

Таким образом, развитие и совершенствование реакторов-размножителей является актуальной задачей, поскольку крупномасштабная ядерная энергетика невозможна без их включения в ее структуру. Перспективное развитие должно проводиться на базе натриевого теплоносителя. Совокупность его свойств, определяющих теплотехнические и конструктивные характеристики реакторной установки, не достигается другими известными теплоносителями, в том числе и свинцом. Единственный недостаток натрия — пожароопасность успешно преодолевается техническими мероприятиями, что подтверждается многолетней эксплуатацией. Переход на свинцовый теплоноситель не обеспечит каких-либо новых потребительских качеств, реализация которых была бы невозможна с натриевым теплоносителем. Одной из приоритетных задач является повышение технико-экономических характеристик установок с быстрыми реакторами с натриевым теплоносителем, обеспечение конкурентоспособности с реакторными установками ВВЭР. Проведенные к настоящему времени разработки показывают реальные направления решения этой задачи.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Стратегия развития атомной энергетики России в первой половине XXI века. — Бюл. Центра общественной информации по атомной энергии, 2000, № 6, с. 4—17.
2. Поплавский В.М. Атомная электростанция с реактором на быстрых нейтронах с жидкометаллическим охлаждением на современном этапе и возможные пути ее совершенствования. — В сб.: Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях, т. 2, ФЭИ, Обнинск, 1999, с. 470—481.
3. Status of Liquid Metal Cooled Fast Reactor Technology. IAEA-TECDOC-1083, 1999.
4. Ламба В. Приспособления и недостатки быстрых реакторов с различными теплоносителями (аналитический обзор). — Бюл. по атомной энергии, 2001, № 9, с. 32—37.
5. Багдасаров Ю.Е., Кузнецов И.А., Камасев А.А. Сравнение натрия и тяжелого теплоносителя как охлаждающей среды для быстрого реактора. — В сб.: Тяжелые жидкометаллические теплоносители в ядерных технологиях, т. 2, ФЭИ, Обнинск, 1999, с. 482—495.
6. Адамов Е.О., Орлов В.В. Развитие атомной энергетики на базе новых концепций ядерных реакторов и топливного цикла. — Там же, т. 1, с. 25—32.
7. Зродников А., Кузин В., Тушинский Г. и др. ТЖМР-10. Научно-технический и экономический эффект. — Журн. Ядерного общества, 2001, № 3—4, с. 30—33.
8. Mourougov V., Juhn P.E., Kupitz J., Rineiskii A. Liquid-metal-cooled-fast reactor (LMFR) development and IAEA activities. — Energy, 1998, т. 23, № 7—8, с. 637—648.
9. Орлов В.В., Леонов В.Н., Сила-Новицкий А.Г. и др. Проект АЭС с реакторами естественной безопасности (БРЕСТ) со свинцовым теплоносителем. — Докл. на Межд. сем. «Стратегия разработки ядерных топливных циклов быстрых реакторов», Япония, 3—9 февр., 2001 г.
10. Белая книга ядерной энергетики. Под общей ред. Е.О. Адамова. М., ГУП НИКИЭТ, 2001.
11. Быстрый реактор и топливный цикл естественной безопасности для крупномасштабной энергетики. Топливный баланс, экономика, безопасность, отходы, нераспространение. Труды Межд. сем. М., Мин-во РФ по атомной энергии, 2000.

Поступила в Редакцию 26.12.01

УДК 621.039.542.34:621.039.526+621.039.546

ИССЛЕДОВАНИЕ ThO_2 И $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$

Курина И.С., Гудков Л.С., Румянцев В.Н. (ГНЦ РФ — ФЭИ им. А.И. Лейпунского)

В ГНЦ РФ — ФЭИ ведутся работы по изучению перспектив развития ядерной энергетики и путей вовлечения в нее тория как дополнительного ресурса. Одновременно изучаются те полезные качества, которые может принести с собой использование тория в реакторах существующего типа. Большое значение придается оптимизации технологии изготовления топлива, особенно получению порошков, свойства которых оказывают определяющее влияние на качество спеченных таблеток [1—3]. Результаты технологических проработок получения и исследования торийсодержащих композиций $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$, $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2 + \text{MgO}$, $(\text{U}, \text{Th}, \text{Ca})\text{O}_2$ уже были представлены в работах [4—6].

В настоящей статье рассматриваются вопросы, касающиеся исследования свойств порошков и таблеток композиции $\text{UO}_2 + \text{ThO}_2$ с их разным соотношением. Основы технологии изготовления бездефектных керамических топливных материалов подробно описаны в работе [2]. Технология изготовления исследуемых порошков и таблеток ThO_2 и $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$ включает в себя следующие операции: приготовление раствора, содержащего необходимые компоненты, осаждение компонентов, фильтрация, прокаливание осадка, восстановление порошка водородом (в случае использования урана), смешение с пластификатором (возможно проведение процесса без пластификатора), прессование и спекание таблеток [4—7].

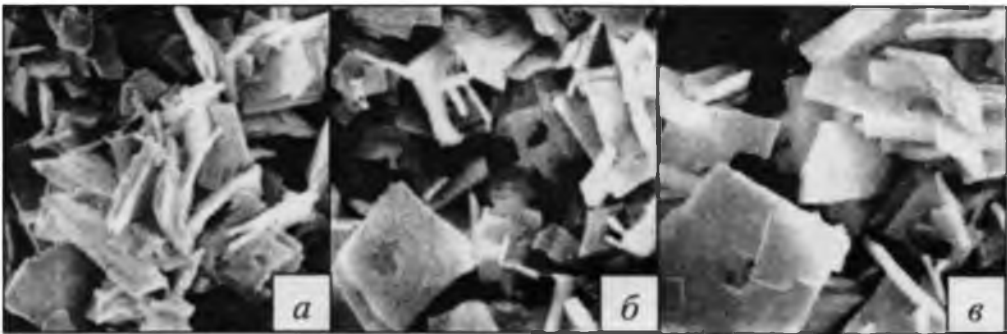
Исследование ThO_2 . Изучение свойств порошков и таблеток композиции $\text{UO}_2 + \text{ThO}_2$ было начато с изучения свойств чистого ThO_2 . Исследуемые порошки из ThO_2 изготавливали путем растворения порошкообразного оксида тория в растворе азотной кислоты с последующим осаждением оксалата тория $\text{Th}(\text{C}_2\text{O}_4)_2$ [5—7]. Осадок делили на несколько частей и прокаливали на воздухе при разной температуре в интервале от 400 до 1000 °С. Пробы порошков анализировали по фазовому составу. Полученные при разной температуре прокаливания порошки состояли из одной фазы — ThO_2 . Результаты рентгеновского анализа порошков приведены в табл. 1. По экспериментальным данным с повышением температуры прокаливания от 400 до 1000 °С увеличивается размер кристаллитов порошков от 5,1 до 30 нм. При этом параметр a элементарной ячейки уменьшается с $0,5622 \pm 0,0003$ до $0,5594 \pm 0,0001$ нм. По данным работы [8] при повышении температуры прокаливания от 400 до 800 °С размер кристаллитов увеличивается с 5,8 до 33,2 нм.

Т а б л и ц а 1. Рентгеновские параметры порошков ThO_2 , полученных при разной температуре прокаливания

T, °С	Размер кристаллитов, нм		Параметр элементарной ячейки, нм
	Настоящая работа	[8]	
400	5,1	5,8	$0,5622 \pm 0,0003$
500	6,8	8,0	$0,5615 \pm 0,0002$
600	8,8	12,0	$0,5612 \pm 0,0002$
700	12,3	17,6	$0,5606 \pm 0,0001$
800	19,0	33,2	$0,5601 \pm 0,0001$
900	24,2	—	$0,5596 \pm 0,0001$
1000	30,0	—	$0,5594 \pm 0,0001$

С помощью сканирующего электронного микроскопа, оснащенного энергодисперсионным анализатором, изучали морфологию и элементный состав частиц исследуемых порошков. На рис. 1 приведена морфологическая структура порошков ThO_2 , прокаленных при 600, 700 и 900 °С. Частицы порошков после прокаливания имеют вид тонких пластинок и иголок. При 400 °С порошок состоит в основном из отдельных частиц. С ростом температуры прокаливания от 400 до 600 °С частицы ThO_2 агрегируются. Наибольшее количество агломератов наблюдается при 600 °С (см. рис. 1, а). При дальнейшем повышении температуры происходит дезагломерация частиц. При 700 °С морфологическая структура частиц (см. рис. 1, б) становится похожей на получаемую при 400 °С. При увеличении температуры до 900 °С частицы ThO_2 растут и утолщаются (см. рис. 1, в).

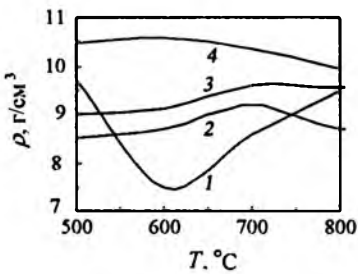
Из порошков ThO_2 , полученных при 400—800 °С, были изготовлены таблетки, которые спекали при 1800 °С в среде водорода (табл. 2).



Р и с. 1. Структура порошка ThO_2 , полученного прокаливанием при 600 (а), 700 (б), 900 °С (в) $\times 5000$

Т а б л и ц а 2. Характеристика таблеток ThO_2 (средние значения)
в зависимости от температуры прокаливания осадка

Т, °С	Диамстр. мм	Гидростатическая плотность, г/см ³	Внешний вид
400	6.65	9,73	Трещины
500	7.0	9,72	»
600	7.2	7,49	»
700	7.23	8,60	Без дефектов
800	7.25	9,50	»



Р и с. 2. Зависимость плотности таблеток, изготовленных из ThO_2 (1), $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ с массовой долей UO_2 25% (2), 13% (3) и UO_2 (4), от температуры прокаливания осадков

Из рис. 2 следует, что минимальную плотность имеют таблетки, изготовленные из прокаленного при 600 °С порошка. Таблетки из прокаленного при 400 и 500 °С порошка имеют высокую плотность (97% теоретической), но неудовлетворительный внешний вид (см. табл. 2). Не имеют дефектов таблетки, изготовленные из прокаленного при 700 и 800 °С порошка. Прокаливание порошка при 800 °С обеспечивает получение бездефектных спеченных таблеток плотностью до 95% теоретической.

Исследование $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ разного состава. Целью настоящей работы являлось исследование порошков и таблеток $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ разного состава, изготовленных методом совместного осаждения компонентов из растворов [4—7]. Массовая доля UO_2 в исследуемых топливных композициях составляла 13 и 25%.

Исследование порошков $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$. Уран и торий из нитратных растворов осаждали с помощью шавелевой кислоты и аммиака [4—7]. Осадки хорошо фильтровались, имели кристаллическую структуру, желтый цвет. В маточных растворах содержалось суммарно менее 1 мг/л урана и тория. Осадки прокалили на воздухе в муфельной печи при 500—1000 °С. Полученные порошки подвергли вторичной термической обработке при 700 °С в среде водорода. Был проведен анализ фазового состава порошков. В зависимости от температуры прокаливания изучали изменение параметров элементарной ячейки и размеров кристаллитов порошков, фазового состава, морфологической структуры, качества спеченных таблеток (микроструктуры, плотности, дефектообразования). Как следует из табл. 3, в порошках 75% ThO_2 + 25% UO_2 , прокаленных при 600 °С, присутствуют фазы $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ и U_3O_8 , тогда как после прокаливания при

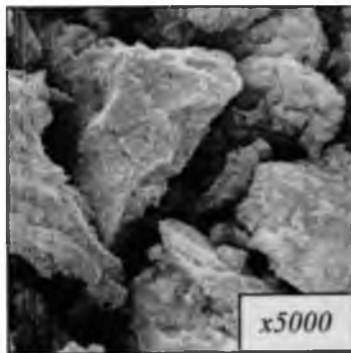
другой температуре фаза U_3O_8 отсутствует. В процессе прокаливания порошков $87\%ThO_2 + 13\%UO_2$ при $600^\circ C$ не было обнаружено образования фазы U_3O_8 . Прокаленные порошки восстановили при $700^\circ C$ в среде водорода, при этом все порошки приобрели серый цвет, фазовый состав всех порошков соответствовал $(Th, U)O_2$.

Т а б л и ц а 3. Характеристики порошков $(U, Th)O_2$ после прокаливания осадков

Массовая доля UO_2 , %	T , $^\circ C$	Цвет порошка	Фазовый состав	Параметр элементарной ячейки, нм	Размер кристаллитов, нм
25	500	Оранжевый	Твердый раствор $(U, Th)O_2$	$0,5563 \pm 0,0002$	9,3
	600	Коричнево-зеленый	Твердый раствор $(U, Th)O_2 + U_3O_8$	$0,5594 \pm 0,0002$	12,2
	700	Коричневый	Твердый раствор $(U, Th)O_2$	$0,5561 \pm 0,002$	13,7
	800	Темно-коричневый	»	$0,5561 \pm 0,0002$	16,4
13	500	Оранжевый	»	$0,5587 \pm 0,0002$	13,7
	600	Коричнево-зеленый	»	$0,5585 \pm 0,0002$	13,9
	700	Коричневый	»	$0,5587 \pm 0,0002$	17,4
	800	Темно-коричневый	»	$0,5585 \pm 0,0002$	24,5
	1000	Темно-коричневый	»	$0,55778 \pm 0,00005$	84

Методом сканирующей электронной микроскопии изучали морфологию и состав частиц порошков, полученных после прокаливания на воздухе при 500 — $1000^\circ C$ (рис. 3). При температуре прокаливания до $1000^\circ C$ частицы порошка твердого раствора $(Th, U)O_2$ имели угловатую форму.

Исследование таблеток $(Th, U)O_2$. Из порошков, полученных при разной температуре прокаливания осадка и восстановленных при $700^\circ C$, изготовили таблетки по технологии [4—7] и используемой за рубежом [8]. Как следует из данных, приведенных в табл. 4, качество таблеток (плотность, внешний вид) в значительной степени зависит от температуры прокаливания осадка. Бездефектные таблетки $75\%ThO_2 + 25\%UO_2$



Р и с. 3. Структура порошка $(Th, U)O_2$ с массовой долей UO_2 25%

правильной цилиндрической формы с плотностью 88% теоретической ($\rho = 10,22 \text{ г/см}^3$) были получены из порошка, прокаленного при $700^\circ C$. Термическая обработка осадка при этой температуре позволила получить бездефектные таблетки из $87\%ThO_2 + 13\%UO_2$ плотностью 95% теоретической ($\rho = 10,1 \text{ г/см}^3$). После спекания все таблетки представляли собой твердый раствор $(Th, U)O_2$ с равномерно распределенной пористостью.

Таблетки $(Th, U)O_2$, изготовленные из прокаленных при иной температуре порошков, имели различные дефекты: сколы, трещины, искаженную форму. Исследование их шлифов выявило неравномерную структуру, неоднородную пористость и скопления пор [5]. Зависимость плотности спеченных таблеток для обоих составов от

Т а б л и ц а 4. Характеристика спеченных таблеток $(\text{Th, U})\text{O}_2$ (средние значения)
в зависимости от температуры прокаливания осадков

Т, °С	Диаметр, мм	Плотность		Внешний вид
		Гидростатическая, г/см ³	% теоретической	
Массовая доля UO ₂ 25%				
600	6,85	8,7	85	«Талия»
700	7,00	9,0	88	Без дефектов
800	7,05	8,71	85	Сколы на торцах
900	7,32	8,64	84,5	То же
Массовая доля UO ₂ 13%				
500	6,85	8,98	89	«Талия», сколы на торцах
600	6,78	9,10	90	«Талия»
700	6,68	9,60	95	Без дефектов
800	6,75	9,55	94,6	Сколы на торцах
900	6,75	9,57	94,7	То же
1000	7,02	9,65	95,5	»

температуры прокаливания осадка представлена на рис. 2. Кривая 2 зависимости плотности спеченных таблеток $75\% \text{ThO}_2 + 25\% \text{UO}_2$ от температуры прокаливания осадка лежит значительно ниже кривой 3 для таблеток состава $87\% \text{ThO}_2 + 13\% \text{UO}_2$. Таким образом, спексаемость таблеток твердого раствора $(\text{Th, U})\text{O}_2$ сильно зависит от содержания UO_2 : с увеличением содержания UO_2 уменьшается плотность. Максимальную плотность имеют таблетки исследуемого состава, изготовленные из порошков с температурой прокаливания осадков 700°C . Попробуем объяснить этот факт.

На рис. 2 представлены графики зависимости плотности спеченных таблеток UO_2 (кривая 4 [2]) и ThO_2 (кривая 1) от температуры прокаливания осадков соответственно полиураната аммония и оксалата тория. Таблетки диоксида урана, изготовленные из полиураната, прокаленного при $400\text{--}500^\circ\text{C}$, имеют различные виды брака и нестабильную плотность. Максимальную плотность, бездефектную структуру таблетки UO_2 имеют при температуре прокаливания 600°C . Плотность и качество спеченных таблеток UO_2 значительно понижаются при прокаливании осадка свыше 700°C [2, 3]. Спеченные таблетки ThO_2 , изготовленные из прокаленного при 600°C порошка, имеют минимальную плотность. Увеличение температуры прокаливания осадка оксалата тория до $700\text{--}800^\circ\text{C}$ позволяет повысить спексаемость таблеток и исключить образование различных видов дефектов внешнего вида и структуры. Максимальную плотность таблетки оксида тория имеют при температуре прокаливания осадка 800°C (см. табл. 2). Таким образом, при температуре прокаливания соответствующих осадков от 700°C и выше плотность UO_2 монотонно снижается, плотность ThO_2 монотонно повышается. Значит, в процессе совместного осаждения чем больше в твердом растворе $(\text{Th, U})\text{O}_2$ будет содержаться UO_2 , тем в большей степени будет снижаться плотность таблеток $(\text{Th, U})\text{O}_2$, изготовленных из прокаленного при температуре выше 700°C порошка. Поэтому температура прокаливания уран- и торий-содержащего осадка 700°C является оптимальной для достижения максимальной плотности в таблетках $(\text{Th, U})\text{O}_2$ исследуемого состава.

Исследование теплопроводности таблеток $(\text{Th, U})\text{O}_2$. По аттестованной методике проведены исследования теплопроводности топливных композиций $(\text{Th, U})\text{O}_2$ с мас-

совой долей UO_2 13 и 25%. Исследованиям подвергали спеченные таблетки, изготовленные по оптимальным технологическим режимам. В табл. 5 приведены измеренные коэффициенты теплопроводности этих образцов при разной температуре. Кроме того, в табл. 5 и на рис. 4 для $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ обоих составов указаны коэффициенты теплопроводности, пересчитанные по формуле [9] с учетом плотности. Дополнительно на рис. 4 показаны коэффициенты теплопроводности для чистых оксидов тория и урана [10, 11].

Т а б л и ц а 5. Зависимость коэффициента теплопроводности $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ от температуры и состава

Массовая доля UO_2 , %	Плотность, г/см^3		Т, °С								Примечание
	Экспериментальная	Теоретическая	100	200	300	400	500	600	700	800	
25	9,0	10,22	6,9 9,1	5,6 7,4	4,9 6,5	4,6 6,1	4,5 6,0	4,4 5,8	4,35 5,7	4,3 5,7	Эксперимент Расчет на теоретическую плотность
13	9,6	10,10	12,6 14,6	11,8 13,7	11,0 12,8	10,2 11,8	9,4 10,9	8,6 10,0	7,8 9,1	7,1 8,2	

С увеличением температуры коэффициент теплопроводности твердого раствора $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ уменьшается, однако абсолютные значения теплопроводности твердого раствора $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ выше, чем для чистых оксидов ThO_2 и UO_2 . Это можно объяснить технологией изготовления твердого раствора $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$. Технология изготовления оксидной керамики оказывает значительное влияние на свойства изделий [2], в том числе на теплопроводность. Теплопроводность $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ зависит от соотношения $\text{UO}_2:\text{ThO}_2$ — повышение содержания UO_2 в исследуемых пределах уменьшает коэффициент теплопроводности.

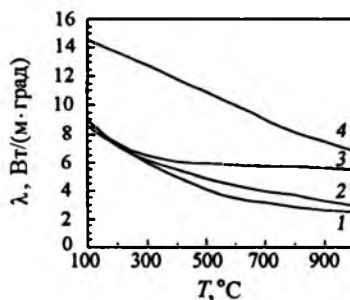
Измерение удельной теплоемкости $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$. Анализ используемых методов измерения удельной теплоемкости показал, что наиболее надежным и точным является калориметрический [12]. Удельную теплоемкость композиции рассчитывали по формуле [10]

$$C_p = g_1 C_{p1} + g_2 C_{p2},$$

где C_p , C_{p1} , C_{p2} — удельная теплоемкость композиции первого и второго компонентов соответственно; g_1 , g_2 — массовая доля компонентов в композиции.

Сравнение результатов эксперимента и расчетов показывает удовлетворительное согласие (табл. 6).

Таким образом, оптимизирован процесс изготовления топлива $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$, который позволяет получать таблетки с улучшенными характеристиками: удовлетворительной плотностью, равномерной микроструктурой и повышенной теплопроводностью. Увеличение содержания UO_2 в $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ снижает плотность спеченных таблеток и их теплопроводность.



Р и с. 4. Температурная зависимость коэффициента теплопроводности в пересчете на плотные образцы для состава ThO_2 (1), UO_2 (2), $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ с массовой долей UO_2 25% (3), 13% (4)

Т а б л и ц а 6. Удельная теплоемкость UO_2 , ThO_2 и $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ с массовой долей UO_2 25%,
кДж/(кг·°C)

T, °C	ThO_2 [10]	UO_2 [11]	$(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$	
			Эксперимент	Расчет на теоретическую плотность
300	0,243	0,286	0,253	0,253
400	0,246	0,305	0,263	0,258
500	0,249	0,315	0,270	0,263
600	0,251	0,322	0,276	0,266
700	0,254	0,327	0,281	0,269
800	0,257	0,330	0,286	0,272
900	0,260	0,334	0,292	0,275
1000	0,263	0,337	0,296	0,278
1100	0,266	0,340	0,301	0,281
1200	0,269	0,342	0,308	0,287

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Майоров А.А., Браверман И.Б. Технология получения порошков керамической двуокиси урана. М.: Энергоатомиздат, 1985.
2. Курина И.С. Способ получения изделий из керамики. Патент 2135429, Россия. 27.08.1999 г.
3. Курина И.С. Влияние температуры прокаливания порошков на качество оксидного топлива. — Атомная энергия, 1999, т. 86, вып. 3, с. 189—194.
4. Казанцев Г.Н., Курина И.С., Овчинников И.Я и др. Технологические возможности создания топливных композиций, содержащих торий. — Известия вузов, Ядерная энергетика, 1999, № 1, с. 19—24.
5. Курина И.С., Дворянин А.М., Гудков Л.С. Получение и исследование топливных торийсодержащих композиций. — Атомная энергия, 2000, т. 88, вып. 5, с. 346—353.
6. Курина И.С., Мосеев Л.И., Павлович В.Б. Изготовление оксидного топлива без урана-238 для утилизации плутония. — В сб.: Межд. конф. «Атомная энергетика на пороге XXI века», 8—10.06.2000, Электросталь, с. 134—145.
7. Курина И.С., Шарапов В.Н., Мосеев Л.И. и др. Расчетные и технологические разработки возможности использования тория и плутония в реакторах типа ВВЭР. — В кн.: Избранные труды ФЭИ-2000, ч. 1, с. 39—47.
8. Tyagi A., Mathews M. Letter to the editors. Thermal expansion of ThO_2 —2% UO_2 by HT-XRD. — J. Nucl. Mater., 2000, v. 278, p. 123—125.
9. Peddicord K., Cunningham M., Tripathy A. Porosity correction to thermal conductivity based on analytical temperature solutions. — Trans. Am. Nucl. Soc., 1978, v. 28, p. 548.
10. Чиркин В.С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники. М.: Атомиздат, 1969.
11. Fink J., Petry M. Thermophysical Properties of Uranium Dioxide. ANL/Re-97/2.
12. Олейник Б.М. Точная калориметрия. М.: Изд-во стандартов, 1964.

Поступила в Редакцию 10.12.01

УДК 621.039.546

ПАРАМЕТРЫ И ТЕХНОЛОГИЯ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ТВЭЛОВ РЕАКТОРА ПИК

Агеенков В.И., Волков В.С., Солонин М.И. (ФГУП ВНИИНМ им. А.А. Бочвара),
Гарусов Е.А., Звездкин В.С., Коноплев К.А. (ПИЯФ им. Б.П. Константинова),
Бек Е.Г., Ильяшик М.И., Потоскаев Г.Г., Самохин М.Г., Цибуля В.А.
(ОАО «Машиностроительный завод»)

В настоящее время на территории Петербургского института ядерной физики им. Б.П. Константинова сооружается высокопоточный исследовательский реактор ПИК (пучковый, исследовательский, корпусной) мощностью 100 МВт [1]. Научным руководителем проекта реактора ПИК, расчетными оценками и конструктивными раз-