

ту. Математическая модель совершенствовалась при тесном сотрудничестве с В.П. Гариным, А.Н. Лупповым, А.Х. Муринсоном, большой вклад в разработку полномасштабного динамического имитатора и организацию испытаний системы автоматического регулирования внес М.Ю. Ермошин. Аппаратура систем автоматического управления и регулирования создавалась при многолетнем содружестве с С.Ф. Фараоновым и его сотрудниками из ГосНИИприборостроения, а также с коллективом СФТИ. Всем им авторы выражают глубокую признательность.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Концепция российской комплексной программы исследования и освоения Луны. Совместное заседание Президиума Научно-технического совета Госкорпорации «Роскосмос» и Бюро Совета Российской академии наук по космосу 28 ноября 2018 года. <http://sovet.cosmos.ru/sessions/2018-11-28>.
2. Колесников А.В. Испытания конструкций и систем космических аппаратов. М., МАИ, 2007.
3. Бугровский В.В., Винцевич Н.А., Вишнепольский И.М. и др. Основы автоматического управления ядерными космическими энергетическими установками. Под ред. Б.Н. Петрова. М.: Машиностроение, 1974.
4. Бугровский В.В., Жаров В.К., Ковачич Ю.В. и др. Информационно-управляющие системы космических энергетических установок. М.: Атомиздат, 1979.
5. Кухаркин Н.Е., Пономарев-Степной Н.Н., Усов В.А. Космическая ядерная энергетика (ядерные реакторы с термоэлектрическим и термоэмиссионным преобразованием «Ромашка» и «Енисей»). М.: ИздАТ, 2008.
6. Глушков Е.С., Кухаркин Н.Е., Пономарев-Степной Н.Н. и др. Исследование критических сборок с гидридным замедлителем к выбору структуры и характеристик реакторов для КЯЭУ. Тезисы докл. конф. «Ядерная энергетика в космосе». Обнинск, ФЭИ, 1990, с. 19—21.
7. Глушков Е.С., Кухаркин Н.Е., Пономарев-Степной Н.Н. и др. Выбор и отработка нейтронно-физических характеристик реактора-преобразователя для КЯЭУ с одноэлементными ТЭП. — Там же, с. 22—23.
8. Глушков Е.С., Кухаркин Н.Е., Скорлыгин В.В. и др. Разработка математической модели динамики нейтронно-физических и теплофизических процессов КЯЭУ с одноэлементными ТЭП. — Там же, с. 306—307.
9. Ермошин М.Ю., Луппов А.Н., Муринсон А.Х., Скорлыгин В.В. Математическая модель и программа расчета переходных режимов ядерной термоэмиссионной энергетической установки. — Там же, с. 318—320.
10. Кухаркин Н.Е., Скорлыгин В.В. Некоторые особенности построения математической модели динамики космической термоэмиссионной ядерной энергоустановки (на примере ЯЭУ «Енисей»). — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2016, вып. 6, с. 70—91.
11. Анненков М.Е., Ермошин М.Ю., Скорлыгин В.В. Имитатор ядерной энергетической установки и его реализация в виде параллельной программы на вычислительной сети. Тезисы докл. конф. «Ядерная энергетика в космосе». Обнинск, ФЭИ, 1990, с. 335.
12. Скорлыгин В.В. Применение вычислительных средств космического аппарата для управления ядерной энергетической установкой в аномальных ситуациях. — Там же, с. 336.
13. Herbert G., Day M. NEPSPT propulsion module design and flight test plans. — In: Proc. of 11th Symp. on Space Nuclear Power and Propulsion. US, DOE CONF-940101, 1994, v. 1, p. 253—263.
14. Reynolds E., Shaefer R., Polansky G., Bocharov A. Utilizing a Russian space nuclear reactor for a United States space mission: system integration issues. — Ibid., p. 265—275.
15. Voss S., Reynolds E. An Overview of the Nuclear Electric Propulsion Space Power Test Program (NEPSPT) Satellite. LA-UR-94-1688, 1994.
16. Ponomarev-Stepnoi N.N., Skorlygin V.V., Farafonov S.F. et al. TOPAZ-2 reactor control unit. — In: AIP Conf. Proc. 1995, v. 324, № 1, p. 543—548.

Поступила в Редакцию 4.06.19

УДК 621.039.543

ВЛИЯНИЕ СТРУКТУРНО-ФАЗОВОГО СОСТОЯНИЯ НИТРИДНОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА НА РЕСУРС ТВЭЛА

Кривов М.П., Киреев Г.А. (АО «ВНИИНМ», г. Москва), Тенишев А.В. (НИЯУ МИФИ, г. Москва)

e-mail: mpkrivov@mail.ru

Использование в быстрых реакторах типа БРЕСТ смешанного нитридного уран-плутониевого топлива высокой плотности и теплопроводности позволяет обеспечить его заданные

нейтронно-физические и теплогидравлические свойства. За счет высокой плотности $>12 \text{ г/см}^3$ достигаются КВА $\sim 1,06$ с отказом от уранового бланкета и возможность работы в равновесном

режиме с минимальным запасом реактивности. Низкая температура топлива способствует предотвращению перегрева и разрушения оболочек при аварийных потере охлаждения и вводе реактивности [1].

Несмотря на преимущества, нитридное топливо не лишено недостатков: высокая скорость распухания, низкая скорость ползучести, отсутствие химической инертности по отношению к кислороду и воде, наработка ^{14}C , высокие требования к чистоте по примесям (кислороду и углероду) и термохимическая нестабильность, в результате которой возможно разложение нитрида на металл соответствующего актиноида и азот [2]. Поэтому для использования нитридного топлива необходимо доказать, что его температура не будет превышать предел разложения или разложение не приведет к разгерметизации твэла. Также необходимо учесть, что в системе уран—азот четыре фазы нитридов урана, которые при нагреве в вакууме неустойчивы и диссоциируют, не достигая температуры плавления. При изготовлении мононитридного топлива на основе урана или уран-плутониевой смеси в конечном продукте может содержаться азот сверх стехиометрии [3]. Так как мононитриды урана и плутония являются стехиометрическими соединениями при комнатной температуре, то избыточный азот будет находиться в таблетке нитридного топлива в виде отдельных фаз высших нитридов урана, которые нерастворимы в смешанном нитридном уран-плутониевом топливе [4]. Эксплуатация нитридного топлива, содержащего избыточное количество азота, может привести к нарушению целостности таблетки топливного сердечника и азотированию оболочки твэла.

В настоящей работе были исследованы образцы нитридного топлива на наличие в них фаз высших нитридов урана, а также изучено поведение этих фаз при рабочей температуре топлива в реакторе.

Экспериментальная часть. Для исследований изготавливали образцы с массовой долей плутония в сумме урана и плутония 5,9, 9,8, 12, 20 и 50% из смеси мононитридов урана и плутония, полученных из исходных диоксидов карботермическим синтезом, в атмосфере сухого азо-

та (H_2O , O_2 — не более 100 млн^{-1} каждого). Синтез нитрида и изготовление дисков проводили по методике [5, 6].

Исходные материалы (диоксиды урана и плутония, технический углерод марки К-354) в заданном соотношении смешивали в аппарате вихревого слоя АВС-150. Перед карботермическим синтезом для максимально полного прохождения реакции и снижения пылеуноса смесь исходных реагентов предварительно прессовали в цилиндрические брикеты, затем их подвергали термообработке с изотермической выдержкой при 1773 К последовательно в потоке азота и смеси азота с объемной долей водорода 8%. В среде азота происходило карботермическое восстановление смеси диоксидов урана и плутония с образованием смешанного мононитрида, в среде смеси азота с водородом — удаление остаточного углерода из него.

Затем термообработанные нитридные брикеты в молотковой мельнице РХ-MFC 90 D (Швейцария) разрушали, в аппарате АВС-150 в течение 10 мин измельчали. К измельченному нитриду добавляли сухую смазку (до 0,5% по массе стеарата цинка), смесь гомогенизировали в турбулентном смесителе. Из полученного порошка прессовали заготовки в форме таблеток при давлении 250—350 МПа. Спрессованные таблетки подвергали термообработке в потоке смеси азота с объемной долей водорода 8% с изотермической выдержкой при 2123 К в течение 2—20 ч.

Внутренний диаметр тигля в термоанализаторе Netzsch STA 449 F1 (Германия) составляет 6 мм, поэтому спеченные таблетки нитрида диаметром 8 мм разрушали на более мелкие фрагменты массой 100—600 мг.

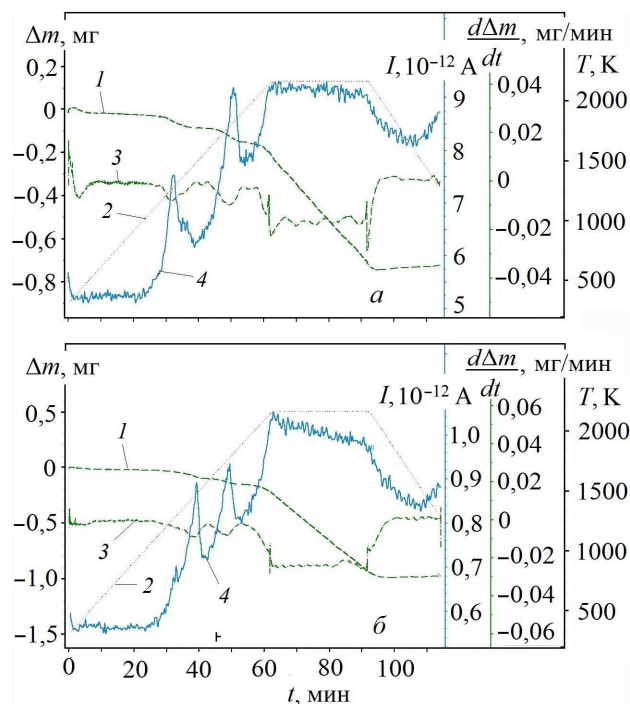
Термогравиметрические исследования смешанного нитридного уран-плутониевого топлива проводили в потоке высокочистого гелия с помощью термоанализатора Netzsch STA 449 F1, совмещенного с квадрупольным масс-спектрометром для анализа газовой атмосферы в печи. Для дополнительной очистки гелия использовали нагреваемый очищающий геттер MonoTorr (США), который уменьшает количество примесей в гелии до уровня $\leq 1 \text{ млрд}^{-1}$.

Фрагмент таблетки нитридного топлива помещали в вольфрамовый тигель, который устанавливали на держатель образца с вольфрам-рениевой термопарой. Методика эксперимента включала в себя нагрев образца в вольфрамовой печи с постоянной скоростью. В качестве образцов использовали топливо с массовой долей плутония в сумме урана и плутония 5,9, 9,8, 12, 20 и 50%.

В эксперименте фиксировали следующие параметры: изменение массы и скорость изменения массы образца, регистрируемый масс-спектрометром ионный ток, соответствующий отношению массы к заряду, равному 28 (молекула азота N_2), и зависимость температуры образца от времени.

В ходе исследования термохимической стабильности у всех образцов была обнаружена потеря массы в низкотемпературной области ($\square 1773$ K), за исключением образца с массовой долей плутония 50%. Потеря массы протекает в две стадии, что отражается ступенями на кривой термогравиметрии, а также двумя пиками выделения азота (рис. 1). Известно, что потеря массы в этой области не связана с разложением моонитридов урана или плутония.

У образцов смешанного уран-плутониевого моонитрида состава $(U_{0,5}Pu_{0,5})N$ подобной потери массы не наблюдали (рис. 2). Видно, что масса образца не отклоняется от нуля, вплоть до температуры начала разложения (~ 2038 K). На рис. 1 видно, что потеря массы в низкотемпературной области мала и составляет сотые доли процента (табл. 1). У образцов с содержанием



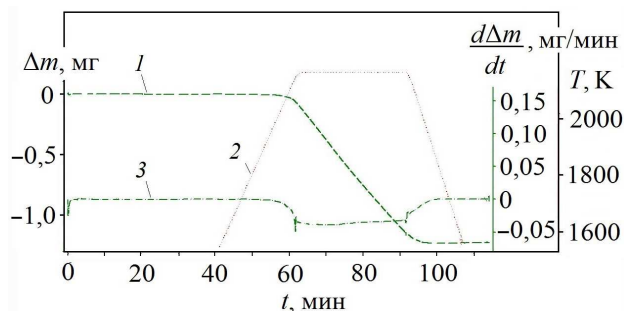
Р и с. 1. Образцы смешанного нитридного топлива $(U_{0,902}Pu_{0,098})N$ массой 259,7 мг (а) и $(U_{0,5}Pu_{0,5})N$ массой 106,8 мг (б): 1, 3 — изменение массы и скорость образца соответственно; 2 — температура образца; 4 — интенсивность ионного тока для отношения массы к заряду, соответствующая катиону N_2^+

плутония 50% по массе выделения азота и потери массы в низкотемпературной области не наблюдали.

Обсуждение результатов. При исследовании смешанного нитридного уран-плутониевого топлива методом термогравиметрии обнаружена потеря массы образцами в низкотемпературной области, сопровождаемая выделением азота, что не связано с разложением моонитридов урана или плутония. Потеря массы в низкотемпературной области протекает в две стадии — в температурном интервале 1100—1273 и 1373—

Таблица 1. Потеря массы образцов в низкотемпературной области

Содержание плутония, % по массе	Масса образца, мг	Потеря массы	
		мг	% по массе
5,9	$131,4 \pm 0,01$	$0,04 \pm 0,01$	0,03
9,8	$259,7 \pm 0,01$	$0,12 \pm 0,01$	0,05
	$109,0 \pm 0,01$	$0,04 \pm 0,01$	0,04
12	$544,6 \pm 0,01$	$0,14 \pm 0,01$	0,03
	$120,1 \pm 0,01$	$0,04 \pm 0,01$	0,03
20	$310,7 \pm 0,01$	$0,04 \pm 0,01$	0,01
	$574,6 \pm 0,01$	$0,15 \pm 0,01$	0,03



Р и с. 2. Образец смешанного нитридного топлива состава $(U_{0,5}Pu_{0,5})N$ массой 106,8 мг (обозначения кривых см. на рис. 1)

1673 К соответственно. Так как нитрид плутония имеет только одно соединение с азотом PuN , то потеря массы в низкотемпературном сегменте ($\square 1773$ К) может быть связана только с разложением высших нитридов урана. Известно, что в системе уран—азот выявлены четыре фазы нитридов урана: мононитрид UN , кубический $\alpha\text{-U}_2\text{N}_3$ и гексагональный $\beta\text{-U}_2\text{N}_3$ полуторный нитрид и динитрид урана UN_2 . Все они при нагреве в вакууме неустойчивы и диссоциируют, не достигая температуры плавления. При этом кубический и гексагональный U_2N_3 не являются аллотропными модификациями одного и того же соединения, но обычно они обозначаются как $\alpha\text{-U}_2\text{N}_3$ и $\beta\text{-U}_2\text{N}_3$. Так, α -фаза имеет широкий диапазон состава $\text{UN}_{1,54}\text{—UN}_{1,75}$, β -фаза имеет достехиометрический состав в интервале $\text{UN}_{1,45}\text{—UN}_{1,49}$. Фазовый переход $\alpha\text{—}\beta$ происходит выше 2073 К. Динитридная фаза имеет соотношение $\text{N/U} > 1,75$, но ее не удалось получить в виде стехиометрического соединения [4].

Потеря массы в низкотемпературной области соответствует разложению полуторного нитрида урана до мононитрида по уравнению $\text{U}_2\text{N}_3 \rightarrow \text{UN} + 0,5\text{N}_2$. Данный процесс соответствует разложению $\alpha\text{-U}_2\text{N}_3$ в UN и протекает в вакууме при 1038 К [3]. В условиях герметичного твэла эта температура может быть выше, поскольку при нагреве образцы будут разлагаться в закрытой системе с малой долей свободного объема. При этом разложение полуторного нитрида может иметь дополнительную стадию: переход $\alpha\text{—}\beta$ при температуре выше 1073 К, что и показано на рис. 1.

Допуская, что мононитриды урана и плутония являются строго стехиометрическими соединениями до 1773 К, выделившийся азот связан с ураном в виде соединения U_2N_3 , можно рассчитать содержание полуторного нитрида в составе нитридного ядерного топлива (табл. 2).

Полуторный нитрид может образовываться на последнем этапе изготовления нитридного топлива, а именно при охлаждении после спекания таблеток. Таблетки спекают в атмосфере азота, который используется для предотвращения разложения нитридов при высокой температуре. При охлаждении после спекания проис-

Таблица 2. Содержание полуторного нитрида в смешанном нитридном топливе по данным термогравиметрического анализа, % по массе

Содержание плутония, % по массе	Потеря массы в низкотемпературной области, % по массе	Содержание полуторного нитрида урана U_2N_3 , % по массе
5,9	0,03	$1,12 \pm 0,11$
9,8	0,05	$1,7 \pm 0,14$
	0,04	$1,35 \pm 0,33$
12	0,03	$0,95 \pm 0,07$
	0,03	$1,23 \pm 0,31$
20	0,01	$0,47 \pm 0,12$
	0,03	$0,96 \pm 0,06$

ходят смена атмосферы с азота на аргон и дальнейшее охлаждение в атмосфере аргона. Остаточный азот может вступить во взаимодействие с мононитридом урана и образовать фазу полуторного нитрида. На содержание азота в печи во время замещения атмосферы также будет сильно влиять чистота аргона. Кроме того, наиболее трудноудаляемый азот содержится в порах нитридного топлива (пористость топлива составляет $\sim 15\%$) и может оставаться там даже при многократном замещении объема печи новым газом.

Полуторный нитрид нерастворим в мононитриде урана и имеет меньшую плотность, при нагреве топлива в реакторе разлагается, часть выделившегося азота выйдет под оболочку твэла. При охлаждении топлива, которое возможно при плановых работах, перегрузке и др., ранее выделившийся азот может вновь вступить в реакцию с мононитридом урана и образовывать хрупкую фазу полуторного нитрида. В результате нескольких циклов разложения-образования полуторного нитрида целостность таблеток будет нарушена, что может сказаться на работоспособности твэла.

Заключение. Таким образом, в ходе термогравиметрических испытаний смешанного нитридного уран-плутониевого топлива с массовой долей плутония в сумме урана и плутония 5,9, 9,8, 12, 20 и 50% была обнаружена потеря массы в низкотемпературной области ($\square 1773$ К), сопровождаемая выделением азота всеми образцами, кроме топлива состава $(\text{U}_{0,5}\text{Pu}_{0,5})\text{N}$. Потеря

массы составляет сотые доли процента массы образца и происходит в две стадии. Потеря массы происходит в результате разложения полуторного нитрида урана в нитридном топливе. Данный процесс может сказаться на работоспособности твэла и снизить его эксплуатационный ресурс. В связи с этим важно контролировать количество остаточного полуторного нитрида, который может содержаться в нитридном ядерном топливе.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Троянов В.М., Грачев А.Ф., Забудько Л.М., Скупов М.В. Перспективы использования нитридного топлива в быстрых реакторах с замкнутым топливным

- циклом. — Атомная энергия, 2014, т. 117, вып. 2, с. 69—74.
2. Алексеев С.В., Зайцев В.А. Нитридное топливо для ядерной энергетики. М.: Техносфера, 2013. 240 с.
3. Wang X., Long Z., Bin R. et al. Study of the decomposition and phase transition of uranium nitride under UHV conditions via TDS, XRD, SEM, and XPS. — Inorganic Chem., 2016, v. 55, № 21, p. 10835—10838.
4. Hiroaki T. Phase relations and thermodynamic properties of the uranium-nitrogen system. — J. Nucl. Mater., 1974, v. 51, p. 78—89.
5. Arai Y., Nakajima K. Preparation and characterization of PuN pellets containing ZrN and TiN. — Ibid., 2000, v. 281, № 2—3, p. 244—247.
6. Ganguly C., Hegde P., Sengupta A. Preparation, characterisation and out-of-pile property evaluation of (U, Pu)N fuel pellets. — Ibid., 1991, v. 178, № 2—3, p. 234—241.

Поступила в Редакцию 7.03.19

УДК 621.039.342+658.51

ЭФФЕКТИВНОСТЬ ВОВЛЕЧЕНИЯ ОБЕДНЕННОГО УРАНА В ОБОГАТИТЕЛЬНОЕ ПРОИЗВОДСТВО

Павлов Ю.Г., Ульянов Ю.А. (АО «Техснабэкспорт», г. Москва),

Лазарев Д.А., Харитонов В.В. (НИЯУ МИФИ, г. Москва)

e-mail: atomlazarev@gmail.com

По данным Всемирной ядерной ассоциации в настоящее время накоплено около 2 млн т обедненного гексафторида урана с концентрацией ^{235}U 0,1—0,4% по массе в расчете на металлический уран [1, 2]. Различная концентрация ^{235}U в обедненном гексафториде урана обусловлена экономическими соображениями, связанными с загрузкой обогатительного производства и соотношением цен на работу разделения изотопов урана и природный уран. Обедненный гексафторид урана является опасным химическим соединением, поэтому при невозможности его повторного использования для производства топлива требуется для длительного хранения переводить в более безопасную форму диоксида урана UO_2 .

Целью настоящей статьи является оценка экономической целесообразности повторного обогащения обедненного гексафторида урана с последующей утилизацией вторичных отвалов.

Материальные потоки и работа разделения при обогащении урана. Питанием раз-

делительного каскада служит поток F сырья в форме гексафторида урана концентрацией f урана ^{235}U . На выходе каскада образуются два потока: обогащенный продукт в количестве P с повышенной концентрацией ^{235}U ($p > f$) и отвал в количестве T с концентрацией t ниже, чем в сырьевом потоке ($t < f$).

Воспользуемся определениями работы разделения R и разделительного потенциала V , а также уравнениями баланса материальных потоков и их изотопного состава потоков [3—6]:

$$R = PV(p) + TV(t) - FV(f); \quad (1)$$

$$V(z) = (1 - 2z) \ln \frac{1 - z}{z}; \quad z = p, t, f; \quad (2)$$

$$F = T + P; \quad fF = tT + pP. \quad (3)$$

Из выражений (3) следует взаимосвязь материальных потоков с концентрацией в них ^{235}U :

$$F = P \frac{p - t}{f - t}; \quad T = P \frac{p - f}{f - t}. \quad (4)$$