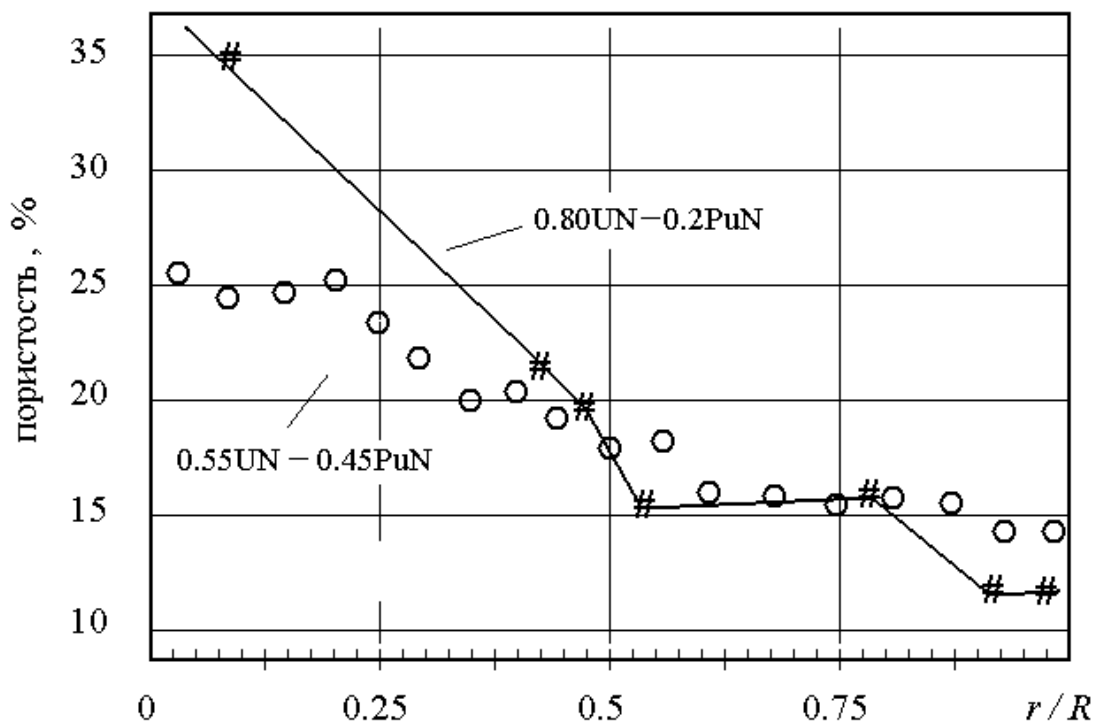


Рис. 2. Распределение пористости по радиусу в нитридном топливе после кампании с выгоранием ~ 5% и ~ 8% FIMA. R и r – радиус таблетки и расстояние от оси твэла ;

0 0 0 : топливо $(U_{0.55}Pu_{0.45})N$ работы [5]; гелиевый зазор; линейная нагрузка ~ 50 кВт/м; выгорание ~ 8 – 12 % FIMA;

— # — # : топливо $(U_{0.8}Pu_{0.2})N$ работы [6]; гелиевый зазор, линейная нагрузка ~ 75 кВт/м, выгорание ~ 4.5 % FIMA

В работе [5] изучалось топливо $(U_{0.55}Pu_{0.45})N$ и $(U_{0.4}Pu_{0.6})N$. В центральной части облученных таблеток при выгораниях ~ 8% FIMA пористость выросла от исходной 15 % до ~ 30 % (рис. 2). Выход газов в центральной области составил 40 % . При этом давление под оболочкой твэла выросло до 4 МПа. В то же время в периферической кольцевой области, расположенной

между $1/2$ и 1 радиуса таблетки, локальная пористость таблетки не изменилась, а удержание газов составило почти 100%. Таким образом, наблюдается быстрое распухание сердцевинки таблетки и медленное, с сохранением исходной пористости, однородное распухание периферической кольцевой части. На фотографиях поперечных разрезов твэла, представленных в [5] и [6] видно, что неоднородное распухание приводит к появлению в таблетке радиальных клиновидных, расширенных к краю таблетки трещин. Температурная история таблеток, приведенная в [5], показывает, что периферическая область $1/2 < r/R < 1$ большую часть времени находилась при температурах ниже $900\text{ }^{\circ}\text{C}$.

В работе [6] было найдено, что фрагментация таблетки сопровождается смещениями фрагментов, что приводит к искажениям исходной цилиндрической формы оболочки твэла. Согласно данным [6], распределение пористости по радиусу в таблетке $(\text{U}_{0,8}, \text{Pu}_{0,2})\text{N}$, прошедшей кампанию с выгоранием $\sim 4.5\%$ FIMA, весьма близко к найденному в работе [5]. Характерно, что в кольцевой области от $1/2 < r/R < 1$ величина пористости в ходе кампании не изменилась, тогда как на участке $0 < r/R < 1/2$ пористость выросла и достигла величины $\sim 40\%$ в центре таблетки (при исходной пористости 15%).

Различия в скорости распухания в центральной и периферической части таблетки объясняются наличием двух релаксационных механизмов в облучаемом топливе: 1 – обычные зависящие от температуры термодиффузия и терморелаксация механических напряжений; 2 – радиационная диффузия и радиационная ползучесть, которые слабо зависят от температуры. Опытные данные для ползучести под напряжением для оксидных и нитридных топлив показаны на рис. 3 на с. 14 (см. [4], фиг. 7.33 и 7.34), где приведены температурные кривые ползучести $\dot{\epsilon}$ при вне реакторных (семейство линий 1) и реакторных (семейство линий 2) испытаниях. Разброс линий 1 или 2 на рис. 3, описывающих величины $\dot{\epsilon}$ для UO_2 и UN , обусловлен различным содержанием примесей в топливных фазах. Линии 2 описывают результаты измерений радиационной ползучести для оксидных и нитридных таблеток при реакторных испытаниях с нагрузками образцов ~ 20 МПа.

Из рис. 3 ясно, что в задачах с нитридным топливом ниже некоторой пороговой температуры T^* можно пренебрегать вкладом тепловых эффектов в ползучесть. Если температура на оси таблетки меньше пороговой величины T^* , то распухание топлива и газовыделение определяются только радиационной диффузией и радиационной ползучестью и поэтому имеют квазиоднородный по радиусу таблетки характер. Температурная история таблеток, приведенная в [5], позволяет указать численное значение пороговой температуры $T^* \sim 1200\text{ K}$ ($900\text{ }^{\circ}\text{C}$), которая примерно совпадает с величиной T^* , полученной из графиков рис. 3.

Приведенный обзор экспериментальных данных позволяет предсказать поведение нитридной таблетки, работающей в композитном сердечнике рис. 1. При объемной доле молибдена в топливе $f = 0.2$ радиальная теплопроводность композитного топлива с нитридными таблетками достигает $40\text{ Вт}/(\text{м}\cdot\text{К})$ при 1000 K (см. формулу (1)). Оценка с помощью формулы (2) показывает, что при предельной линейной нагрузке на твэл $\sim 75\text{ кВт}/\text{м}$ перепад температур между осью и периферией таблетки не превышает $\sim 150\text{ K}$. Таким образом, в режимах с температурой горячего пятна оболочки твэла $600 - 650\text{ }^{\circ}\text{C}$ и при использовании натриевого подслоя температура на оси сердечника не превышает пороговой температуры $T^* \sim 900\text{ }^{\circ}\text{C}$. Приведенные оценки показывают, что при обычно принимаемой тепловой нагрузке на топливо быстрого реактора возможен выбор конструктивных параметров сердечника по рис. 1, обеспечивающих квазиод-

нородное по радиусу распухание нитридной таблетки. При этом исключено расклинивание таблетки сердцевинной, вследствие чего характерные клиновидные трещины не образуются.

Далее, молибденовые прокладки 2 блокирует эффекты, следующие за фрагментацией, которая проходит иначе, чем на обычных таблетках. Как видно из рис. 1, таблетка зажата между прокладками 2. При появлении в тонкой таблетке трещин прокладки 2 удерживают образующиеся фрагменты и исключают их смещение. Таким образом, в конструкции топлива по рис.1 минимизированы последствия неизбежной фрагментации нитридной таблетки. Дефекты таблетки, работающей в композитном сердечнике (рис. 1) сводятся к появлению микротрещин и, возможно, генерации мелких осколков на ободках таблеток. После появления трещины последующее радиационное распухание фрагментов сближает ее края, причем возможно “залечивание” трещин.

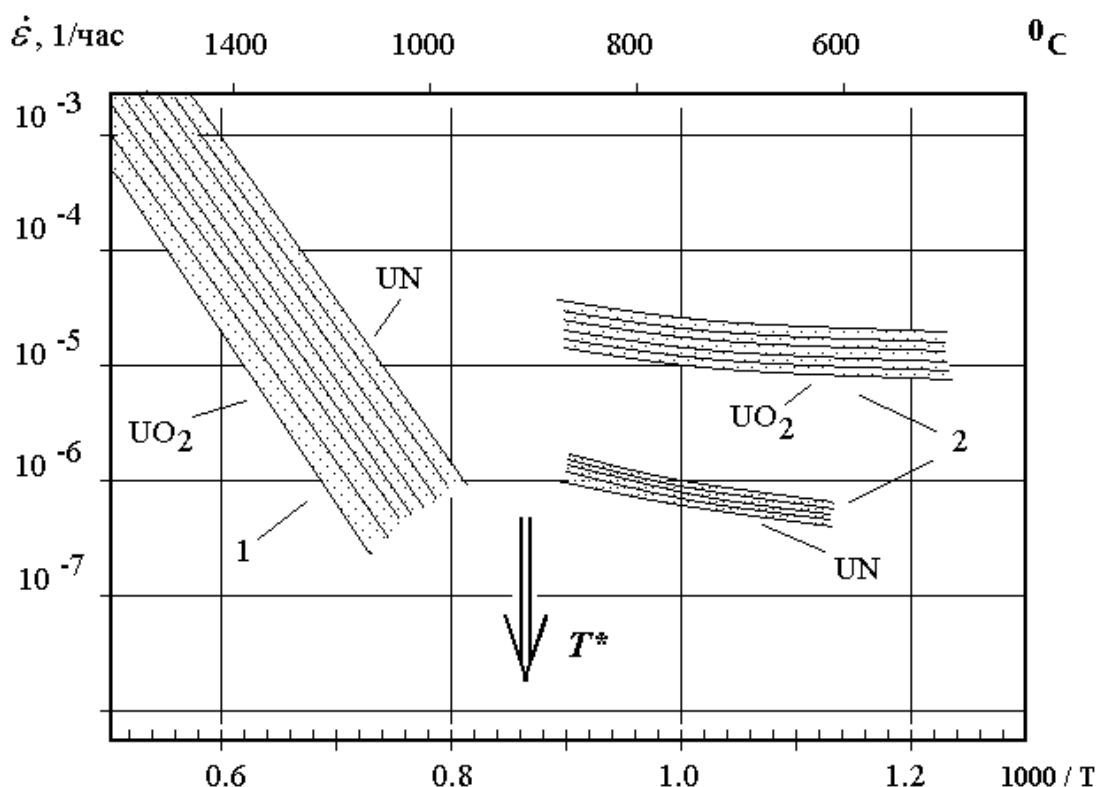


Рис. 3. Ползучесть под напряжением $\dot{\epsilon}$: 1 – вне реакторные испытания оксидных и нитридных топлив при нагрузках 20 – 40 МПа; 2 – реакторные испытания нитридных и оксидных фаз при нагрузке 20 МПа; T^* – пороговая температура для нитридного топлива.

7 Стоимость композитного нитридного топлива

Затраты на нейтронопрозрачный молибден для композитного топлива с нитридами меньше, чем для топлива на основе оксидов. Это обусловлено более высокими относительно $(U,Pu)O_2$ теплопроводностью и плотностью нитридов $(U,Pu)N$. При 1000 К плотные смешанные топливные нитриды имеют теплопроводность $\lambda_{(U,Pu)N} \approx 17$ Вт/(м·К) [3,4]. Сердечник, выполненный по рис. 1 на основе нитридов при объемной доле f молибденовых прокладок $f = 0.1$ и $f = 0.2$, имеет расчетную радиальную теплопроводность $\lambda^{eff} = 29$ Вт/(м·К) и 40 Вт/(м·К) .

При обычной плотности нитридной таблетки $\sim 13 \text{ Г/см}^3$ 1 кг топлива (U,Pu)N занимает объем $\sim 77 \text{ см}^3$. Поэтому в конструкции топлива по рис. 1 на основе нитридов при объемной доле молибденовых прокладок $f = 0.2$ расход изотопов молибдена составляет $\sim 19 \text{ см}^3/(\text{кг UN})$, что соответствует ~ 2 молям изотопов $^{98,100}\text{Mo}$. По оценкам раздела 4, получение 2 молей высокообогащенной смеси изотопов $^{98,100}\text{Mo}$ требует от 2 до 3 ЕРР. Таким образом, отнесенные к 1 кг топливных нитридов удельные расходы на производство изотопов молибдена для композитного нитридного топлива первой загрузки (рис. 1) несколько меньше, чем затраты на 1 кг обогащение урана для производства 3% – го топлива медленных реакторов [17].

8 Обсуждение

Металлический молибден изотопного состава $^{92,94}\text{Mo}$ или $^{98,100}\text{Mo}$ относится к нейтронопрозрачным материалам (с. 9, табл. 1) и имеет технологические и физико-химические характеристики уникального конструкционного материала активной зоны. К их числу относится возможность проводить рецикл облученного молибдена после выдержки ~ 1 год. Анализ возможностей, связанных с использованием нейтронопрозрачного молибдена, приводит к конструкции топлива, показанной на рис. 1. Ценность этой конструкции состоит в том, что уже в простейшей версии композитного топлива (рис. 1) в значительной мере нейтрализованы эффекты фрагментации нитридных таблеток. Однако в версии, показанной на рис. 1, попрежнему возможно образование мелких осколков и их появление в зазоре между таблеткой и оболочкой твэла, что создает недопустимо высокую вероятность повреждения оболочки.

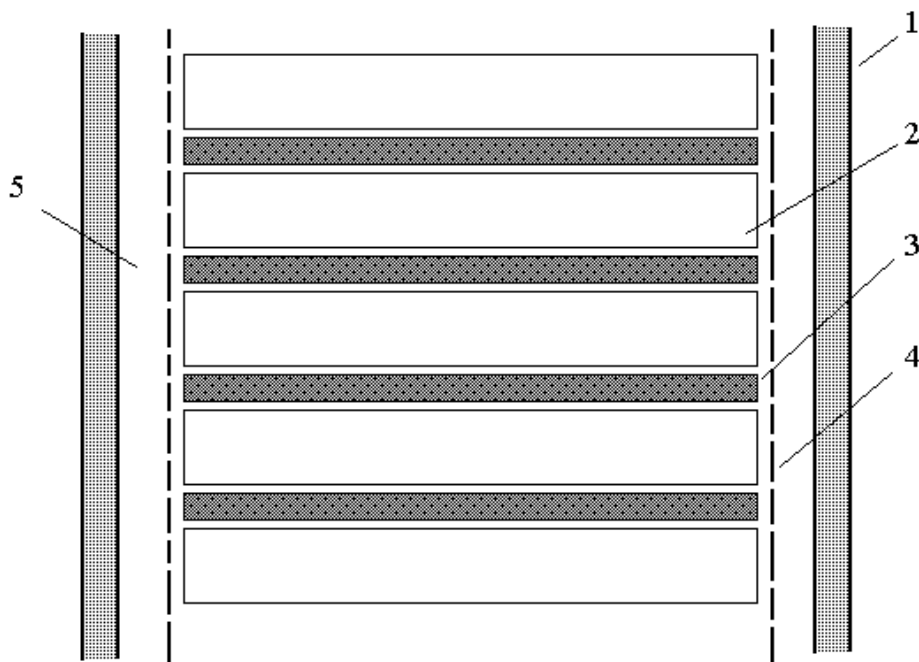


Рис. 4. Вариант конструкции сердечника с вспомогательной оболочкой 4.

Работоспособная версия твэла с нитридными таблетками показана на рис. 4, где 1 – оболочка твэла, 2 – нитридная таблетка, 3 – молибденовая прокладка, 4 – вспомогательная оболочка, прилегающая к топливу, 5 – зазор, заполняемый натрием. Специфический элемент конструкции (оболочка 4) впервые описан в работе [7]. Конструкция твэла по рис. 4 следует работе [7],

однако вместо нитридных таблеток используются композитные топливные сердечники на основе нитридов, предложенные в [1].

Элементы твэла, показанного на рис. 4, выполняют специализированные функции. Оболочка 1 служит несущим элементом, играет роль контейнера для топливных таблеток и удерживает газообразные продукты деления в объеме твэла. Оболочка 1 не контактирует с таблеткой и не нагружается при распухании топлива. Молибденовые прокладки 3 обеспечивают высокую радиальную теплопроводность сердечника. В разделах 2, 4 и 6 показано, что реализуемо композитное топливо по рис. 1 с нитридными таблетками, в котором (при обычной линейной нагрузке на твэл $\sim 500\text{--}750$ Вт/см) температура на оси таблетки не превышает 900 °С. При этом прокладки 3 обеспечивают квазиоднородное по радиусу распухание таблеток, что исключает появление клиновидных радиальных трещин (известно, что контакт широкой трещины и оболочки создает риск повреждений оболочки). Кроме того, прокладки 3 фиксируют крупные фрагменты таблетки и предотвращают их сдвиг. В итоге, конструкция топлива по рис. 1 позволяет подавить наиболее опасные механизмы повреждений твэла с нитридными таблетками. Наконец, облегающая оболочка 4 (“shroud tube” работы [7]) выполняет важнейшую функцию – удерживает мелкие осколки, возникающих на краях таблеток, от попадания в зазор 5.

Можно видеть, что конструкция топлива, показанная рис. 4, позволяет блокировать все известные факторы повреждения оболочек твэлов с нитридными таблетками. Это делает рассмотренное топливо интересным для проекта реактора БРЕСТ.

Можно отметить, что разделение функций по элементам упрощает проблему выбора материала. Наиболее критичен выбор пластичного материала для оболочки 4, которая работает при $450\text{--}650$ °С и должна оставаться цельной при уровне выгорания $\sim 8\%$ FIMA, заложенного в проекте реактора БРЕСТ. Данному выгоранию отвечает увеличение объема нитридной таблетки на $10\text{--}12\%$ [3], поэтому оболочка 4 должна оставаться цельной при растяжении $\sim 5\%$.

По литературным данным, имеется несколько кандидатных материалов, достаточно пластичных в указанных условиях, например: сплав Ti–15V–5Cr (см. [4], рис. 15.25), чистое железо, а также сталь ЭП–823. По данным работы [19], сталь ЭП–823 после облучения до дозы 10 дпа при $450\text{--}500$ °С и испытаниях в температурном интервале $300\text{--}600$ °С обладает однородным удлинением $\Delta l/l = 8\text{--}10\%$. По данным работы [20], образцы чистого железа, облученные до 70 дпа при температурах $400\text{--}700$ °С, выдерживают полное удлинение $10\text{--}18\%$. Таким образом, чулок 4 можно выполнить из чистого железа или стали ЭП–823. При данном выборе для заполнения теплового зазора можно использовать натрий, совместимый со сплавами на основе железа.

Неожиданно и весьма интересно, что по схеме рис. 1 или рис. 4 можно выполнить “консервативное” топливо с оксидными таблетками, которое имеет набор непривычных характеристик. Это топливо при уровне тепловых нагрузок, характерных для быстрого реактора, вследствие высокой теплопроводности (~ 25 Вт/(м К)) остается холодным и поэтому хорошо удерживает газы. В целом, можно предположить, что композитное топливо работы [1] с оксидными таблетками хорошо вписывается в схему быстрого реактора. Обзор технологий показывает, что главные стадии топливного цикла для топлива рис. 1 или рис. 4 с оксидными таблетками (получение изотопов молибдена и их рецикл, регенерация топлива, фабрикация таблеток из регенерированных материалов) хорошо изучены и известны в промышленных вариантах. Последнее можно рассматривать как аргумент в пользу консервативного топлива.

Оксидное топливо инертно и при работе в свинцовом реакторе не ставит проблем, связанных с гипотетическими реакциями между топливом и теплоносителем при перегреве активной зоны в ходе тяжелой аварии. С этой точки зрения, применение композитного топлива с оксидными таблетками в коммерческом энергетическом реакторе допустимо и желательно. Предложенное в [1] топливо, повидимому, расширяет круг кандидатных топлив для реактора БРЕСТ. Новое нитридное или оксидное композитное топливо можно рассматривать как предметный ответ на часть критики реактора БРЕСТ, изложенной в обзорах [21,22].

Анализ выявляет другие возможности топлива, предложенного в [1]. Реализуемо композитное топливо на основе оксидов с эффективной радиальной теплопроводностью ~ 25 Вт/(м К) (см. раздел 2). Оксидное топливо с теплопроводностью такого уровня при работе в медленном реакторе заведомо остается “холодным” и удерживает газы до выгораний $\sim 7\%$ FIMA. Возможно, композитное топливо (рис. 1) с оксидными таблетками дает решение задачи по продлению кампании медленных энергетических реакторов до выгораний $\sim 7\%$ FIMA.

Следует допустить наличие эффектов, способных изменить ожидаемые характеристики топлива. Например, может произойти диффузионная сварка молибденовых прокладок и топливных таблеток, а затем разрывы прокладок при распухании таблеток. Данный пример показывает, что имеется ряд задач, связанных с материаловедением нового топлива. Следует провести выбор используемого сплава для “конструкционного молибдена” среди кандидатных сплавов, например Mo–Ru–C или TZM. Требуется изучение физико–химических задач нового топлива, включая выбор между свинцовым, натриевым и другими возможными вариантами подслоя. В целом, предложенную в [1] конструкцию топлива можно рассматривать как “затравочную”, доработка которой в духе рис. 4 может дать надежное топливо для реактора БРЕСТ.

Очевидно, что понимание рассмотренного композитного топлива остается ограниченным. Предложенное в [1] композитное топливо “холодное”, поэтому для него нужно заново исследовать нейтронные задачи, например, установить величину температурного коэффициента реактивности. Кроме того, введение в активную зону нейтронопрозрачного молибдена меняет картину упругого и неупругого рассеяния нейтронов, и это также нужно учесть при расчете активной зоны. Следует проверить численным расчетом параметры бридинга для нового топлива, включая консервативный вариант композитного топлива на основе оксидов $(U,Pu)O_2$. В части вариантов композитного топлива для замыкания топливного цикла может потребоваться некоторая подпитка обогащенным ураном или сторонним реакторным плутонием. Для подобных вариантов необходимо установить важнейший для ядерной энергетики параметр: долю добываемого урана, сжигаемого при использовании данного топлива.

Ряд интересных задач связан с получением изотопов молибдена. Теоретически, наряду с центрифужным можно использовать физико–химические методы, которые способны дать технологии исключительно дешевых изотопов молибдена. В первую очередь, интересны экстракционные схемы, основанные на использовании растворов двух солей Mo, в которых Mo имеет разные валентности. В задаче разделения изотопов молибдена выделены системы с некоторыми цианидами Mo ([18], табл. 4.1), поскольку в растворах изотопный обмен между цианидными комплексами может протекать с высокой скоростью по механизму электронного обмена. Известны цианиды молибдена для валентных состояний Mo^{2+} , Mo^{3+} , Mo^{4+} , Mo^{5+} (табл. 2).

Изотопический эффект в распределении изотопов молибдена между разными цианидами значителен, расчетный коэффициент распределения имеет величину $\alpha = 1,0075$ при разности масс изотопов $\Delta\mu = 1$ и разнице валентностей Mo в две единицы ([19], табл. 4.1). Например, в

гипотетической экстракционной схеме с рабочими ионами $\text{Mo}(\text{CN})_8^{2-}$ и $\text{Mo}(\text{CN})_8^{4-}$, используемой для разделения изотопов ^{95}Mo и ^{98}Mo , коэффициент обогащения достигает величины $\varepsilon = 0.021$. Приведенная оценка указывает на перспективность цианидных или иных экстракционных схем получения изотопов молибдена.

Таблица 2. Цианиды молибдена [23]

валентность	Mo^{2+}	Mo^{3+}	Mo^{4+}	Mo^{5+}
цианид	$\text{K}_5[\text{Mo}(\text{CN})_7]$	$\text{K}_2[\text{Mo}(\text{CN})_5]$	$\text{K}[\text{Mo}(\text{CN})_5]$	$\text{H}_3[\text{Mo}(\text{CN})_8] \cdot 6\text{H}_2\text{O}$
	$\text{K}_4[\text{Mo}(\text{CN})_6]$	$\text{K}_4[\text{Mo}(\text{CN})_7] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	$\text{H}_4[\text{Mo}(\text{CN})_8] \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	$\text{K}_3[\text{Mo}(\text{CN})_8]$
	$\text{K}_6[\text{Mo}(\text{CN})_8]$	$\text{K}_5[\text{Mo}(\text{CN})_8]$	$\text{K}_4[\text{Mo}(\text{CN})_8] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	$\text{K}_3[\text{Mo}(\text{CN})_8] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$

Обобщая изложенное, для рассмотренного топлива можно привести оценки практического плана. По изложенным материалам, новое топливо работы [1] вписывается в замкнутый топливный цикл быстрого энергетического реактора, при этом его расчетные стоимостные, технологические и служебные характеристики вполне удовлетворительны. Наиболее важный вывод состоит в том, что конструкция топливного сердечника, предложенная в [1], позволяет обойти фундаментальные недостатки нитридного топлива, обусловленные фрагментацией, и создать надежное нитридное топливо для быстрых реакторов. Эти оценки (работоспособность, технологичность и приемлимая стоимость) в первую очередь интересны в контексте проекта реактора БРЕСТ, поскольку надежность версии нитридного топлива, принятой в проекте БРЕСТ, остается недоказанной [2]. Поэтому появление нового топлива, надежность которого уверенно предсказывают теоретические модели, представляет несомненный интерес. Новое топливо может стать стандартным топливом быстрых реакторов либо использоваться в опытных реакторах как имитатор будущего работоспособного нитридного топлива. С этой точки зрения целесообразно провести детальное изучение топлива, предложенного в работе [1].

Неожиданный результат состоит в том, что новое композитное топливо можно выполнить в двух практически эквивалентных версиях – с оксидными или нитридными таблетками. Оба варианта топливного сердечника характеризуются весьма высокой радиальной теплопроводностью, на уровне металлических топлив. Как следствие, оптимизация композитных топливных сердечников и твэлов проводится в расширенной области допустимых параметров. В частности, возможен выбор твэла большого диаметра, например в интервале 10–15 мм.

Приведенные оценки имеют предварительный характер, поэтому нужен критический анализ нового топлива. Наиболее важно провести численное исследование нейтронных задач, относящихся к предложенному композитному топливу, а также стандартный расчет оптимального диаметра твэла.

Особняком стоит задача удешевить новое топливо за счет снижения стоимости используемых нейтронопрозрачных изотопов молибдена. В настоящее время изотопы молибдена можно нарабатывать весьма затратным центрифужным методом. В рамках задачи снижения стоимости топлива следует провести анализ кандидатных методов получения изотопов молибдена, потенциально способных дать технологии дешевых изотопов молибдена.

9 Литература

1. Большов Л.А., Солодов А.А. Патент РФ № 2419897 от 27.05.2011.
2. Троянов В.М., Лемехов В.В. Ядерное топливо для быстрых реакторов с естественной безопасностью, работающих в замкнутом топливном цикле. Проблемы выбора и обоснования. Материалы конференции: V Региональный форум “Атомные производства, общество, безопасность 2012”. Томск, 29 – 30 ноября 2012 года.
3. Котельников Р.Б., Башлыков С.Н., Каштанов А.И., Меньшикова Т.С. Высокотемпературное ядерное топливо. Изд 2-е – М.: Атомиздат, 1978.
4. Ма Б.М. Материалы ядерных энергетических установок. Пер. с англ. М.: Энергоатомиздат, 1987.
5. Rogozkin B.D., Stepennova N.M., Fedorov Y.E., Shishkov M.G., Kryukov E.M., Kuzmin S.V., Nikitin O.N., Beliaeva A.V., Zabudko L.M.. Results of mixed nitrides (45 % PuN + 55 % UN and 60 % PuN + 40 % UN) irradiation in BOR – 60 reactor up to around 12 at. %. In : Studies on fuels with low fission gas release. IAEA, Vienna, 1997. IAEA – TECDOC – 970 . October 1997, 161 – 171 pp.
6. Kosuke Tanaka, Koji Maeda, Koso Katsuyama, Masaki Inoue, Takashi Iwai, Yasuo Arai. Fission gas release and swelling in uranium – plutonium mixed nitride fuels // Journ. of Nucl. Mater. vol 327, 2004, 77 – 87 pp.
7. R. Bruce Matthews. Irradiation performance of nitride fuels, LA – UR 93 – 2392, 14 pp. Submitted to : “Specialist conference on space nuclear power and propulsion technologies – materials and fuels”. Podolsk – Moscow. Russia, September 21 – 24, 1993.
8. Patent US 3147192; patented sept. 1, 1964.
9. Физические величины. Справочник под редакцией И.С. Григорьева и Е.З. Мейлихова. М.: Энергоатомиздат, 1991.
10. JEF Report 14. Table of simple integral neutron cross section data from JEF–22, ENDF/B–III, JENDL–3.2, BROND–2, and CENDL–2, 1994, NEA, Paris: 1994. Organisation for economic cooperation and development.
11. Зуев В.А., Орехов В.Т. Гексафториды актиноидов. М.: Энергоатомиздат, 1991.
12. Блохин М.А., Швейцер И.Г. Рентгеноспектральный справочник. М.: Наука, 1982.
13. Сенченков А.П., Сенченков С.А., Борисевич В.Д. Газовые центрифуги. В кн.: Изотопы: свойства, получение, применения. В 2 т. под редакцией В.Ю. Баранова. М.: ФИЗМАТЛИТ. 2005. Т 1 , гл. 5, разд. 5.6 , 168 – 196 с.
14. А.К. Калитеевский, О.Н. Годисов, В.И. Сергеев. Общий подход к проблеме разработки технологии центробежного разделения стабильных изотопов. В кн.: Изотопы: свойства, получение, применения. В 2 т. Под редакцией В.Ю. Баранова. М.: ФИЗМАТЛИТ. 2005. – Т 1 , гл. 5, разд. 5.5 , 155 – 168 с. рис. 5.5.1.
15. Nadibi–Olschewsky N., Glatz J.–P., Boklund H., Leroy M.J.–F. // The fate of nitrogen upon reprocessing of nitride fuels. Journ. of Nucl. Mat. vol. 188, 1992, 244 – 248 p.
16. Cordfunke E.H.P., Konings R.J.M., Westrum E.F., jr. //Recent thermochemical research on reactor materials and fission products. Journ of Nucl. Mat. vol 167, 1989, 205 – 212 p.
17. Атомная промышленность зарубежных стран. Смирнов Ю.В. , Соколов Д.Д. и др. Под редакцией Круглова А.А. и Смирнова Ю.В. М.: Атомиздат, 1980.
18. Андреев Б.М., Зельвенский Я.Д., Катальников С.Г. Разделение стабильных изотопов физико – химическими методами. М.: Энергоатомиздат, 1982.

19. Иванов А.А., Шулепин С.В., Дворяшин А.М., Конобеев Ю.В., Иванов С.Н., Алексеев Ю.В., Поролло С.И. Структура и механические свойства стали ЭП – 823, 20Х12МН и опытных вариантов 12 % - ных хромистых сталей после облучения в реакторе БН – 350. ГНЦ РФ Физико – энергетический институт г. Обнинск. (www.ippe.ru/podr/ippe/1/ninf/8-09/8.pdf) .
20. Budylnin N.I., Mironova E.G., Chernov V.M., Krasnoselov V.A., Porollo S.L., Garner F.A. // Neutron – induced swelling and embrittlement of pure iron and pure nickel irradiated in the BN – 350 and BOR – 60 fast reactors. Journ of Nucl. Mat. vol 357, 2008, 359 – 364 p.
21. Allen T.R. and Crawford D.C. Lead – cooled fast reactor systems and the fuel and material challenges // Science and Technology of Nuclear Installations, volume 2007, Article ID 97486, 11 pages. doi: 10.1155/2007/97486 .
22. Khalil H., Lineberry M.J., Cahalan J.E., Willit J.L., Spencer B.W., Hayes S.L., Crawford D.C., Wade D.C. and Hill D.J.. Preliminary assessment of the BREST reactor design and fuel cycle concept // ANL – 00/22. 46 pp, may 2000.
23. Турова Н.Я. Неорганическая химия в таблицах. М.: Высший химический колледж Российской Академии Наук, 1999.