



Александр ШИМКЕВИЧ,

начальник
отдела НИЦ
«Курчатовский
институт»



Александр ПРОШКИН,

начальник
лаборатории НИЦ
«Курчатовский
институт»



Алексей СЕДОВ,

начальник
лаборатории НИЦ
«Курчатовский
институт»

Путем инноваций

Перспективное плотное топливо для энергетических реакторов

В настоящее время легководные энергетические реакторы (ВВЭР, PWR, BWR) и реакторы на быстрых нейтронах (БР) в качестве топлива используют керамический диоксид урана UO_2 . В незначительном объеме (в основном, во Франции) АЭС с PWR работают с частичной загрузкой уран-плутониевого (UPu) O_2 топлива (МОКС).

Свойствами UO_2 , обеспечивающими его широкое применение в атомной энергетике, являются высокая температура плавления (~ 2800 °С), химическая устойчивость в широком диапазоне температур по отношению ко многим теплоносителям и замедлителям и т. д.

Наряду с этим диоксид урана обладает серьезными недостатками — низкой теплопроводностью и малой теоретической плотностью. В таблице 1 представлены теплофизические характеристики различных типов ядерного топлива.

Низкая плотность оксидного топлива требует увеличения обогащения топлива, чтобы увеличить кампанию топлива. Низкая теплопроводность UO_2 приводит к высокому уровню температур топлива и увеличению запасенной энергии в топливе. Эти недостатки оксидного топлива ограничивают возможности повышения эффективности топливного цикла и безопасности АЭС.

Топливо для легководных реакторов

В настоящее время рассматриваются несколько направлений по использованию перспективных топлив для легководных реакторов.

Первое направление, которое можно назвать эволюционным, связано с модернизацией оксидного топлива путем его легирования оксидами металлов с целью улучшения его поведения в условиях облучения и повышения теплопроводности.

Во Франции, например, проведены испытания топлива UO_2 с увеличенным зерном благодаря добавкам оксида хрома, что позволило уменьшить выход газообразных продуктов деления и скорость распухания топлива. Рассматривается также возможность повышения пластичности оксидного топлива, сохраняющейся при облучении.

В России и в Казахстане для увеличения теплопроводности топлива рассматривается введение в оксидное топливо добавок в виде BeO .

Второе направление, которое можно отнести к инновационным, связано с использованием топлива дисперсионного типа на основе высокоплотного топлива U-Mo, U-Nb-Zr, U_3Si с матрицей из циркониевых сплавов, ранее разработавшегося для транспортных установок. Основными преимуществами этого топлива являются высокое содержание

Таблица 1. Основные теплофизические характеристики различных типов топлива

Характеристика	Диоксид урана	Монокарбид урана	Нитрид урана	Металлический уран
Теоретическая плотность топлива/тяжелых ядер, г/см ³	11.0/9.9	13.6/12.9	14.3/13.5	19.0/19.0
Температура плавления, °С	2800	~ 2350	2750*	1020
Теплопроводность, Вт/м • °С	2.7	17.0	18.0	20.0
Теплота плавления, кДж/кг	277	186	170	38.0
Коэффициент линейного термического расширения, 10 ⁻⁶ /°С	11	11	10	18

* предельно допустимую температуру смешанного нитрида принимают равной ~ 2000 К, после которой возможно образование металлической фазы и испарение Pu, что вызывает резкое изменение структурного состояния топлива. Поэтому для топлива (U-Pu)N рекомендуется не превышать величину рабочей температуры 2000 °К.

Следует отметить, что скорость коррозии в воде при температуре 300 °С для нитрида урана ~ в 10 раз, для карбида урана ~ в 50 раз, а для металлического урана более чем на два порядка выше, чем для оксидного топлива.

урана (более 15 – 50% по сравнению со стандартным таблеточным топливом из UO_2), низкие рабочие температуры топлива < 550 °С, что соответствует критерию «холодное» ядерное топливо, высокое максимальное выгорание (100 МВт•сут/кгU) и работоспособность твэлов в режиме переменных нагрузок. Как результат — увеличение экономической эффективности и снижение стоимости электроэнергии, отпускаемой потребителю.

Основные преимущества нового топлива для тепловых реакторов (ВВЭР, PWR, BWR):

1. Высокая ураноемкость 9,5 – 12,9 г/см³ под оболочкой твэла, что на 15 – 50% выше, чем в стандартном твэле PWR, BWR, ВВЭР-1000 с таблеткой из диоксида урана. Это позволяет снизить обогащение топлива по урану-235 или увеличить кампанию твэлов.

2. Высокая теплопроводность топливного сердечника 18 – 22 Вт/м•К, что снижает максимальную температуру топлива до 450 – 500 °С, реализуя концепцию «холодного» ядерного топлива, и повышает эксплуатационную надежность и безопасность АЭС.

3. Наличие пористости в топливном сердечнике позволяет компенсировать распухание топлива до максимального выгорания ~ 100 МВт•сут/кгU.

4. Наличие металлургического сцепления между оболочкой и сердечником делает твэлы работоспособными в режиме переменных нагрузок, что приведет к оптимизации режима эксплуатации АЭС и повышению их эксплуатационной надежности и безопасности.

5. Высокая коррозионная стойкость в воде при высоких температурах.

Рассматривались следующие композиции ядерного топлива инновационного типа, разработанные ВНИИНМ и представленные в таблице 2.

В НИЦ «Курчатовский институт» проведен сравнительный анализ технико-экономических показателей эффективности применения топлива в реакторе ВВЭР-1000 по сравнению со штатными твэлами. Сравнение проводилось, исходя из четырехгодичного топливного цикла.

Основные выводы проведенного анализа:

1. Расход природного урана во всех вариантах дисперсионного топлива выше, чем со штатным топливом. Только в вариантах 1 и 2 расхождение со штатной загрузкой активной зоны (АЗ) минимально: расход природного урана выше на 6% и 4% соответственно.

2. Топливная составляющая стоимости электроэнергии во всех вариантах (кроме 7 и 8) может быть близкой или ниже, чем в штатной АЗ, при условии, что стоимость новой ТВС не будет превышать стоимости штатной ТВС ($C_{i}^{ТВС}/C_{шт.}^{ТВС}$). Для корректного сравнения топливных составляющих стоимости электроэнергии необходимо оценить стоимость ТВС рассматриваемых вариантов с учетом особенностей технологии их изготовления, контроля годности производимой продукции и технологии обращения с ОЯТ.

3. Следует отметить, что коэффициент накопления (КН), определяемый как отношение выгружаемого делящегося материала к загружаемому количеству делящегося материала, во всех вариантах превышает КН для штатной АЗ в 1.1 – 1.4 раза. Это может оказать значительное влияние на экономические показатели эффективности топливного цикла при работе АЭС с реакторами ВВЭР в замкнутом топливном цикле.

4. При работе АЭС с реакторами ВВЭР-1000 в открытом топливном цикле наиболее предпочтительными вариантами нового топлива являются 1 и 2 (см. таблицу 2). Они могут иметь экономические показатели топливного цикла, близкие к таковым в штатной АЗ, или несколько выше.

Необходимо продолжить исследования возможности перехода в реакторах ВВЭР (как в открытом, так и в замкнутом топливном цикле) к высокоплотному топливу с высокой теплопроводностью и провести реакторные испытания работоспособности твэлов с топливом вариантов 1 и 2 (см. таблицу 2) до глубоких выгораний топлива в маневренных режимах.

Использование оксидного топлива в керамической матрице (керкер) в силу низкого содержания делящегося материала не дает улучшения эффективности топливного цикла по сравнению со штатной ТВС реактора ВВЭР-1000.

Таблица 2. Состав исследуемых вариантов топлива

Тип топливной композиции	Объемные доли компонентов, %			Характеристики топлива		Характеристики циркониевой матрицы	
	Топливо	Матрица	Поры	Плотность, г/см ³	Состав топлива, %	Плотность, г/см ³	Состав матрицы, %
1. U3Si + ЦЖМ	72	13	15	15.05	96.2U + 3.8Si	6,8	8.0Fe + 8.0Cu
2. U3Si + ЦЖБ	72	13	15	15.05	96.2U + 3.8Si	6,2	6.6Fe + 2.5Be
3. ЦН-4.5 + ЦЖБ	66	17	17	18.04	95.5U + 1.5Zr + 3.0Nb	6,2	6.6Fe + 2.5Be
4. Н-4.5 + ЦЖБ	72	13	15	18.04	95.5U + 1.5Zr + 3.0Nb	6,2	6.6Fe + 2.5Be
5. ОМЦ2.5 + ЦЖБ	66	17	17	18.50	97.5U + 1.5Mo + 1.0Zr	6,2	6.6Fe + 2.5Be
6. ОМЦ2.5 + ЦЖБ	72	13	15	18.50	97.5U + 1.5Mo + 1.0Zr	6,2	6.6Fe + 2.5Be
7. ОМ-6 + ЦЖМ	72	13	15	17.06	94.0U + 6.0Mo	6,8	8.0Fe + 8.0Cu
8. ОМ-6 + ЦЖБ	72	13	15	17.06	94.0U + 6.0Mo	6,2	6.6Fe + 2.5Be
Таблетка UO_2 , штатный твэл		–		10.50		–	–

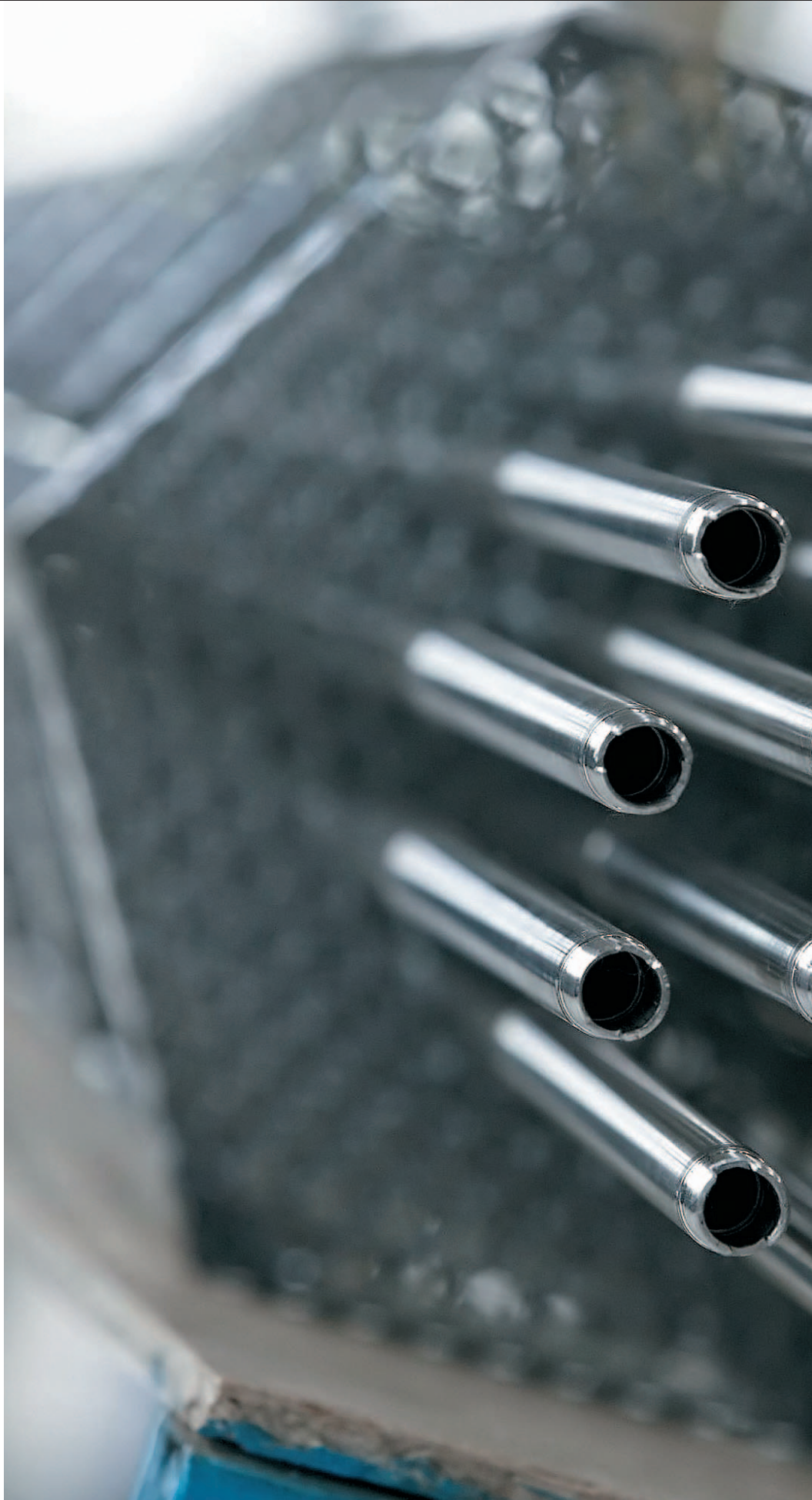
Другим возможным инновационным направлением является разработка окси-карбо-силицидного топлива U (O-Si-C), которое предлагается специалистами НИЦ «Курчатовский институт».

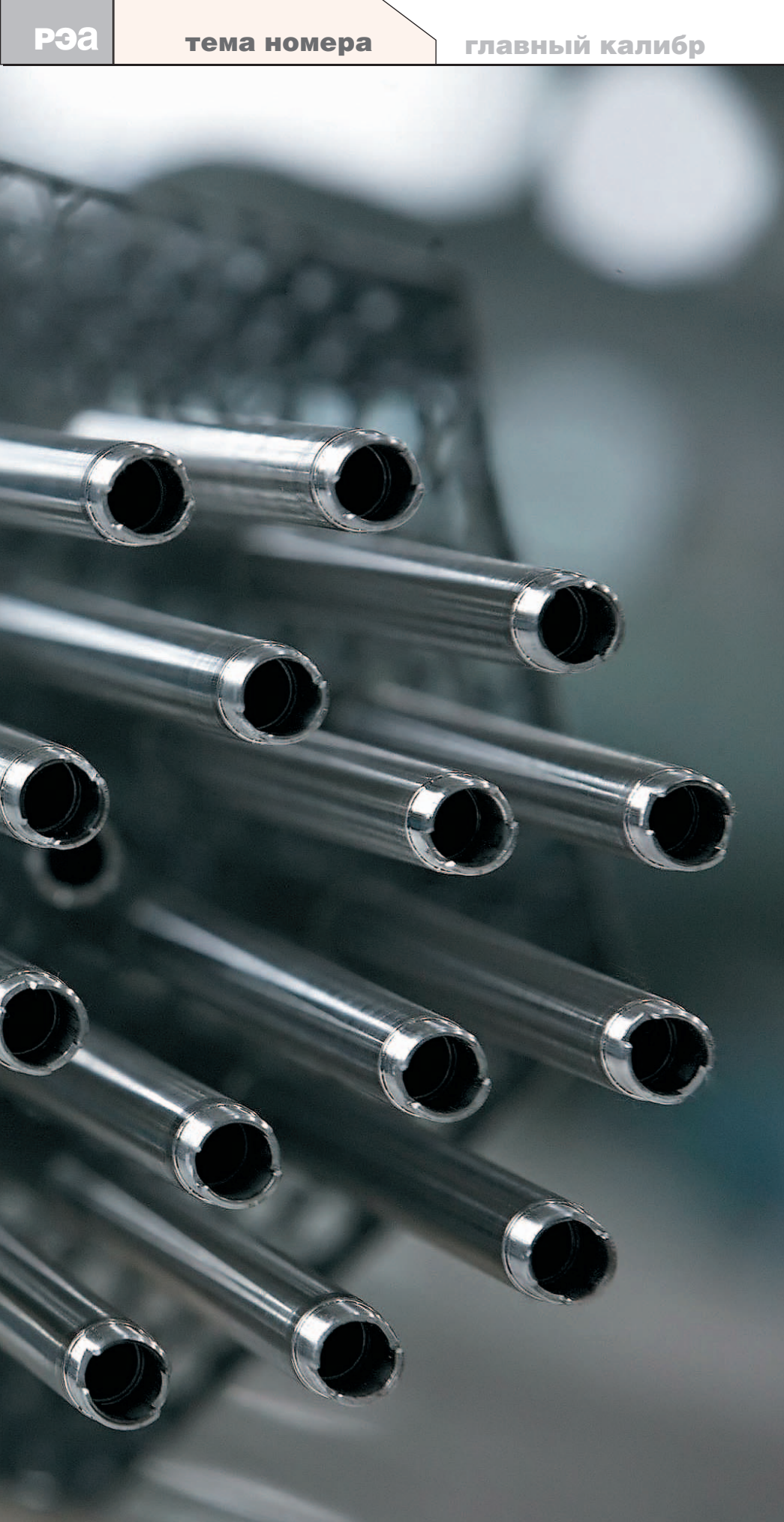
Действительно, суперпозиция низкочастотных мод молекулярного кристалла UC и высокочастотных фононов коллективного движения кислорода, замещающего углерод в решетке монокарбида, оказывается именно тем фактором, который обеспечивает высокий уровень теплопроводности оксикарбида в широком интервале температур. Следовательно, углерод и кремний выполняют двойную роль: 1) жестко соединяют атомы урана между собой ковалентными связями в кристаллической решетке топлива и 2) обеспечивают высокочастотные моды элементарных возбуждений в молекулярном кристалле монокарбида урана. Поэтому можно ожидать, что усиление молекулярных связей в оксикарбиде урана за счет добавки стеклообразующего элемента увеличит его теплопроводность.

С другой стороны, такую топливную матрицу можно сделать атомарно пористой, т. е. иметь равновесные вакансии, за счет чего можно существенно увеличить емкость для продуктов деления (ПД). Более того, растворяя в диоксиде урана углерод и кремний, можно существенно снизить его окислительный потенциал и, следовательно, сделать его гипостехиометрическим. Эта модификация может нарушить порядок регулярной решетки оксидного топлива, создать много точечных дефектов и повысить степень удержания газообразных и твердых ПД.

В отличие от диоксида урана с запрещенной зоной ~ 2 эВ мононитрид и монокарбид урана имеют широкую валентную зону электронов, пересекающуюся с зоной проводимости. Это указывает на сильные ковалентные связи между атомами металла и металлоида в соединениях UN и UC, тогда как для диоксида урана доля этих связей не превышает 20%. Благодаря сильным ковалентным связям обеспечивается большая длина пробега фононов в мононитриде и монокарбиде урана. Тем самым обеспечивается высокая теплопроводность оксикарбида урана.

Базовой конфигурацией для модификации ядерного топлива является диоксид урана. Концепция топливной модификации состоит в последовательном преобразовании топливной композиции UO_2 в гипостехиометрическое





состояние, стабилизированное углеродом и кремнием ($UO_xC_ySi_z$).

Для топлива конкретного компонентного состава $UO_{0.5}C_{0.25}Si_{0.25}$ теоретическая плотность топлива оценивается величиной 13.5 г/см^3 . Для керамического образца с пористостью 5% плотность тяжелого металла составит 11.9 г/см^3 . Скорость коррозии в воде здесь близка к скорости коррозии силицидного топлива U_3Si .

Топливо для быстрых реакторов (БР)

Крупномасштабное развитие атомной энергетики требует решения нескольких основных задач. Одновременно формулируются требования, выполнение которых должно привести к существенному улучшению экономической эффективности БР и к решению задачи топливообеспечения:

- обеспечение средней глубины выгорания топлива в активной зоне до $\sim 100 \div 120 \text{ МВт} \cdot \text{сут/кг}$,
- удешевление и сокращение времени внешнего топливного цикла (до $T_{\text{вн.}} \leq 3 \text{ лет}$)
- обеспечение возможности наработки вторичного ядерного топлива (плутония или урана-233) до величины $200 \div 250 \text{ кг/ГВт}$ (эл. • год).

Важное значение для реакторов с экономической точки зрения имеет глубина выгорания топлива, так как топливная составляющая стоимости электроэнергии и расход топлива обратно пропорциональны выгоранию топлива.

Особенность реакторов БР заключается в том, что увеличение выгорания топлива при КВА ~ 1 возможно без изменения начального обогащения топлива, тогда как в тепловых реакторах требуется практически пропорциональное увеличение обогащения топлива. Ограничение выгорания топлива в БР лимитируется только работоспособностью конструкции твэла.

В настоящее время, на начальном этапе работы энергетических реакторов БР целесообразным является использование технологически и промышленно освоенного оксидного МОКС-топлива $(U \text{ Pu})O_2$.

Однако присущие оксидному топливу недостатки не позволяют обеспечить ряд показателей, важных с точки



зрения повышения нейтронно-физических характеристик и безопасности АЭС.

Поэтому в качестве основных перспективных топливных композиций в России рассматриваются нитридное и металлическое топливо, обладающие высокой теплопроводностью и плотностью по сравнению с оксидным топливом.

Нитридное топливо

Нитридное топливо имеет теплопроводность в области рабочих температур в ~ 7 раз и плотность в 1,3 раза выше, чем у оксидного топлива; хорошую совместимость с оболочками ТВЭЛов из нержавеющей стали и с жидкометаллическими и газовыми теплоносителями — натрием, свинцом, гелием, CO_2 .

Недостатком нитридного топлива является образование экологически опасного C^{14} по реакции $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p}) - \text{C}^{14}$.

Углерод-14 в общей радиотоксичности составляет $\sim 1\%$, что несущественно при связывании углерода в устойчивые соединения РАО. При регенерации облученного топлива необходимо предусмотреть меры по предотвращению образования и выброса в атмосферу летучих соединений углерода.

В нитридном топливе может быть использован азот, обогащенный азотом N^{15} , что значительно уменьшит количество образующегося C^{14} , приведет к экономии нейтронов и топлива и скомпенсирует затраты на обогащение азота.

Нитридное топливо исследовалось в экспериментальных реакторах с различным конструктивным исполнением ТВЭЛов — с газовым и натриевым подслоем при различных уровнях тепловых нагрузок 400 ÷ 700 Вт/см. Наибольший объем испытаний нитридное топливо (UN) прошло в реакторе БР-10 в течение почти 18 лет при максимальных тепловых нагрузках в ТВЭлах 350 ÷ 400 Вт/см до уровня выгорания топлива $\sim 9\%$ т. ат.

Проведенные радиационные испытания ТВЭЛов со смешанным нитридным топливом (UPu)N с гелиевым и натриевым подслоем при тепловых нагрузках в ТВЭлах 400 ÷ 500 Вт/см показали возможность достижения максимального выгорания топлива в ТВЭлах 10 ÷ 12% т. ат.

Основные выводы из проведенных отечественных и зарубежных исследований нитридного топлива:

1. Опыт облучения нитридного топлива показал высокую работоспособность ТВЭЛов с гелиевым и натриевым подслоем до выгораний топлива $\sim 10 \div 12\%$. Лучшие показатели эффективности топливного цикла и безопасности АЭС могут быть получены при использовании конструкции ТВЭЛ с жидкометаллическим подслоем.

2. Результаты исследований термохимических, теплофизических, радиационных и технологических свойств мононитридного и смешанного топлива позволили приступить к проектированию быстрых реакторов с нитридным топливом.

3. Исследования технологических процессов получения и регенерации показали возможность изготовления высококачественного нитридного топлива и его регенерации «сухим» или водными методами.

4. Концентрация углерода и кислорода в топливе не должна превышать 0,15% — с целью исключения науглероживания стальных оболочек.

5. Учитывая перспективу использования нитридного топлива, целесообразно продолжить радиационные испытания ТВЭЛов с нитридным топливом.

Металлическое топливо

Металлическое топливо имеет теплопроводность в области рабочих температур на 11% и плотность на 30% выше, чем у нитридного топлива. Основными недостатками металлического урана по сравнению с керамикой и нитридным топливом являются:

- низкая температура плавления ($T_{\text{пл}} \sim 1020^\circ\text{C}$);
- при температуре топлива 705°C происходит образование эвтектики со стальной оболочкой ТВЭЛов.

В условиях облучения скорость распухания металлического урана во много раз выше керамического, что обусловлено значительным вкладом газового распухания уже при температурах топлива 550 ÷ 600 °С, вследствие высокой ползучести металлического урана при этих температурах. Высокая скорость газового распухания (более 10% на 1% т. ат.) топлива приводит к высокому уровню давления топлива на оболочку, что существенно ограничивает допустимый уровень выгорания топлива.

Поэтому с начала исследований шли поиски легированного уран-плутониевого сплава с повышенной температурой плавления и отсутствием взаимодействия со стальной оболочкой ТВЭЛов.

На основании многочисленных поисковых исследований наиболее перспективным считается сплав U-Pu-Zr (содержание Zr 10 ÷ 15% вес), при этом плотность топлива по тяжелым ядрам уменьшается и составляет $\sim 15 \text{ г/см}^3$.

Вопросы, требующие дальнейшего изучения:

- для нормальных условий эксплуатации требуется обоснование ресурса работы ТВЭЛов и определение миграции Zr, в результате которой образуется зона с пониженной температурой плавления;
- практически не исследованы процессы, происходящие в аварийных режимах.

Сегодняшний уровень отечественных проработок металлического топлива говорит о возможности рассмотрения металлического топлива U или U-Pu-Zr в качестве материала только для зон воспроизводства, а также в виде отдельных вставок в гетерогенных активных зонах БР.

В заключение следует отметить:

1. Основной проблемой разработки БР на ближайшие 10 ÷ 15 лет является создание экономичного, экологически приемлемого замкнутого цикла, включая дистанционное изготовление ТВЭЛов, ТВС с высокофоновым плутониевым топливом и захоронение РАО. Только после создания замкнутого топливного цикла можно будет оценить экономические показатели АЭС с БР.

2. АЭС с реакторами БР не конкурируют с АЭС с реакторами ВВЭР, а будут являться необходимой частью ядерной энергетической системы, по крайней мере, до конца 21 века, так как до 2030 – 2035 гг. в России планируется ввод ~ 60 ГВт АЭС с реакторами ВВЭР, срок службы которых составляет 60 лет.

От технико-экономических показателей АЭС с ВВЭР и АЭС с БР будет зависеть их соотношение в системе ядерной энергетики. 