8. ОРУЖЕЙНЫЙ ПЛУТОНИЙ

8.1 Способы получения изотопов плутония

Изотопы плутония получают в урановых промышленных реакторах на медленных нейтронах по реакции (n, γ). Потребность в ^{239}Pu постоянно возрастает (в начале 21-го века ежегодный прирост составлял 100 т.). Важную роль в получении ^{230}Pu играют реакторы-размножители на быстрых нейтронах. Изотопы плутония также образуются при испытаниях ядерного оружия.

Наиболее важный в практическом отношении изотоп ^{239}Pu получают в ядерных реакторах при длительном облучении нейтронами природного или обогащенного урана:

$$^{238}U(n,\gamma)^{239}U \xrightarrow[23.5\ мин]{\beta^-} {}^{239}Np \xrightarrow[2.33\ сут]{\beta^-} {}^{239}Pu$$

При захвате нейтронов ^{239}Pu образуются более тяжёлые изотопы плутония с массовым числом. 240-242:

$$^{239}Pu(n,\gamma)^{240}Pu(n,\gamma)^{241}Pu(n,\gamma)^{242}Pu$$

Одновременно в результате ядерной реакции образуется ^{238}Pu:

$$^{238}U(n,2n)^{237}U \xrightarrow[6.8\ сут]{\beta^-} {}^{237}Np(n,\gamma)^{238}Np \xrightarrow[2.1\ сут]{\beta^-} {}^{238}Pu$$

Обычно содержание ^{239}Pu в смеси составляет 90-95%, ^{240}Pu-1-7%, содержание других изотопов не превышает десятых долей процента. Тяжёлые долгоживущие изотопы Pu получают при длительном облучении нейтронами ^{239}Pu. Выход ^{242}Pu составляет несколько десятков процентов, а ^{244}Pu - доли процента от содержания ^{242}Pu. Весовые количества изотопно чистого ^{238}Pu образуются при облучении нейтронами ^{237}Np. Лёгкие изотопы плутония с массовыми числами 232-237 обычно получают на циклотроне при облучении изотопов урана α-частицами.

Самым известным оружейным изотопом плутония является ^{239}Pu, менее известно, что ^{241}Pu, нарабатываемый в реакторе из ^{240}Pu, так же способен к самопроизвольному делению и, следовательно, при случае может стать оружейным. Далее мы под оружейным будем понимать ^{239}Pu с примесью ^{240}Pu.

Рассмотрим процессы, происходящие в уране в ходе его облучения реакторными нейтронами. С точки зрения накопления плутония, основные превращения связаны с образованием изотопа ^{239}Pu. Но важны и другие побочные реакции, поскольку ими определяется выход и чистота целевого продукта. Относительное содержание ^{239}Pu более тяжелых изотопов ^{240}Pu, ^{241}Pu, ^{242}Pu, а также ^{238}Pu, ^{237}Np, ^{241}Am и других трансплутониевых элементов зависит от дозы нейтронного облучения урана (времени пребывания урана в реакторе). Сечения захвата нейтронов реактора изотопами плутония достаточно велики, чтобы вызвать последовательные реакции *(n, γ)* даже при малых концентрациях ^{239}Pu в уране. В **Табл.** приведены данные, характеризующие процесс образования изотопов плутония при облучении ^{238}U нейтронами.

Плутоний, выделяемый из облучённого урана, в качестве основной примеси к ^{239}Pu содержит ^{240}U, образующийся главным образом по реакции ^{239}Pu(n,γ)^{240}Pu.

Табл. 23. Изотопный состав плутония, выделенного из облучённого природного урана.

Количество образовавшегося плутония, *г* Pu/*кг* U	Содержание изотопов в плутонии, вес. %			
	Pu^{239}	Pu^{240}	Pu^{241}	Pu^{242}
0,5	97	2,9	0,14	—
1,0	93,6	5,6	0,60	0,02
1,5	90	8,4	1,4	0,06

Содержание ^{241}Pu в облучённом уране невелико и может быть вычислено по формуле:

$$y = 0{,}0168 \cdot x^{2{,}05},$$

где y – содержание ^{241}Pu в день окончания облучения, вес.%; x – содержание ^{240}Pu, определяемое стехиометрическим методом, вес. %.

^{241}Pu претерпевает в основном β-распад с образованием ^{241}Am, который сбрасывается в процессе химико-технологической переработки урановых блоков (^{241}Am, однако, постепенно снова накапливается в очищенном плутонии. Так, например, α-активность металлического плутония, содержащего 7,5% ^{240}Pu, через год увеличивается на 2% за счёт образования ^{241}Am). ^{241}Pu обладает большим сечением деления на нейтронах реактора, составляющим - 1100 барн, что имеет значение в использовании плутония в качестве реакторного горючего. Наряду с тяжёлыми изотопами плутония в уране образуется ^{238}Pu:

$$^{238}U(n,2n)^{237}U \xrightarrow{\beta^-} {}^{237}Np$$

$$^{235}U(n,\gamma)^{236}(n,\gamma) \xrightarrow{\beta^-} {}^{237}Np$$

$$^{237}Np(n,\gamma)^{238}U \xrightarrow{\beta^-} {}^{238}Pu$$

Относительный выход ^{238}Pu определяется по формуле:

$$y=(1{,}2+0{,}59x^{1{,}66})\cdot 10^{-3},$$

где y – содержание ^{238}Pu в день окончания облучения, вес.%; x - содержание ^{240}Pu, вес.%.

Расчёты показывают, что концентрации в ^{238}Pu в образце, содержащем 5,6% ^{240}Pu составляет 0,0115%. Эта величина вносит довольно значительный вклад в суммарную α-активность препаратов, поскольку период полураспада ^{238}Pu равен 86,4 года. Выход ^{236}Pu в процессе облучения урана составляет ~10^{-9} – 10^{-8}%. ^{236}Pu образуется в результате реакции

$$^{237}Np(n,2n)^{236}Np \xrightarrow{\beta^-} {}^{236}Pu.$$

Долгоживущие изотопы плутония - ^{242}Pu и ^{244}Pu образуются при длительном (около ста дней и более) облучении нейтронами ^{239}Pu. При этом выход ^{242}Pu достигает нескольких десятков процентов, в то время как количество образовавшегося ^{244}Pu составляет доли процента от ^{242}Pu (**Рис. 25**). Одновременно получаются америций, кюрий и другие трансплутониевые, а также осколочные элементы.

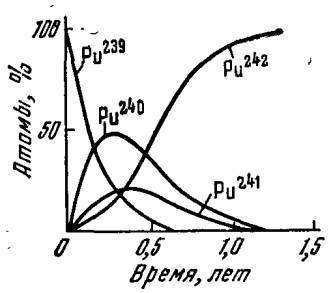

Рис. 25. Изменение соотношения изотопов плутония в процессе длительного облучения ^{239}Pu потоком нейтронов $3\cdot10^{14}$ н/см^2·с. На рисунке не показаны выходы трансплутониевых и осколочных элементов, которые образуются в больших количествах.

Как уже упоминалось, из ^{241}Pu образовавшегося в ходе облучения нейтронами урана путём β-распада образуется ^{241}Am, который в свою очередь вступает в реакции с нейтронами, образуя ^{238}Pu и ^{242}Pu:

Этот процесс открывает возможность получения препаратов плутония с относительно низкой удельной активностью, поскольку выгорает ^{241}Am – сильный γ-излучатель.

8.2 Деление плутония

Как уже неоднократно упоминалось, ^{239}Pu, ^{240}Pu и ^{241}Pu – делящиеся изотопы, причём ^{239}Pu делится нейтронами любых энергий.

Поскольку с уменьшением скорости нейтронов вероятность нахождения их вблизи ядра возрастает, сечение реакции деления нейтронов σ обычно обратно пропорционально скорости нейтронов (закон 1/v):

$$\sigma \approx \frac{1}{v} \approx \frac{1}{\sqrt{E}}.$$

В реальности этот закон выполняется только в области низких энергий нейтронов.

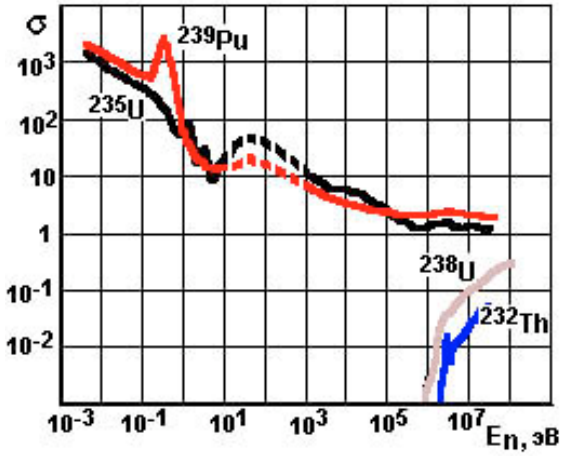

Рис. 26. Зависимость от энергии сечения деления ^{235}U и ^{238}U, ^{239}Pu и ^{232}Th (пунктиром обозначена область резонансов).

В некоторых случаях наблюдается немонотонный ход зависимости сечения деления от энергии налетающей частицы, обусловленный резонансной зависимостью вероятности деления образующегося составного ядра от энергии его возбуждения. При бомбардировке нейтронов малых энергий удаётся наблюдать расщепление широких резонансов на несколько более узких, что позволяет определять уровни составного ядра.

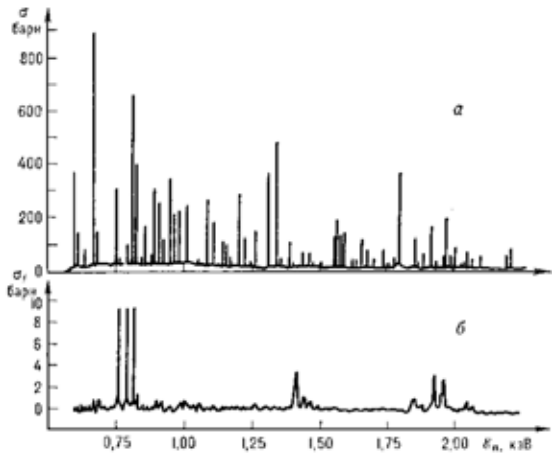

Рис. 27. Резонансная структура сечения деления плутония-240 нейтронами: а – полное сечение реакции захвата ядром нейтрона; б – сечение деления.

Из сравнения энергетической зависимости полного сечения захвата нейтрона ядром ^{240}Pu (**Рис. а**) и сечения деления (**Рис. б)** следует, что уровни составного ядра с большими делительными ширинами образуют группы. В сечение деления ^{240}Pu возникает чётко выраженная резонансная структура, которая наблюдается и для некоторых других ядер.

Основным типом деления является деление на два осколка.

Энергетический спектр осколков имеет асимметричный характер: поскольку образующиеся осколки имеют различные массы, то, следовательно, имеют различную величину кинетической энергии. Между кинетическими энергиями Е осколков и их массами М существует следующее соотношение, вытекающее из закона сохранения импульса:

$$E_л/E_т=M_т/M_л$$

где $E_л$ и $M_л$ и относятся к лёгкому осколку, а $E_т$ и $M_т$ - к тяжелому. Пользуясь этим соотношением, можно из распределения осколков по энергии получить массовое распределение осколков.

Кинетическая энергия осколков деления сравнительно мало зависит от энергии возбуждения делящегося ядра, так как излишняя энергия обычно, идет на возбуждение внутреннего состояния осколков.

При делении образуется несколько десятков пар осколков преимущественно неравной массы, т.е. наиболее характерная особенность деления при небольшой энергии возбуждения – асимметрия распределения осколков по массе. Для деления ^{235}U наиболее вероятным (~ 6 ÷ 7%) оказывается выход осколков с массовыми числами 95 и 141, т.е. массы осколков относятся как 2:3. Вероятность симметричного деления в 600 раз меньше. В этом случае распределение осколков по массам имеет двугорбый вид (**Рис. 28**). С увеличением энергии возбуждения возрастает вероятность симметричного деления, а вероятность асимметричного изменяется слабо. Для большей энергии возбуждения наиболее вероятным становится симметричное деление, т.е. распределение по массам становится одногорбым.

Отношение выхода масс в «пике» и «провале» распределения зависит также от z^2/A делящегося ядра. Для деления нейтронами ^{230}Th оно $5\cdot10^4$, для ^{235}U – $6\cdot10^{26}$ для спонтанного деления ^{254}Cf – 150. С ростом Z и A делящегося ядра «пик» тяжёлого осколка в массовом распределении стоит на месте, а «пик» лёгкого осколка приближается к «пику» тяжёлого. Для спонтанного деления ^{258}Fm наблюдается одногорбое распределение, т.е. наиболее вероятно симметричное деление.

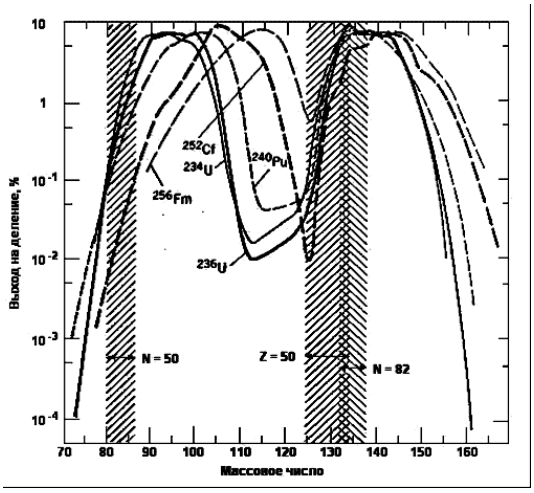

Рис. 28. Массовые распределения осколков деления тепловыми нейтронами ^{233}U, ^{235}U, ^{239}Pu и спонтанного деления ^{252}Cf, ^{256}Fm. Заштрихованные области указывают приблизительное расположение ядер с замкнутыми оболочками

Основной вклад в энерговыделение вносит кинетическая энергия осколков и, следовательно, пропорциональна величине $Z^2/A^{1/3}$ делящегося ядра. Средняя суммарная кинетическая энергия осколков практически не зависит от энергии возбуждения. В момент образования осколки сильно деформированы и избыток потенциальной энергии деформации переходит в энергию возбуждения осколков. Это возбуждение снимается «испарением» нейтронов и излучением γ-квантов. Среднее число нейтронов, испускаемое каждым осколком, νср, сильно зависит от массы осколка. Для всех ядер с Z в области Th, Cf $\nu_{ср}$ растёт с массой как для лёгкого, так и тяжёлого осколка. Наименьшим $\nu_{ср}$ обладает тяжёлый осколок с массой, близкой к массе дважды магического ядра (A=132, Z=50). Полное $\nu_{ср}$ от массы зависит слабо. Наблюдается сильная корреляция $\nu_{ср}$ и суммарной кинетической энергии осколков. Величина $\nu_{ср}$ увеличивается с ростом Z делящегося ядра. Для спонтанного деления $\nu_{ср}$ увеличивается от 2 для Pu до 4 для Fm.

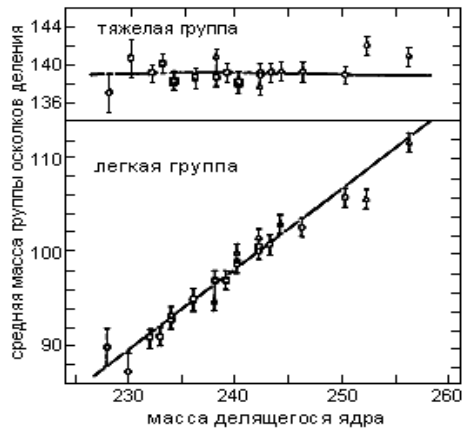

Рис. 29. Зависимость средних масс лёгкой и тяжелой групп осколков от массы делящегося ядра

Образующиеся при делении осколки должны быть β-радиоактивными и могут испускать нейтроны. Это следует из того, что по мере увеличения заряда ядра отношение числа нейтронов в ядре к числу протонов увеличивается из-за увеличения кулоновской энергии протонов. Поэтому ядра-осколки будут иметь при делении такое же отношение N/Z, как у урана, т. е. будут перегружены нейтронами, а такие ядра испытывают β-распад (ввиду большой перегрузки нейтронами продукты этого распада также β-активны, так что осколки деления дают начало длинным цепочкам из радиоактивных ядер). Кроме того, часть энергии может уноситься в результате непосредственного испускания нейтронов деления или вторичных нейтронов. Средняя энергия нейтронов деления составляет около 2 МэВ.

Среднее число нейтронов $\bar{\nu}$, испускаемых за один акт деления, зависит от массового числа делящегося ядра и растет с ростом Z. Если для ядра ^{240}Pu $\bar{\nu}$= 2.2, то уже для ^{252}Cf $\bar{\nu}$= 3.8. Так как ^{252}Cf к тому же достаточно быстро распадается (по отношению к спонтанному делению T=85 лет, однако реально его время жизни определяется α-распадом и составляет 2.64 года), то он является интенсивным источником нейтронов.

Большинство нейтронов деления испускается за время $<4\cdot10^{-14}$ с. Эти нейтроны, называемые мгновенными, испаряются из осколков изотропно. Из-за движения осколков, угловое распределение нейтронов относительно импульса лёгкого осколка анизотропно. Около 10^{-15}% мгновенных нейтронов имеет изотропное распределение. Обычно эти нейтроны либо вылетают в момент образования осколков, либо испаряются не полностью ускоренными осколками. В лабораторной системе координат энергетический спектр описывается максвелловским распределением. После «испарения» нейтронов у осколков остаётся энергия возбуждения, которая уносится γ-квантами.

Рис. 30. Сечение деления ядер урана и плутония нейтронами.

После «испарения» мгновенных нейтронов как лёгкие, так и тяжёлые осколки всё ещё перегружены нейтронами. Поэтому каждый осколок претерпевает в среднем 3-4 акта β-распада, которые могут сопровождаться запаздывающими нейтронами и γ-квантами. Запаздывающие нейтроны составляют 1% всех нейтронов. Они вылетают из осколков с задержкой от 1 мин до несколько сотых 1 с. Эти нейтроны возникают при β-распаде некоторых осколков, например, ^{87}Br и ^{137}I, у которых энергия β-распада больше энергии связи нейтрона. При увеличении энергии нейтронов сечение захвата $\sigma_{захв}$, а следовательно, и сечение деления $\sigma_{дел}$ уменьшается, причем всегда $\sigma_{дел}<\sigma_{захв}$. Сечения деления рассматриваемых здесь нуклидов в широком интервале энергий имеет резонансный характер (**Рис. 30**).

Значения ν для некоторых нуклидов приведены в **Табл. 24**.

Табл. 24. Число вторичных нейтронов, возникающих при делении некоторых нуклидов.

Вынужденное деление	^{233}U	^{235}U	^{239}Pu
	2,58	2,47	3,05
Спонтанное деление	^{240}Pu	^{244}Cm	^{252}Cf
	2,26	2,80	3,87

При делении урана вторичные нейтроны уносят в среднем 5 МэВ энергии.

Величина ν зависит от энергии нейтронов (**Табл.**). Не каждый захват нейтрона ядром приводит к делению ядра. Некоторую часть нейтронов ядра захватывают по реакции (n,γ) без какого-либо деления. Сечение такого процесса σ_c. Поэтому число нейтронов η, идущих на деление, меньше ν и определяется отношением поперечного сечения процесса деления σ_f к общему поперечному сечению $\sigma_f+\sigma_c$ (**Табл**. **25**).

Табл. 25. Ядерные свойства делящихся изотопов

Изотоп	0,025 эв				1 Мэв			
	σ_f барн	σ_c барн	ν	η	σ_f барн	σ_c барн	ν	η
^{239}Pu	740	290	2,9	2,1	2	0,1	3	3
^{233}U	530	60	2,5	2,3	2	0,1	2,5	2,5
^{235}U	580	110	2,5	2,1	1,3	0,1	2,5	2,5
^{238}U	0	2,7	0	0	0,5	0,15	-	-
Природный уран	3,9	3,5	2,5	1,3	0,01	0,15	2,5	0,2

Поперечные сечения много меньше для нейтронов высокой энергии, особенно по отношению к (n,γ) захвату. Это означает, что при высокой энергии нейтронов большая часть их захватывается делящимся материалом и вызывает деление, а меньшая часть остаётся в топливе за счёт (n,γ) захвата.

В **Табл.** 26 представлены основные параметры делящихся изотопов. Полное сечение характеризует вероятность взаимодействия любого типа между нейтроном и данным ядром. Сечение деления характеризует вероятность деления ядра нейтроном. От того, какая доля ядер не участвует в процессе деления, зависит выход энергии на один поглощенный нейтрон. Число нейтронов, испускаемых в одном акте деления, важно с точки зрения поддержания цепной реакции. Число новых нейтронов, приходящихся на один поглощенный нейтрон, важно, поскольку характеризует интенсивность деления. Доля запаздывающих нейтронов, испускаемых после того, как деление произошло, связана с энергией, запасенной в данном материале.

Табл. 26. Характеристики делящихся изотопов

Изотоп	Уран-235		Уран-233		Плутоний-239	
Энергия нейтрона	1 МэВ	0,025 эВ	1 МэВ	0,025 эВ	1 МэВ	0,025 эВ
Полное сечение	6,6±0,1	695±10	6,2±0,3	600±10	7,3±0,2	1005±5
Сечение деления	1,25±0,05	581±6	1,85±0,10	526±4	1,8±0,1	751±10
Доля ядер, не участвующих в делении	0,077±0,002	0,174±0,01	0,057±0,003	0,098±0,004	0,08±0,1	0,37±0,03
Число нейтронов, испускаемых в одном акте деления	2,6±0,1	2,43±0,03	2,65±0,1	2,50±0,03	3,03±0,1	2,84±0,06
Число нейтронов на один поглощенный нейтрон	2,41±0,1	2,07±0,02	2,51±0,1	2,28±0,02	2,8	2,07±0,04
Доля запаздывающих нейтронов, %	(0,64±0,03)	(0,65±0,02)	(0,26±0,02)	0,26±0,01	0,21±0,01	0,22±0,01
Энергия деления, МэВ	200		197		207	
Все сечения приведены в барнах (10^{-28}м^2).						

Данные таблицы показывают, что каждый делящийся изотоп имеет свои преимущества. Например, в случае изотопа с наибольшим сечением для тепловых нейтронов (с энергией 0,025 эВ) нужно меньше топлива для достижения критической массы при использовании замедлителя нейтронов. Поскольку наибольшее число нейтронов на один поглощенный нейтрон возникает в плутониевом реакторе на быстрых нейтронах (1 МэВ), в режиме воспроизводства лучше использовать плутоний в быстром реакторе или ^{233}U в тепловом реакторе, чем ^{235}U в реакторе на тепловых нейтронах.

Ядерные цепные реакции - *ядерные реакции, в которых частицы, вызывающие их, образуются как продукты этих реакций. Осуществляются, если при делении ядра вылетает больше 1 нейтрона.*

Как уже упоминалось, в процесс деления ядер под действием нейтронов освобождается 2 или 3 нейтрона. При благоприятных условиях эти нейтроны могут попасть в другие ядра и вызвать их деление. На этом этапе появятся уже от 4 до 9 нейтронов, способных вызвать новые распады ядер урана и т.д. Такой лавинообразный процесс называется ***цепной реакцией***. Схема развития цепной реакции деления ядер урана представлена на **Рис.** . Благодаря большой скорости процесса деления число делящихся ядер за короткое время может быть доведено до огромной величины, в результате чего выделится колоссальная внутриядерная энергия.

Возникновение вторичных нейтронов в процессе деления тяжелых ядер нейтронами позволяют осуществить процесс цепной реакции деления. Цепной процесс характерен тем, что в его основе лежит экзоэнергетическая реакция, возбуждаемая нейтроном, которая порождает вторичные нейтроны. В этом случае появление нейтрона в делящейся среде вызывает цепь следующих друг за другом реакций деления, которая продолжается до обрыва вследствие потери нейтрона – носителя процесса. Основных причин потерь две: поглощение нейтрона ядром без испускания вторичных нейтронов (например, радиационный захват) или уход нейтрона за пределы объема вещества (называемый активной зоной), в котором протекает цепной процесс деления. Если в результате реакции возникает более одного нейтрона, которые в свою очередь вызывают деление, то такая реакция является разветвленной реакцией.

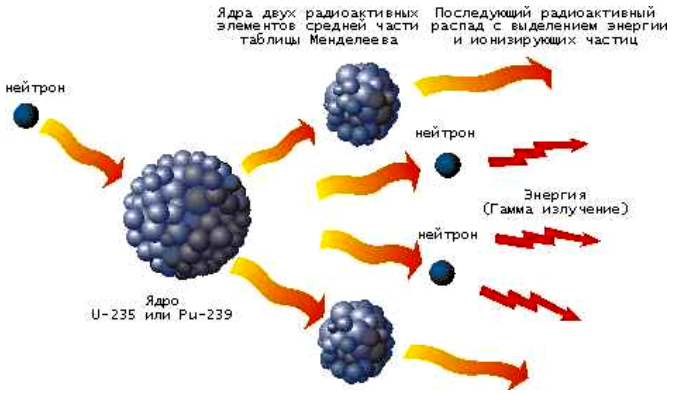

Рис. 31. Схема развития цепной реакции деления

Средняя длина пробега нейтрона от точки рождения до точки, в которой нейтрон производит деление, является макроскопической величиной. Поэтому цепная реакция деления является макроскопическим процессом. Каждый нейтрон, участвующий в цепном процессе, проходит цикл обращения: рождается в реакции деления, некоторое время существует в свободном состоянии, затем либо теряется, либо порождает новый акт деления и дает нейтроны следующего поколения. Нейтрону необходимо, хотя и малое, но конечное время для прохождения через цикл обращения. Среднее время τ, полученное усреднением по большому числу нейтронных циклов деления, называется временем нейтронного цикла или средним временем жизни нейтронов.

В цепном процессе, число нейтронов возрастает во времени по экспоненциальному закону:

$$N(t) = N_0 \exp\left(\frac{k-1}{\tau}t\right), \qquad (7)$$

где N_0 = N(t = 0) - число нейтронов в начальный момент наблюдения, k – коэффициент размножения нейтронов.

Проанализируем выражение (7).

Если k > 1, то число нейтронов в активной зоне будет непрерывно увеличиваться и процесс цепной реакции, раз возникнув, будет сам собой развиваться во времени. Процесс с k > 1 носит название надкритического режима.

При k = 1 количество нейтронов в активной зоне и число происходящих в единицу времени делений не изменяются со временем и остаются постоянными. Такой режим носит название критического режима.

Наконец, если k<1, то процесс размножения нейтронов затухает и называется подкритическим режимом.

Таким образом, для протекания самоподдерживаемой цепной реакции деления необходимо, чтобы k≥1. Величина k зависит от многих параметров: нуклидного состава активной зоны, ее формы и размера, от энергетического спектра нейтронов, вызывающих деление. Расчет величины k является сложной инженерно-физической задачей и требует знания огромного числа констант, определяющих протекание цепного процесса.

Коэффициент размножения - *важнейшая характеристика цепной реакции деления, показывающая отношение числа нейтронов данного поколения к числу нейтронов предыдущего поколения в бесконечной среде. Часто используется и другое определение коэффициента размножения - отношение скоростей генерации и поглощения нейтронов.*

Самоподдерживающаяся цепная реакция деления - *цепная реакция в среде, для которой коэффициент размножения больше или равен единице.*

Рассмотрим цепной процесс, у которого время нейтронного цикла $\tau \approx 10^{-3}$ с. Такая величина τ характерна для реакторов на тепловых нейтронах. Если предположить, что коэффициент размножения k=1,005, то за одну секунду число нейтронов, согласно (7). увеличится в

$$\frac{N(t)}{N_0} = \exp\left(\frac{k-1}{\tau}t\right) = e^5 \approx 150 \ раз \qquad (10)$$

В такое же число раз возрастет количество делений в единицу времени и, следовательно, мощность установки.

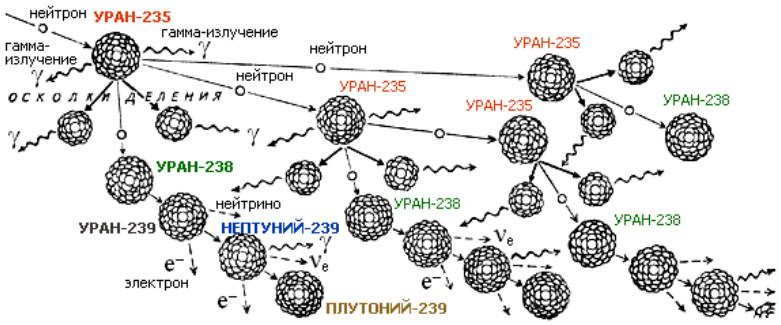

Рис. 32. Образование плутония в цепной реакции деления урана.

Ядерная цепная реакция осуществляется на уране, обогащенном ^{235}U, и в чистом ^{235}U. В этих случаях она идёт и на быстрых нейтронах. При поглощении нейтронов в ^{238}U образуется ^{239}Np, а из него после двух β-

распадов - ^{239}Pu, который делится под действием тепловых нейтронов, с n = 2,9. При облучении нейтронами ^{232}Th образуется делящийся на тепловых нейтронах ^{233}U. Кроме того, цепная реакция возможна в ^{231}Pu и изотопах Cm и Cf с нечётным массовым числом. Из n нейтронов, образующихся в 1 акте деления, один идёт на продолжение цепной, и, если снизить потери, для воспроизводства ядерного горючего может сохраниться больше одного нейтрона, что может привести к расширенному воспроизводству горючего.

В «быстрых» реакторах и в атомной бомбе осуществляется ядерная цепная реакция на **быстрых** нейтронах. При взаимодействии быстрых нейтронов деления с ядрами ^{235}U, ^{233}U и ^{239}Pu преобладающим видом взаимодействия является деление: упругое и неупругое рассеяние не препятствует делению этих ядер, т.к. они могут делиться и нейтронами, испытывающими рассеяние и потерявшими часть энергии. Единственный процесс обрыва цепей – уход нейтронов за пределы блока из делящегося вещества.

На каждый поглощенный нейтрон приходится в среднем ν_{f5} рожденных нейтронов. В результате количество нейтронов второго поколения составит: $N_2 = N_0*\mu*\varphi_8*\theta_5*\nu_{f5}$, где ν_{f5} - *количество нейтронов деления на один акт захвата нейтрона ядром* ^{239}Pu. В данном случае мы не рассматривали потери нейтронов связанные с вылетом за пределы среды размножения (утечку нейтронов), поэтому данная формула справедлива только для бесконечной среды.

Коэффициент размножения:

$$K_{бес} = \frac{N_0 * \mu * \varphi_8 * \theta_5 * \nu_{f5}}{N_0} = \mu * \varphi_8 * \theta_5 * \nu_{f5}$$

$K_{бес}$ **- формула четырех сомножителей** - характеризует среду в которой происходит размножение если $K_{бес} < 1$ то цепная реакция невозможна, ни при каких условиях. Если $K_{бес} > 1$ то можно подобрать размеры и массу среды таким образом, чтобы реакция была осуществима, поскольку от размеров и массы зависит количество нейтронов вылетающих за пределы среды и не участвующих в цепной реакции. Если обозначить за $P_{ут}$ - вероятность нейтрона избежать утечки из реактора то условием протекания реакции является: $K_{эф} = P_{ут} * K_{бес} = 1$ или $P_{ут} = 1/ K_{бес}$.

Приведем возможные значения коэффициентов: для среды с параметрами $\mu = 1.05$; $\varphi_8 = 0.823$; $\theta_5 = 0.823$; $\nu_{f5} = 2.071$; коэффициент размножения $K_{бес} = 1.54$, чтобы в такой среде протекала цепная реакция, вероятность избежать утечки должна быть не менее $P_{ут} = 0.65$. В этом случае количество нейтронов во втором поколении составит: $N_2 = N_0 * K_{бес} * P_{ут} = 100*1.54*0.65 = 100$ следовательно $K_{эф} = 1$.

Величина утечки определяет критическую массу и критические размеры. Эти параметры зависят также от формы среды (например, заряда в атомной бомбе). Для шара они меньше чем для цилиндра или параллелепипеда.

Критическая масса *– минимальная масса делящегося вещества, обеспечивающая протекание самоподдерживающейся ядерной цепной реакции деления. Критическая масса тем меньше, чем меньше период полураспада деления и чем выше обогащение рабочего элемента делящимся изотопом.*

Критическую массу могут образовывать только нечётные изотопы. Лишь ^{235}U встречается в природе, а ^{239}Pu, ^{241}Pu и ^{233}U - искусственные, они образуются в ядерном реакторе (в результате захвата нейтронов ядрами ^{238}U и ^{232}Th с двумя последующими β - распадами). Критическая масса зависит от сечения реакции деления нуклида. Так, для создания атомной бомбы необходимо примерно 3 кг плутония или 8 кг ^{235}U (при имплозивной схеме и в случае чистого ^{235}U).

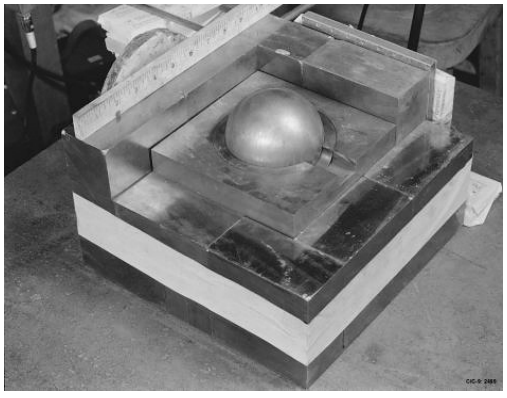

Рис. 33. Критическая масса плутония в отражателе нейтронов (блоки карбида вольфрама).

Для высокообогащенного урана значение критической массы составляет 52 кг, для оружейного плутония - 11 кг. В нормативных документах по охране ядерных материалов от хищения указываются критические массы: 5 кг ^{235}U или 2 кг плутония (для имплозивной схемы атомной бомбы). Для пушечной схемы критические массы намного больше. На базе этих значений строится интенсивность защиты делящихся веществ от нападения террористов.

В зависимости от конкретного вида делящегося вещества количество материала, которое составляет критическую массу, может изменяться в широком диапазоне и зависит от плотности, характеристик (вид материала и толщина) отражателя. Критическую массу можно существенно уменьшить, окружив образец делящегося вещества слоем материала, отражающего нейтроны (бериллий, природный уран, вольфрам, свинец, железо). Отражатель возвращает значительную часть нейтронов, вылетающих через поверхность образца. Например, если использовать отражатель толщиной в 5 см, изготовленный из таких материалов, как уран, железо, графит, критическая масса составит половину от критической массы «голого шара». Более

толстые отражатели будут далее уменьшать требуемую критическую массу. Особенно эффективен бериллий, обеспечивающий критическую массу в 1/3 от стандартной критической массы.

При прочих равных условиях минимальные критические размеры должны быть у зарядов сферической формы. Система на тепловых нейтронах имеет самый большой критический объем и минимальную критическую массу. Критическая масса зависит от природы и процентного содержания любых присутствующих инертных разбавителей. Ещё сильнее критическая масса зависит от типа и состава сплавов плутония, поскольку допирующие примеси не только улучшают механические и химические свойства материала атомного заряда, но и модифицируют его ядерные характеристики. Естественно, критическая масса зависит от химической формы оружейного материала (металл, оксид, нитрид и т.п.), от вида и концентрации легирующих компонентов, от плотности и морфологических характеристик сплава.

Для сравнения приведем следующие примеры критических масс:

10 кг ^{239}Pu – шар радиусом 10 см - металл в α-фазе (плотность 19,86 г/см^3);

52 кг 94%-го ^{235}U (6% ^{238}U) – шар радиусом 17 см - металл (плотность 18,72 г/см^3);

110 кг UO_2 (94% ^{235}U) при плотности в кристаллическом виде 11 г/см^3;

35 кг PuO_2 (94% ^{239}Pu) - при плотности в кристаллическом виде 11,4 г/см^3.

Критическая масса обратно пропорциональна квадрату плотности материала, что позволяет, например, при увеличении плотности вдвое, уменьшить критическую массу в четыре раза. Нужную степень подкритичности можно получить уплотнением делящегося материала за счет взрыва заряда обычного взрывчатого вещества, выполненного в виде сферической оболочки, окружающей ядерный заряд. Поскольку вероятность захвата нейтронов пропорциональна концентрации ядер, увеличение плотности образца, например, в результате его сжатия, способно привести к возникновению в образце критического состояния. Именно этот способ и применяется в ядерных взрывных устройствах, в которых масса делящегося вещества, находящаяся в подкритическом состоянии переводится в сверхкритическое с помощью направленного взрыва, подвергающего заряд сильной степени сжатия. Минимальное количество делящегося вещества, необходимого для осуществления цепной реакции, зависит в основном от достижимой на практике степени сжатия. Степень и скорость сжатия массы делящегося вещества определяют не только количество расщепляющегося материала, необходимого для создания взрывного устройства, но и мощность взрыва. Использование имплозии позволяет вовлечь в создание ядерного оружия слабо обогащённый и плохоочищенный уран, что способствует распространению в мире оружия массового поражения.

Дело в том, что энергия, выделяющаяся в ходе цепной реакции, приводит к быстрому разогреву массы делящегося вещества и, как результат, к разлету этой массы. Через некоторое время заряд теряет критичность и цепная реакция останавливается. Поскольку полная энергия взрыва зависит от количества ядер, успевших претерпеть деление за время, в течение которого заряд находился в критическом состоянии, для получения достаточно большой мощности взрыва необходимо удерживать массу делящегося вещества в критическом состоянии как можно дольше. На практике это достигается путем быстрого сжатия заряда с помощью направленного взрыва, так что в момент начала цепной реакции, масса делящегося вещества обладает очень большим запасом критичности.

Поскольку в процессе сжатия заряд находится в критическом состоянии, необходимо устранить посторонние источники нейтронов, которые могут дать начало цепной реакции еще до достижения зарядом необходимой степени критичности. Преждевременное начало цепной реакции приведет, во-первых, к уменьшению скорости выделения энергии, а во-вторых, к более раннему разлёту заряда и потере им критичности. После того как масса делящегося вещества оказалась в критическом состоянии, начало цепной реакции могут дать акты спонтанного деления ядер урана или плутония. Однако, интенсивность спонтанного деления оказывается недостаточной для того, чтобы обеспечить необходимую степень синхронизации момента начала цепной реакции с процессом сжатия вещества и для обеспечения достаточно большого количества нейтронов в первом поколении.

Для решения этой проблемы в ядерных взрывных устройствах применяют специальный источник нейтронов, который обеспечивает «впрыск» нейтронов в массу делящегося вещества. Момент «впрыска» нейтронов должен быть тщательно синхронизован с процессом сжатия, так как слишком раннее начало цепной реакции приведет к быстрому началу разлета делящегося вещества и, следовательно, к значительному уменьшению энергии взрыва.

Замечание. Критическая масса отнюдь не мировая константа. Приведённые выше значения носят «теоретический», оценочный характер. Начать с того, что реальный заряд никогда не бывает сферой, в лучшем случае это сферическая оболочка, заполненная внутри чем-то полезным. Чистые металлы тоже никогда не используются, обычно это сплавы, причём специального состава: направленно вводимые добавки изменяют энергетический спектр нейтронов в нужную сторону, размножают и увеличивают плотность нейтронов. Большое значение имеет использование отражающих экранов, которые не просто отражают нейтроны, а размножают их. Не менее важно агрегатное состояние заряда (твёрдое тело, раствор, расплав). В результате реальные критические массы намного

меньше приводимых в учебной литературе: вышеприведённые значения смело можно уменьшать в разы, а то и на порядок. Именно химический состав заряда является основным секретом атомной бомбы.

С практической точки зрения, важнейшими характеристиками делящихся изотопа, определяющими его «качество» являются критические параметры – критическая масса, форма, размер и др.

Критическая масса *– минимальная масса делящегося вещества, при которой в нём может происходить самоподдерживающаяся ядерная реакция деления. Если масса вещества ниже критической, то слишком много нейтронов, необходимых для реакции деления, теряется, и цепная реакция не идёт. При массе больше критической цепная реакция может лавинообразно ускоряться, что приводит к ядерному взрыву. Критическая масса зависит от размеров и формы делящегося образца, так как они определяют утечку нейтронов из образца через его поверхность. Минимальную критическую массу имеет образец сферической формы, так как площадь его поверхности наименьшая. Критическая масса чистого металлического* ^{239}*Ри сферической формы 11 кг (диаметр такой сферы 10 см),* ^{235}U *– 50 кг (диаметр сферы 17 см). Критическая масса также зависит от химического состава образца. Отражатели и замедлители нейтронов, окружающие делящееся вещество, существенно снижают критическую массу. В оружии критическая масса сильно зависит от использованной схемы: критическая масса при имплозии намного меньше, чем при пушечной схеме.*

В **Табл. 9** приведены значения критических масс «голых» шаров изотопов плутония и плотностей материалов. Эти значения имеют скорее теоретическое значение, т.к. в ядерном оружии используется плутоний определённой степени чистоты, причём примеси могут как увеличивать, так и уменьшать критическую массу, форма заряда практически никогда не бывает сплошным «биллиардным шаром», плутоний не находится в α-фазе и, в довершении всего используются сплавы металлов (обычно – сплав галлия с плутонием в δ-фазе неизвестного состава с плотностью ρ= 15,8 г/см^3. В последней строке **Табл. 27** приведены значения критических масс изотопов плутония для плотности δ-фазы, пересчитанные по соотношению:

$$M_{кр}(\rho) = \left(\frac{\rho_0}{\rho}\right)^2 M_{кр}^0$$

Табл. 27. Критические массы изотопов плутония

Изотоп	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu-238
$M_{кр}^0$, кг	10,1	36,95	13,02	85,35	9,75
ρ_0, г/см^3	19,851	19,934	19,84	20,101	19,84
$M_{крδ\text{-}фаза}$, кг	15,94	58,81	20,53	138,14	15,37

Для оценки критической массы смеси различных изотопов используют приближенное соотношение, следующее из элементарных соображений:

$$M_{кр}^{-1/3} = \sum \alpha_i \left(M_{кр}^i\right)^{1/3}$$

где α_i - массовая концентрация i-ого изотопа плутония в смеси; $M_{кр}^i$ - критическая масса i-ого изотопа плутония.

При достижении номинальных значений энерговыработки отработанного ядерного топлива ядерных энергетических реакторов изотопный состав энергетического плутония находится в диапазоне, указанном в **Табл. 27.**

Табл. 27. Диапазон изотопного состава энергетического плутония при номинальных значениях энерговыработки ОЯТ ядерных энергетических реакторов

Изотоп	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu-238
Содержание, %	50-70	20-33	4-18	0,5-6	0,05-2
Pu(PWR), %	55,85	21,9	13,75	6,75	1,75

Табл. 28. Зависимость критической массы плутония от содержания изотопа Pu-240.

Pu-240, %	0	7	10	18	25	30	40	50	100
$M_{кр}$, кг	15,94	17,18	17,76	19,42	21,03	22,3	25,17	29,66	58,81
$M_{кр}/M_{кр,оружPu}$	0,93	1	1,04	1,14	1,23	1,28	1,47	1,735	3,44

Другой физической характеристикой, определяющей качество делящегося материала, является скорость размножения нейтронов в бесконечной среде χ_0, определяемая как $\chi = \frac{d \ln n}{dt}$, где n - плотность нейтронов. Значения χ_0 для различных изотопов плутония приведены в **Табл.** (ρ_0 = 15,8 г/см^3).

Табл. 29. Значения скорости размножения нейтронов в бесконечной среде

Изотоп	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu-238	Pu(реакт)	Pu(оруж)
χ_0, 1/нс	0,25	0,149	0,201	0,098	0,271	0,211	0,243

Для смеси изотопов справедливо соотношение:

Табл. 30. Зависимость скорости размножения нейтронов χ_0 в бесконечной среде от содержания изотопа ^{240}Pu

Pu-240, %	0	7	10	18	25	30	40	50
χ_0, 1/нс	0,25	0,243	0,24	0,232	0,225	0,22	0,21	0,2
χ_0/χ_0WGPu	1,029	1	0,988	0,955	0,926	0,905	0,864	0,823

Замечание. В каком-то смысле, критическая масса (да и критический размер) – это флогистон, т.е. где-то полезная сущность, не имеющая, однако, отношения к реальности. Выше говорится о критической массе плутония порядка 10 кг, но различными ухищрениями её можно довести до нескольких сот грамм!

Табл. 31. Масса ^{239}Pu, необходимая для возникновения цепной реакции

Конструкция	Масса, кг	Диаметр сферы, см.
При максимальном сжатии и рефлекторах	0,8	Около 4
С рефлектором из бериллия	4	Около 7
Производства Израиля	4,4	
"Тринити" (США), Нагасаки, 1945 год	6,1	Около 8
Без рефлекторов и без сжатия	15	11,3

Замечание. В ядерных зарядах не обязательно использовать металлический плутоний – можно и оксид плутония оружейного изотопного состава (критическая масса 27 кг), который получить намного проще, чем металл.

Переработка реакторного плутония с целью выделения чистого изотопа ^{239}Pu для оружейных целей связана с колоссальными техническими издержками и практически нигде не используется. Это относится также и к делящемуся ^{241}Pu, который образуется в реакторе в небольших количествах и имеет более низкую критическую массу, чем ^{239}Pu. Поэтому он используется в атомных зарядах небольшого размера. К сожалению, из-за малого периода полураспада ^{241}Pu атомные гранаты на его основе приходится каждые два года пускать в переработку и отделять образовавшийся ^{241}Am, т.к. этот изотоп не является взрывчатым веществом.

Табл. 325. Самые значимые изотопы для проектирования ядерного оружия:

^{228}Pu $\rightarrow$ (86 лет, альфа-распад) $\rightarrow$ ^{234}U
^{239}Pu $\rightarrow$ (24 360 лет, альфа-распад) $\rightarrow$ ^{235}U
^{240}Pu $\rightarrow$ (6580 лет, альфа-распад) $\rightarrow$ ^{236}U
^{241}Pu $\rightarrow$ (14.0 лет, бета-распад) $\rightarrow$ ^{241}Am
^{242}Pu $\rightarrow$ (370 000 лет, альфа-распад) $\rightarrow$ ^{238}U

Критмассовые параметры являются важнейшей характеристикой материала, определяющей его «качество». Критические массы «голых» шаров изотопов плутония и плотностей материалов приведены в Т**абл. (**в ядерном оружии США используется стабилизированная галлием δ-фаза плутония, имеющая плотность ρ= 15,8 г/см^3). В последней строке таблицы приведены значения критических масс изотопов плутония для плотности δ-фазы, пересчитанные по соотношению:

$$M_{кр}(\rho) = \left(\frac{\rho_0}{\rho}\right)^2 M^0_{кр}$$

Табл. 33. Критические массы изотопов плутония

Изотоп	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu-238
$M_{кр0}$, кг	10,1	36,95	13,02	85,35	9,75
ρ_0, г/см3	19,851	19,934	19,84	20,101	19,84
$M_{крδ\text{-}фаза}$, кг	15,94	58,81	20,53	138,14	15,37

Как правило, при достижении номинальных значений энерговыработки ОЯТ ядерных энергетических реакторов изотопный состав энергетического плутония находится в диапазоне, указанном в **Табл. 34.** В этой таблице приведен также типичный изотопный состав плутония, содержащегося в ОЯТ тепловых реакторов, полученный с помощью разработанной приближенной численной модели.

Табл. 34. Диапазон изотопного состава энергетического плутония при номинальных значениях энерговыработки ОЯТ ядерных энергетических реакторов

Изотоп	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu-238
Содержание, %	50-70	20-33	4-18	0,5-6	0,05-2
Pu(реакт), %	55,85	21,9	13,75	6,75	1,75

Величина критической массы плутония с изотопным составом реакторного плутония составляет 23,62 кг, что в 1,38 раз больше критической массы оружейного плутония. Поэтому с точки зрения изготовления оружия, различия между оружейным и реакторным плутонием не так уж и велики. В **Табл. 35** для смеси двух изотопов плутония ^{239}Pu и ^{240}Pu приведена зависимость величины критической массы от содержания изотопа ^{240}Pu.

Табл. 35. Зависимость критической массы плутония от содержания изотопа ^{240}Pu

Pu-240, %	0	7	10	18	25	30	40	50	100
Мкр, кг	15,94	17,18	17,76	19,42	21,03	22,3	25,17	29,66	58,81
Мкр/МкрОружPu	0,93	1	1,04	1,14	1,23	1,28	1,47	1,735	3,44

Другой физической характеристикой, определяющей качество делящегося материала, является скорость размножения нейтронов в бесконечной среде χ_0 (Табл. , ρ_0 = 15,8 г/см^3).

Табл. 36. Значения скорости размножения нейтронов в бесконечной среде

Изотоп	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242	Pu-238	Pu(реакт)	Pu (оруж)
χ_0, 1/нс	0,25	0,149	0,201	0,098	0,271	0,211	0,243

В **Табл. 37** приведены значения χ_0 для изотопного состава реакторного и оружейного плутония.

Табл. 37. Зависимость скорости размножения нейтронов χ_0 в бесконечной среде от содержания изотопа ^{240}Pu

Pu-240, %	0	7	10	18	25	30	40	50	100
χ_0, 1/нс	0,25	0,243	0,24	0,232	0,225	0,22	0,21	0,2	0,149
χ_0/χ_0WGPu	1,029	1	0,988	0,955	0,926	0,905	0,864	0,823	0,613

8.3 Промышленные реакторы

Вскоре после открытия плутония-239 (Г.Сиборг, Э.Макмиллан и др., 1941) было обнаружено, что он делится тепловыми нейтронами, причём выделяющееся при делении число нейтронов обеспечивает возможность осуществления цепной реакции (важно, что ^{239}Pu делится лучше, чем ^{235}U). Данный факт породил надежду (Лоуренс, 1941), что удастся обойти сложную проблему разделения изотопов урана (отделить плутоний от урана несравненно легче, чем разделить изотопы урана) и быстро создать эффективную атомную бомбу.

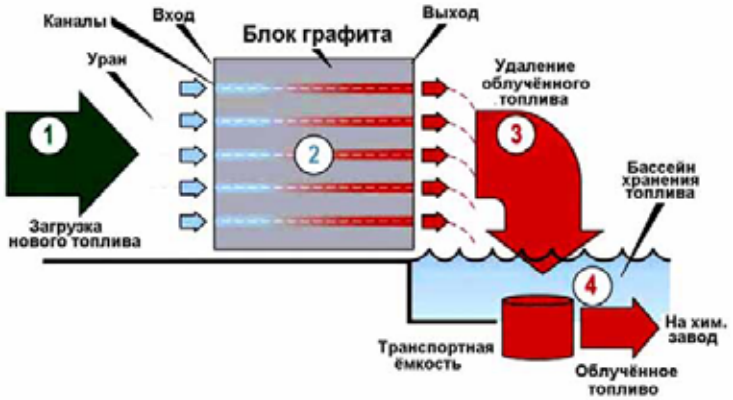

Рис. 34. Схема операций на первом промышленном реакторе B (Хэнфорд, Манхэттенский проект): 1 - топливные элементы, загружаемые в каналы с фронтона; 2 - уран, облучаемый в реакторе; 3 – облучённое топливо извлекаемое на обратной стороне и спускающееся в водный бассейн; 4 - топливо, транспортируемое в защитных контейнерах на химический завод для выделения плутония.

В рамках Манхэттенского проекта вскоре после создания первого в мире атомного котла (CP-1, *Chicago Pile-1*, уран-графитовая решётка (Э.Ферми, Л.Сциллард, Г.Андерсон, В.Зинн, 2.12.1942), был собран более мощный, охлаждаемый воздухом уран-графитовый реактор X-10 (Ок-Ридж, 1943), на котором были наработаны первые порции плутония, достаточные для исследования физических, ядерных и химических свойств плутония (деление плутония, определение критической массы, отказ от пушечной схемы атомной бомбы, создание имплозивного дизайна, идея взрывных линз, Э.Сегре, Р. Оппенгеймер, и др.). В 1943 в Хенфорде (комбинат Y-12, 1944) пущен первый мощный промышленный водоохлаждаемый уран-графитовый реактор 100-B («B-pile», бета-реактор, горизонтальное расположение ТВЭЛов, фирма Дюпон,

мощность - 250 МВт, производительность - 6 кг плутония в месяц) Он содержал 200 тонн металлического урана, 1200 тонн графита и охлаждался водой со скоростью 5 $м^3$/мин. Одновременно было создано радиохимическое производство, позволившее наработать килограммовые количества ^{239}Pu, освоить его сложную металлургию, изготовить заряды атомной бомбы и саму атомную бомбу, собранную по плохо отработанной тогда имплозивной схеме. Бомба Gadget («Штуковина») была успешно испытана на полигоне Аламагордо (Alamagordo, долина Джордана дел Муэрто, Jornada del Muerto, штат Нью-Мексико) в рамках испытания Trinity (Тринити, «Троица»). Аналогичная бомба Fat man («Толстяк», авиационная бомба, 20000 т трот. экв.) была сброшена 9.08.1945 на японский город Нагасаки.

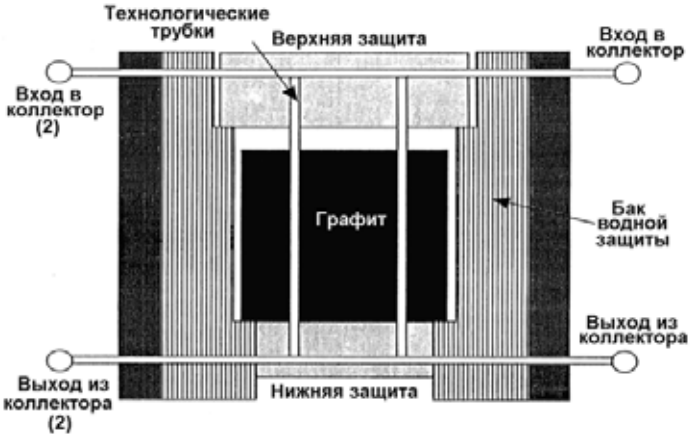

Рис. 35. Принципиальная схема советского промышленного реактора типа АДЕ.

В СССР первый советский реактор Ф-1 (физически первый, пуск под руководством И.В.Курчатова) был выведен в критическое состояние, при котором имела место самоподдерживающаяся цепная реакция, 25.12.46. Физический пуск первого в СССР промышленного уран-графитового реактора (ПУРГ) «А-1» («Аннушка») на комбинате № 817 в г. Челябинск-40 (Химический комбинат ПО «Маяк», г. Озерск Челябинской обл., Южный Урал), предназначенного для наработки оружейного плутония) состоялся 8.06.1948, а 19 июня он был выведен на проектную мощность (100 МВт). В состав Маяка входили: уран-графитовый реактор на естественном (природном) уране (завод «А»); радиохимическое производство по выделению плутония-239 из облученного в реакторе естественного (природного) урана (завод «Б»); химико-металлургическое производство по получению особо чистого металлического плутония (завод «В»). В реакторе А-1 в качестве топлива использовался металлический необогащённый уран (вертикальное расположение ТВЭЛов), в качестве замедлителя – графит. Охладителем служила вода. Главный конструктор - Н.А.Доллежаль, изготовитель - Опытное конструкторское бюро машиностроения им. И.И.Африкантова. В 1949 была завершена наработка и выделение необходимого для изготовления первой бомбы количества плутония. НИИ Неорганических материалов (А.А.Бочвар) освоили металлургию плутония и изготовили заряды бомбы. 23.09.49 на Семипалатинском полигоне (Казахстан) проведено испытание первой советской плутониевой бомбы (РДС-1, ракетный двигатель специальный, устройство, взорванное на вышке, имплозивная схема, почти точная копия Fat man, мощность 22 кт, разработчик КБ-11, г. Саров, конструктор Ю.Б.Харитон, руководитель проекта Л.П.Берия). Первая тактическая серийная атомная бомба (мощность 30 кт) испытана на Семипалатинском полигоне в 1953.

Исторически первыми промышленными реакторами – наработчиками плутония – были канальные реакторы на тепловых нейтронах с графитовым замедлителем и прямым проточным водным охлаждением. Основная их особенности – интенсивные потоки тепловых нейтронов, возможность ввода-вывода мишени без остановки реактора и возможность облучения мишени требуемое время. Затем к графитовым реакторам подключились урановые тяжёловодные реакторы.

Промышленные реакторы предназначены для работы на постоянном высоком уровне мощности в течение длительного периода с целью получения вторичного продукта, например плутония. Основная задача регулирования - поддержание постоянного уровня мощности в течение длительного периода без частых остановок и запусков. Для предотвращения внезапных остановок, связанных с выходом из строя аппаратуры, в реакторах такого типа предусмотрены специальные меры, такие, как использование большого числа дублирующих приборов, расположенных по всей активной зоне реактора

Мы достаточно подробно описали промышленные реакторы в курсе лекций ЯДЕРНАЯ ИНДУСТРИЯ и в учебном пособии УРАН, желающие могут найти их на сайте httm://profbeckman.narod.ru

8.4 Реакторы на быстрых нейтронах

В США венгерским ученым Л.Сцилардом в январе 1943 была высказана идея о расширенном воспроизводстве ядерного горючего. Первый промышленный бридер - экспериментальный реактор 1

(тепловая мощность 0,2 МВт) был введен в действие 20.12.1951 в ядерном центре в Айдахо, США. С 1949 в СССР под руководством А.И.Лейпунского велась работа по созданию реакторов на быстрых нейтронах. Быстрый реактор введен в эксплуатацию в г.Обнинске в 1955. На данный момент в России эксплуатируются ядерные исследовательские установки (бридеры) расположенные в ФЭИ г.Обнинске (БР-5 мощностью 5 МВт построен в 1957, БР-10 - в 1959, реконструирован в 1982) и в НИИАРе г. Димитровград (БОР-60 запущен в эксплуатацию в 1968) Затем были введены в эксплуатацию и промышленные энергетические реакторы БН-350 и БН-600. В 1956 консорциум компаний США приступил к сооружению 65 МВт демонстрационного реактора-бридера «Ферми-1» (г.Детройт). Интерес промышленности США к бридерам упал, после того как в 1966 вскоре после пуска реактора «Ферми-1» на нём из-за блокады в натриевом контуре произошла авария с расплавлением активной зоны. Этот бридер был демонтирован. Германия первый бридер построила в 1974 и закрыла в 1994. Реактор большей мощности SNR-2, строительство которого началась еще в начале 70-х XX века, так и не был введен в эксплуатацию.

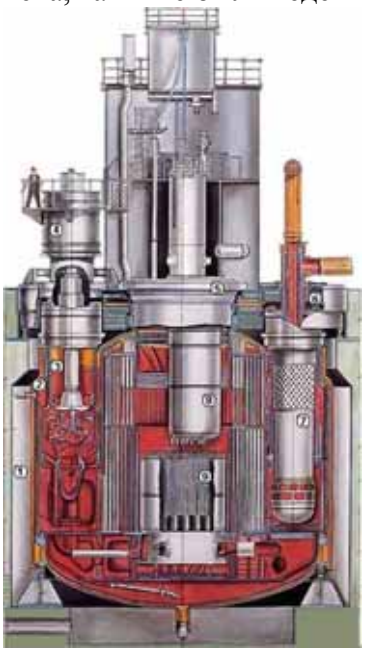

Рис. 36. Реактор на быстрых нейтронах БН600 (Белоярская АЭС).

Во Франции в 1973 введен в эксплуатацию первый бридер «ФЕНИКС», а в 1985 - полномасштабная АЭС с реактором на быстрых нейтронах «СУПЕРФЕНИКС» (Самый мощный реактор в мире на быстрых нейтронах, мощность 1200 МВт), работавший на плутониевом топливе. Он остановлен в 1996. Япония в 1977 закончила строительство опытного бридера «Дзёё». Большой демонстрационный реактор на быстрых нейтронах «Мондзю», введенный в эксплуатацию в 1994, в декабре 1995 закрыт после пожара из-за утечки теплоносителя натрия. В СССР первый промышленный бридер БН-350 был построен на берегу Каспийского моря для снабжения энергией установки опреснения воды. В 2000 реактор остановлен, затем демонтирован. В России единственный энергетический реактор на быстрых нейтронах работает на Белоярской АЭС — БН-600 (ОК-505). Его строительство начато в 1966, введен в эксплуатацию 8.04.1980, вывод из эксплуатации - после 2010. Строится реактор БН-800 (на нитридном топливе, теплоноситель - натрий), спроектирован реактор, БРЕСТ-1200 (теплоноситель – свинец). Новые типы реакторов, вероятно, будут работать на смешанном уран-плутониевом топливе, способствуя утилизации оружейного плутония.

Замечание. В приведённом выше тексте – существенная терминологическая путаница. Строго говоря, реактор типа БН-600 вовсе не бридер, а конвертер. Да и к реакторам-размножителям его отнести трудно: он, конечно, даёт некоторое дополнительное горючее, но значительно меньше, чем сжигает (т.е. коэффициент воспроизводства горючего меньше единицы). Его назначение – сжигать плутоний-содержащее топливо (МОКС-топливо), а не накапливать плутоний! Сейчас БН работает в режиме, исключающем воспроизводство топлива.

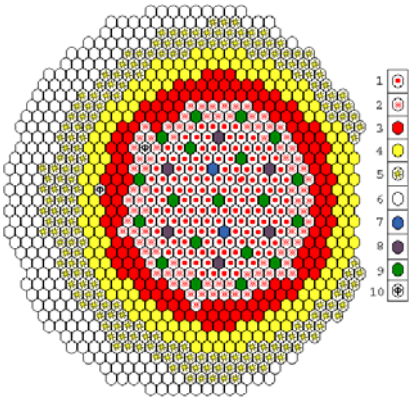

Рис. 37. Картограмма загрузки реактора БН-600: 1-ТВС активной зоны с малым обогащением; 2-ТВС активной зоны со средним обогащением; 3-ТВС активной зоны с большим обогащением; 4-ТВС внутренней зоны воспроизводства; 5-ТВС внешней зоны воспроизводства; 6-Хранилище отработавших сборок; 7-Стержни автоматического регулирования; 8-Стержни аварийной защиты; 9-Компенсирующие стержни; 10-Фотонейтронный источник.

Чтобы как-то уменьшить путаницу, дадим строгое определение понятий.

***Реактор-размножитель**, ядерный реактор, в котором «сжигание» ядерного топлива сопровождается расширенным воспроизводством вторичного топлива. В реакторе-размножителе, нейтроны, освобождающиеся в процессе деления ядерного топлива (например, ^{235}U), взаимодействуют с ядрами помещенного в реактор сырьевого материала (например,^{238}U), в результате образуется вторичное ядерное топливо (^{239}Pu). В реакторе-размножителе типа **бридер** воспроизводимое и сжигаемое топливо представляют собой изотопы одного и того же химического элемента (например, сжигается ^{235}U, воспроизводится ^{233}U), в реакторе типа реактор – **конвертер** – изотопы разных химических элементов (например, сжигается ^{235}U, воспроизводится ^{239}Pu).*

Чтобы не было отсебятины, обратимся к официальным документам. Российский ГОСТ 23082-78 утверждает:

Ядерный реактор (*Реактор деления, Ядерный котел, Атомный котел,* D. Kernreaktor, E. Nuclear reactor, F. Reacteur nucleaire) - устройство, предназначенное для организации и поддержания управляемой цепной реакции деления ядер.

Энергетический реактор (*Электроэнергетический реактор, Теплоэнергетический реактор, Теплотехнический реактор,* D. Kraftwerksreaktor, E. Power reactor, F. Reacteur de puissance) - ядерный реактор, главным назначением которого является выработка энергии

Промышленный реактор (*Технологический реактор, Облучательный реактор, Производящий реактор,* E. Production reactor, F. Reacteur de production) - ядерный реактор, предназначенный для промышленного производства в полях нейтронного и гамма-излучения новых материалов, включая радиоактивные изотопы, или используемый в качестве источника ионизирующих излучений для облучения материалов и изделий.

Реактор на тепловых нейтронах (D. Thermischer Reaktor, E. Thermal reactor, F, Reacteur a neutrons thermiques) - ядерный реактор, в котором основная доля деления ядер топлива обусловлена тепловыми нейтронами.

Реактор на быстрых нейтронах (D. Schneller Reaktor, E. Fast reactor, F. Reacteur rapide) - ядерный реактор, в котором основная доля деления ядер топлива обусловлена быстрыми нейтронами.

Реактор - конвертер (Конвертер, D/ Konverterreaktor, T/ Converter, F. Reacteur convertisseur) - ядерный реактор, в процессе работы которого производится новое по изотопному составу ядерное топливо по сравнению со сжигаемым.

Реактор-размножитель (Размножитель, *Бридер,* D. Brutreaktor, E. Breeder, F. Reacteur surregenerateur) - ядерный реактор, в процессе работы которого производится ядерное топливо в количествах больших, чем сжигаемое.

Раз уж зашла речь о ГОСТе, дадим ещё важные определения:

Топливный тепловыделяющий элемент ядерного реактора (ТЭЛ) - тепловыделяющий элемент ядерного реактора, в котором материалом сердечника служит ядерное топливо

Сырьевой тепловыделяющий элемент ядерного реактора (СЭЛ) - тепловыделяющий элемент ядерного реактора, в котором материалом, выделяющим тепло, служит сырье для производства вторичного ядерного топлива или иных продуктов ядерных реакций

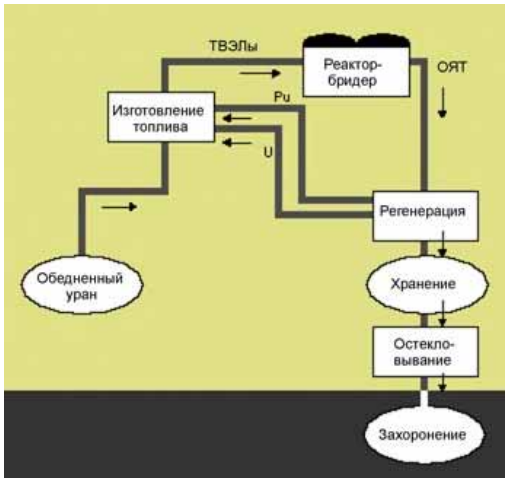

Рис. 38. Топливный цикл в реакторах на быстрых нейтронах.

Обратите внимание: по российскому ГОСТу следует писать ТЭЛ, а не ТВЭЛ!!

«Википедия» даёт такое определение:

Реактор-размножитель – ядерный реактор, позволяющий нарабатывать ядерное топливо в количестве, превышающем потребности самого реактора. Например – реактор на быстрых нейтронах.

Росатом даёт определение:

Реактор-размножитель (Breeder reactor) - быстрый реактор, в котором коэффициент конверсии превышает 1 и осуществляется расширенное воспроизводство ядерного топлива.

Здесь нет речи о том, что новое топливо должно содержать обязательно другой элемент, чем сырьевое. Коэффициент конверсии выше единицы, но коэффициент воспроизводства может быть как больше, так и меньше единицы. При таком определении отечественные быстрые реакторы попадают под определение – бридер.

Коэффициент конверсии (Conversion ratio) - отношение числа ядер нового делящегося материала, образующегося в процессе конверсии (воспроизводства), к числу разделившихся ядер исходного делящегося материала. Большинство тепловых реакторов имеют коэффициент конверсии 0,5-0,9 и поэтому являются потребителями делящихся материалов. В реакторах-размножителях коэффициент конверсии превышает единицу (1,15-1,30).

Коэффициент воспроизводства (Breeding ratio) - отношение числа ядер образовавшегося топлива к числу ядер выгоревшего делящегося топлива. Реакторы на быстрых нейтронах характеризуются расширенным воспроизводством вторичного ядерного топлива, т.е. в них накапливается ядерного топлива больше, чем расходуется.

В реакторах БН коэффициент конверсии всегда меньше единицы, коэффициент воспроизводства всегда больше единицы.

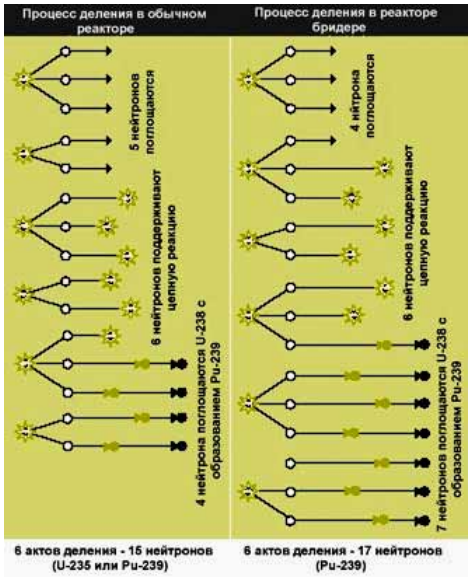

Рис. 39. Реакции расщепления в обычном реакторе и реакторе на быстрых нейтронах.

Коэффициент воспроизводства - количество вторичного делящегося материала, образующегося в процессе работы, и представляет собой отношение числа образовавшихся делящихся ядер к числу выгоревших из первоначально загруженного топлива. Если коэффициент воспроизводства больше единицы, то в реакторе осуществляется расширенное воспроизводство топлива. Такие реакторы называют реакторами-размножителями. Наибольший коэффициент воспроизводства имеют реакторы на быстрых нейтронах (Для реакторов БН-600 КВ=1,4). Из реакторов на тепловых нейтронах, наибольший коэффициент воспроизводства имеют тяжеловодные реакторы, а также газоохлаждаемые реакторы с графитовым замедлителем (0,7-0,8). Легководные водо-водяные реакторы имеют наименьший коэффициент воспроизводства (0,5-0,6). Указанные значения коэффициента воспроизводства делящихся материалов соответствует их количеству в выгружаемом топливе, т.е. рассчитаны с учетом выгорания вторичного ядерного топлива параллельно с его образованием.

Отношение скорости накопления новых делящихся нуклидов, образующихся при захвате нейтрона воспроизводящими нуклидами, к скорости выгорания делящихся нуклидов называется коэффициентом конверсии - КК. **КК называется коэффициентом воспроизводства (КВ), если он больше 1.** Большинство тепловых реакторов имеют КК=0,5 - 0,9 и поэтому являются потребителями делящихся материалов. Из-за такого низкого значения КК они называются конвертерами. Если КК=1, то количество делящегося материала в активной зоне в процессе работы реактора не изменяется. Коэффициент воспроизводства 1,15 - 1,30 может быть достигнут только в быстрых размножителях, использующих уран-плутониевое топливо. Образование нового делящегося материала Pu происходит преимущественно в боковой и торцевых зонах воспроизводства, окружающих активную зону. Из-за наличия в таких реакторах спектра быстрых нейтронов их называют быстрыми реакторами-размножителями, В таких реакторах с уран-плутониевым оксидным топливом, со сталью в качестве конструкционного материала и натриевым теплоносителем, достигают КВ=1,15 - 1,30 при среднем значении числа вторичных нейтронов $\eta \approx 2{,}4$ Доля делений на быстрых нейтронах, т. е. вклад воспроизводящих нуклидов в общий процесс деления, для теплового реактора составляет только 0,01 - 0,03. В активной зоне быстрого бридера доля делений на быстрых нейтронах может достигать значения 0,10 - 0,15.

Коротко остановимся на особенностях быстрого реактора с точки зрения возможности наработки оружейного (а теперь уж и гражданского) плутония.

Реактор на быстрых нейтронах *– ядерный реактор, использующий для поддержания цепной ядерной реакции нейтроны с энергией выше 0,1 МэВ.*

БН - ядерный реактор, на быстрых нейтронах. Корпусной реактор-размножитель. Теплоносителем первого и второго контуров обычно является натрий. Теплоноситель третьего контура - вода и пар.

Реакторы на быстрых нейтронах производят энергию путем сжигания плутония при более полном использовании ^{238}U в топливных сборках. Интерес к таким реакторам обусловлен их способностью производить большее количество топлива, чем они потребляют. Сегодня, из-за достаточно низких цен на уран и высвобождающихся больших запасов оружейного плутония, они, в основном, рассматриваются как потенциальные установки для сжигания ядерных отходов – актинидов и обеднённого урана. Реакторы-размножители на быстрых нейтронах способны сжечь весь уран, произведенный горнодобывающей промышленностью. Реактор на быстрых нейтронах (БН) позволяет использовать как топливо изотопы тяжелых элементов, не делящиеся в реакторах на тепловых нейтронах. В топливный цикл могут быть вовлечены запасы ^{238}U и ^{232}Th, которых в природе значительно больше, чем ^{235}U При развитии энергетики реакторов на быстрых нейтронах решается задача самообеспечения ядерной энергетики топливом.

Для быстрых реакторов не требуется замедлитель, а теплоноситель не должен замедлять нейтроны. К достоинствам быстрых реакторов относят большую степень выгорания топлива (т.е. больший срок кампании), а к недостаткам – дороговизну, из-за невозможности использования простейшего теплоносителя – воды, конструкционной сложности, высоких капитальных затрат и высокой стоимости высокообогащенного топлива. Сейчас подобные реакторы находят некоторое применение в сфере энергетики, в частности, для обеспечения расширенного воспроизводства делящегося плутония ^{239}Pu из ^{238}U с целью сжигания всего или значительной части природного урана, а также имеющихся запасов отвального урана. Тактическая цель - использование тепловых реакторов на ^{235}U для накопления плутония как топлива для быстрых реакторов.

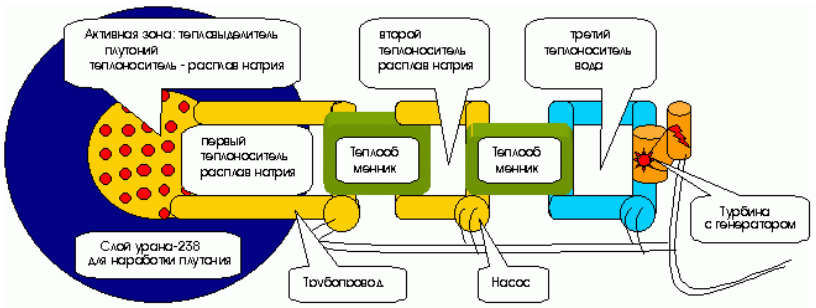

Рис.40 Реактор на быстрых нейтронах в схеме АЭС.

При работе реактора БН происходит очень интенсивное выделение нейтронов, которые поглощаются слоем ^{238}U, расположенным вокруг активной зоны. Поэтому активные зоны реакторов на быстрых нейтронах существенно отличаются от активных зон реакторов на тепловых. Экономически необходимая средняя глубина выгорания уран-плутонивого топлива в быстром реакторе составляет 100-150 МВт·сут/кг, т.е. она в 2,5 - 3 раза выше, чем в реакторах на тепловых нейтронах. Для достижения этой глубины выгорания требуется высокая радиационная стойкость ТВЭЛ и тепловыделяющих сборок, необходима стабильность геометрических параметров, сохранение герметичности и пластичности оболочек ТВЭЛ, их совместимость с продуктами деления, устойчивость к коррозионному воздействию теплоносителя и т.п. По своим физическим и техническим принципам быстрые реакторы с жидкометаллическим охлаждением имеют наибольший потенциал внутренне присущей безопасности, а, следовательно, и экономичности.

В связи с большим тепловыделением и чтобы исключить контакт радиоактивного натрия с водой при возможных нарушениях нормального режима теплообмена, технологическую схему такого реактора выбирают **трехконтурной**: в первом и втором контурах в качестве теплоносителя используется натрий, в третьем - вода и пар**)**. Объем теплоносителя на каждом последующем, естественно, больше. Натрий первого контура охлаждается в промежуточных теплообменниках натрием второго контура. В промежуточном контуре с натриевым теплоносителем создается более высокое давление, чем в первом, чтобы предотвратить протечку радиоактивного теплоносителя из первого контура через возможные дефекты в теплообменнике. В парогенераторах второго контура натрий передает тепло воде третьего контура, в результате чего вырабатывается пар с температурой около 550^{o} при давлении 14 МПа. Такие параметры пара позволяют использовать стандартные турбины, применяемые в обычной энергетике. Пар высокого давления направляется в турбину, соединенную с электрогенератором. Из турбины пар поступает в конденсатор. Во избежание утечки радиации контуры теплоносителя и парогенератора работают по замкнутым циклам.

Для обеспечения высокой концентрации ядерного топлива необходимо достижение максимального тепловыделения на единицу объема активной зоны. Тепловыделение реактора на быстрых нейтронах в десять-пятнадцать раз превосходит тепловыделение реакторов на медленных нейтронах. Теплосъём в таком реакторе можно осуществить только с помощью жидкометаллических теплоносителей, например натрия, калия или энергоемких газовых теплоносителей, обладающих наилучшими теплотехническими и теплофизическими характеристиками, таких как гелий и диссоциирующие газы. В качестве теплоносителя можно использовать и пары воды. Обычно используются жидкие металлы, например, расплав натрия (температура плавления натрия 98°). К недостаткам натрия следует отнести его высокую химическую активность по отношению к воде, воздуху и пожароопасность. Температура теплоносителя на входе в реактор - 370^{o}, а на выходе - 550, что в десять раз выше аналогичных показателей, скажем, для ВВЭР - там температура воды на входе – 270^{o}, а на выходе – 293^{o}.

Отличие между обычным реактором на тепловых нейтронах и реактором на быстрых нейтронах состоит в большем количестве нейтронов, производимых в последнем (17 вместо 15 после 6 актов расщепления, **Рис. 40.**). Это позволяет при желании производить большее количество ядерного топлива, чем используется. В обычном реакторе имеется примерно четыре нейтрона для размножения ^{239}Pu, а в реакторе на быстрых нейтронах их уже семь. Точные значения этих чисел зависят от конкретных конструкций реакторов и режима их работы.

В рамках закрытого топливного цикла, тепловые реакторы производят два «избыточных» материала: плутоний (появляется при поглощении нейтронов, и отделяется затем в процессе переработки) и обедненный уран (отделяется при обогащении). Плутоний используется в реакторах на быстрых нейтронах как основное топливо и в то же самое время плутоний образуется из обедненного (или естественного) урана, в основном ^{238}U, который окружает активную зону реактора в виде специального бланкета. Другими словами, реактор одновременно сжигает и производит плутоний. В зависимости от конструкции реактора, произведенный расщепляющийся плутоний может использоваться либо в этом же реакторе, либо в будущих реакторах-размножителях, либо в тепловых реакторах.

В активную зону и отражатель реактора на быстрых нейтронах входят в основном тяжёлые материалы. Замедляющие ядра вводят в активную зону в составе ядерного топлива (карбид урана UC, двуокись плутония

PuO_2 и пр.). Концентрацию замедлителя в активной зоне стремятся уменьшить до минимума, так как лёгкие ядра смягчают энергетический спектр нейтронов. Прежде чем поглотиться, нейтроны деления успевают замедлиться в результате неупругих столкновений с тяжёлыми ядрами лишь до энергий 0,1 - 0,4 МэВ. Сечение деления в быстрой области энергий не превышает 2 барн. Поэтому для осуществления цепной реакции на быстрых нейтронах необходима высокая концентрация делящегося вещества в активной зоне - в десятки раз больше концентрации делящегося вещества в активной зоне реактора на тепловых нейтронах. Несмотря на это, проектирование и строительство дорогостоящих реакторов на быстрых нейтронах оправданно, так как на каждый захват нейтрона в активной зоне такого реактора испускается в 1,5 раза больше нейтронов деления, чем в активной зоне реактора на тепловых нейтронах. Следовательно, для переработки ядерного сырья в реакторе на быстрых нейтронах можно использовать значительно бóльшую долю нейтронов. Отражатель реакторов на быстрых нейтронах изготовляют из ^{238}U. Он возвращают в активную зону быстрые нейтроны с энергиями выше 0,1 МэВ. Нейтроны, захваченные ядрами ^{238}U, расходуются на получение делящихся ядер ^{239}Pu. Мощность реактора регулируется подвижными тепловыделяющими сборками, ТВЭЛами со стержнями из природного урана или тория. В небольших реакторах более эффективен как регулятор подвижный отражатель: ходом цепной реакции управляют, изменяя утечку нейтронов. Выбор конструкционных материалов для реакторов на быстрых нейтронах не определяется сечениями поглощения, так как эти сечения в области быстрых энергий у всех веществ очень малы по сравнению с сечением деления. По этой же причине захват нейтронов продуктами деления мало влияет на загрузку ядерного топлива в реактор.

В активной зоне *реактора на быстрых нейтронах* размещаются ТВЭЛлы с высокообогащенным ^{235}U топливом (не менее 15% изотопа ^{235}U). Активная зона окружается зоной воспроизводства - бланкетом, состоящим из ТВЭЛов, содержащих топливное сырье (обедненный ^{228}U). Вылетающие из активной зоны нейтроны захватываются в зоне воспроизводства ядрами топливного сырья, в результате образуется новое ядерное топливо - ^{239}Pu, которое простыми операциями может быть доведено до оружейного качества.

Основное число делений вызывается быстрыми нейтронами, причем каждый акт деления сопровождается появлением большого (по сравнению с делением тепловыми нейтронами) числа нейтронов, которые при захвате ядрами ^{238}U превращает их (посредством двух последовательных β^--распадов) в ядра ^{239}Pu, т.е. нового ядерного топлива. Это значит, что, например, на 100 разделившихся ядер горючего (^{235}U) в реакторах на быстрых нейтронах образуется 150 ядер ^{239}Pu, способных к делению. (Коэффициент воспроизводства таких реакторов достигает 1,5, т.е. на 1 кг ^{235}U получается до 1,5 кг Pu). ^{239}Pu можно использовать в реакторе как делящийся элемент.

Проектирование реакторов на быстрых нейтронах велось таким образом, чтобы обеспечить производство оружейного плутония (и некоторых других делящихся актинидов). Понимание этого вынудило мировое сообщество повсеместно закрыть быстрые реакторы. Не помогло даже обещание конструкторов убрать из реакторов бланкеты.

Сейчас, по-видимому, единственной страной, которая способна осуществить наработку оружейного плутония на быстром реакторе является Индия. Индия строит прототип реактора-размножителя на быстрых нейтронах мощностью 500 МВт (ввод в эксплуатацию 2010). При желании, на реакторе PFBR каждый год можно изготавливать по 140 кг плутония оружейного качества. Умеренные количества из больших индийских запасов выделенного из отработанного топлива плутония реакторного качества могут служить в качестве подпитывающего топлива, делая незаметным отвлечение нужных нуклидов на изготовление оружия. Реактор PFBR использует топливо со смесью оксидов (MOX, PuO_2/UO_2) в активной зоне и обедненный UO_2 в областях радиального и аксиального бланкетов. Конструкция реактора включает однородную активную зону с двумя зонами обогащения. Внутренняя часть активной зоны состоит из 85 топливных сборок с долей плутония в 21%. Внешняя часть имеет 96 сборок с повышенным содержанием плутония в 28% для того, чтобы выровнять распределение мощности в активной зоне. Каждая топливная сборка активной зоны содержит 217 стержней с внешним диаметром 6.60 мм и длиной топливной части в 100 см. стержни имеют также аксиальные секции бланкета, располагающиеся над топливной частью и под ней (2×30 см). Радиальный бланкет реактора состоит из 120 сборок, которые окружают активную зону в два ряда. Каждая из сборок содержит 61 стержень с внешним диаметром 14.33 мм и длиной топливной части в 160 см. Радиальный бланкет окружен толстым стальным отражателем нейтронов. За отражателем располагаются несколько слоев защиты и положений для хранения. Реактор оборудован двенадцатью стержнями управления и безопасности. На **Рис. 41** показана общая конфигурация реактора и геометрия топливных сборок активной зоны и бланкета.

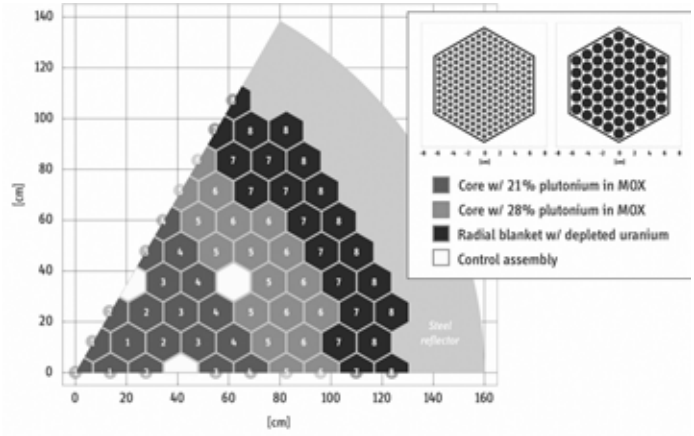

Рис. 41. Вид активной зоны реактора PFBR: Номера в топливных сборках (от 1 до 8) указывают на зоны выгорания (остальные зоны выгорания (от 9 до 14) находятся в аксиальном бланкете и они не показаны на этом рисунке). Конфигурация топливных стержней внутри сборок (217 и 61 стержень в активной зоне и радиальном бланкете соответственно) показана на вставке. Надписи на вставке (сверху вниз): 1 - активная зона с 21% плутония в топливе MOX; 2 - активная зона с 28% плутония в топливе MOX; 3 - радиальный бланкет с обедненным ураном; 4 - сборка управления.

Потребление делящихся материалов таким реактором равно 366 кг в год. Общий коэффициент воспроизводства равен 1.05, а в активной зоне 0.6 - 0.7, что позволяет этому реактору производить 120 кг и 150 кг плутония оружейного качества в аксиальном и радиальном бланкетах. Плутоний оружейного качества выделяется как из аксиального, так и из радиального бланкета с соответствующим содержанием ^{239}Pu в 93.7% и 96.5%. Это не похоже на типичный состав плутония в тепловых реакторах, где накопление ^{240}Pu является гораздо более заметным.

Когда реактор на быстрых нейтронах работает в «гражданском» режиме, нет необходимости перерабатывать плутоний в бланкете отдельно от плутония в активной зоне. В принципе, весь запас отработанного топлива, выгруженного из реактора, может перерабатываться вместе, выдавая плутоний со смешанным составом.

Плутоний для начальной активной зоны и перезагрузки реактора PFBR берется из переработанного отработанного топлива от реакторов с тяжёлой водой под давлением PHWR, которые образуют основу текущего реакторного парка в Индии. Если реактор работает в военном режиме, и материал бланкета отвлекается для военных целей, то тогда для подпитки топлива реактора-размножителя потребуется 240 - 250 кг плутония из отработанного топлива реакторов PHWR на каждые 100 кг отвлеченного плутония оружейного качества. Индия может легко удовлетворить это требования для плутония либо из своего существующего запаса отработанного топлива, выгруженного из не находящихся под гарантиями реакторов PHWR.

Табл. 38. Возможный состав исходного и отработанного топлива проектируемого индийского быстрого реактора.

	ЕЖЕГОДНАЯ ЗАГРУЗКА							
	U-235	U-236	U-238	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
Активная зона	2.6 кг	3.1 кг	3075.9 кг	1.8 кг	659.5 кг	283.7 кг	41.8 кг	24.7 кг
Аксиальный бланкет	2.0 кг	2.5 кг	2450.9 кг	0.0 кг	0.0 кг	0.0 кг	0.0 кг	0.0 кг
Радиальный бланкет	2.2 кг	2.7 кг	2617.8 кг	0.0 кг	0.0 кг	0.0 кг	0.0 кг	0.0 кг
Всего	6.8 кг 0.08%	8.3 кг 0.10%	8144.6 кг 99.82%	1.8 кг 0.2%	659.5 кг 65.2%	283.7 кг 28.0%	41.8 кг 4.1%	24.7 кг 2.5%
Общий итог	8160 кг			1012 кг				
Делящиеся материалы	0.08%			69.3%				
	ЕЖЕГОДНАЯ ВЫГРУЗКА							
	U-235	U-236	U-238	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
Активная зона	1.5 кг 0.05%	3.1 кг 0.11%	2870.1 кг 99.84%	1.6 кг 0.2%	545.5 кг 60.4%	288.4 кг 32.0%	42.2 кг 4.7%	24.8 кг 2.7%
Аксиальный бланкет	1.6 кг 0.07%	2.5 кг 0.10%	2391.7 кг 99.83%	0.017 кг 0.032%	50.15 кг 96.434%	1.78 кг 3.425%	0.056 кг 0.108%	0.001 кг 0.001%
Радиальный бланкет	1.5 кг 0.06%	2.6 кг 0.10%	2502.8 кг 99.84%	0.066 кг 0.071%	86.33 кг 93.459%	5.71 кг 6.177%	0.262 кг 0.284%	0.008 кг 0.009%
Всего	4.6 кг 0.06%	8.2 кг 0.10%	7764.6 кг 99.84%	1.6 кг 0.16%	682.0 кг 65.15 %	295.9 кг 28.26%	42.5 кг 4.06%	24.8 кг 2.37%
Общий итог	7777 кг			1047 кг				
Делящиеся материалы	0.08%			69.2%				
Частичные суммы по бланкетам	52,0 кг плутония с долей делящихся материалов 96,5% в аксиальном бланкете							
	92,4 кг плутония с долей делящихся материалов 93,7% в радиальном бланкете							
	144,4 кг плутония с долей делящихся материалов 94,8% в обеих бланкетах							
	ЕЖЕГОДНАЯ ПОДПИТКА							
	U-235	U-236	U-238	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
	1.4 кг 0.25%	0.4 кг 0.07%	540.2 кг 99.68%					
Всего	382 кг + 160 кг							
Делящиеся материалы	0.25%							
Подпитка+разгрузка	6.0 кг 0.07%	9.0 кг 0.10%	8305.0 кг 99.83%					
Всего	8320 кг							
Делящиеся материалы	0.07%							

В 60-100 раз большее количество энергии можно извлечь из первоначально добытого урана с помощью замкнутого топливного цикла реакторов-бридеров по сравнению с незамкнутым циклом в обычных легко-водных реакторах. Такая чрезвычайно высокая эффективность делает реакторы-бридеры очень привлекательными для производства энергии.

8.5 Виды плутония: оружейный и гражданский

Плутоний нашёл широкое применение в качестве взрывчатого вещества для атомных и термоядерных бомб, как тактического, так и стратегического назначения.

К концу 20-го века в мире было произведено в общей сложности около 1300 тонн плутония, из которого около 300 т для оружейного использования, остальное - побочный продукт АЭС (реакторный плутоний).

Замечание. Если учесть, что наиболее типичное значение критической массы плутония 5,6 кг (шар, диаметром 4,1 см), то из наработанного плутония можно изготовить довольно много бомб.

По классификации изотопных составов плутония, принятой в США:

плутоний относится к плутонию оружейного качества (WGPu), если содержание изотопа ^{240}Pu составляет менее 7% (в некоторых зарядах используется плутоний с содержанием ^{240}Pu менее 1,7%;

плутоний относится к плутонию "топливного" качества (FGPu), если содержание изотопа ^{240}Pu составляет от 7% до 18%;

плутоний относится к плутонию "реакторного" качества (RGPu), если содержание изотопа ^{240}Pu составляет более 18%.

Оружейный плутоний отличает от реакторного не столько степень обогащения и химический состав, сколько изотопный состав, сложным образом зависящий как от времени облучения урана нейтронами, так и от времени хранения после облучения. Особенно важно содержание изотопов ^{240}Pu и ^{241}Pu.

Важный вопрос: надо ли понимать термин «оружейный плутоний», как возможность создания атомной бомбы при содержании ^{240}Pu менее 7% и невозможность создания атомной бомбы при содержании ^{240}Pu более 7%? Нет! Это не так – бомбу можно создать с любым содержанием ^{240}Pu. Наличие ^{240}Pu в ^{239}Pu точно определяет характеристики оружия, ибо именно от него зависит нейтронный фон и такие явления как рост критической массы (незначительный) и тепловой выход. Нейтронный фон влияет на проект ядерного взрывного устройства ограничением общей массы заключенного плутония, необходимостью достижения высоких скоростей имплозии. Поэтому проекты низкого дизайна («плохие» бомбы) и бомбы старых схем требуют низкого содержания ^{240}Pu. Но в проектах «высокого» дизайна уже с 1960-х успешно используется плутоний любой чистоты. Поэтому термин «оружейный плутоний» никакого военного значения не имеет; это – чисто экономический параметр. «Высокий» дизайн существенно дороже «низкого».

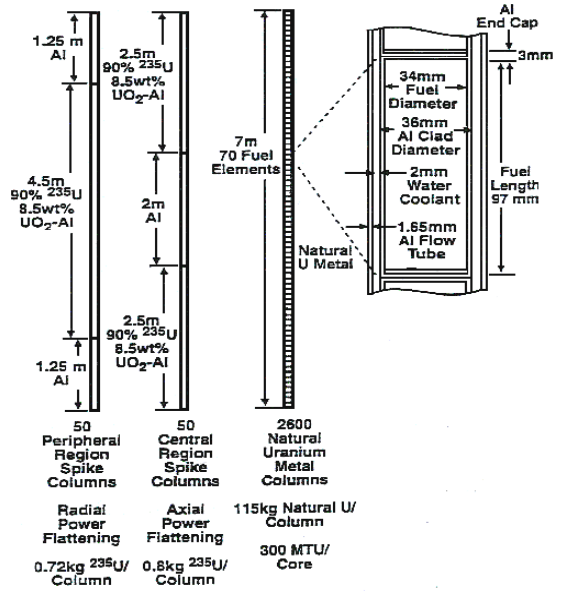

Рис. 42. Схема загрузки каналов промышленного уран-графитового реактора типа АДЭ.

С одной стороны, стоимость плутония падает с ростом доли ^{240}Pu. С другой - ^{240}Pu увеличивает критическую массу. Содержание 6-7% ^{240}Pu делает общую стоимость плутония, с учетом указанных причин, минимальной. Принимая средний состав оружейного плутония: 93.4% ^{239}Pu, 6.0% ^{240}Pu и 0.6% ^{241}Pu (с весьма малым содержанием остальных изотопов) можно просчитать следующие его свойства. Начальная тепловая мощность свежевыработанного оружейного плутония 2.2 Вт/кг, уровень спонтанного деления 27100 делений/с. Этот показатель деления позволяет использовать в оружии 4-5 кг плутония с очень низкой вероятностью предетонации в хорошей имплозионной системе. По прошествии пары десятилетий, большая часть ^{241}Pu превратится в ^{241}Am, существенно увеличив тепловыделение - до 2.8 Вт/кг. Поскольку ^{241}Pu прекрасно делится, а ^{241}Am - нет, это приводёт к снижению запаса реактивности плутония, что должно приниматься в расчет конструкторами.

Нейтронное излучение 5 кг оружейного плутония 300000 нейтронов/с создаёт уровень излучения 0.003 рад/час на 1 м. Фон снижается отражателем и взрывчатым веществом, окружающим его, в 5-10 раз. Тем не менее, длительный контакт обслуживающего персонала с ядерным взрывным устройством во время его обычного обслуживания может привести к дозе радиации, приближающейся к предельной годовой. Сотрудники плутониевых предприятий, обрабатывающие плутониевые заряды непосредственно или в

герметичных боксах, имеют ограниченную защиту от радиации поэтому их периодически надо переводить на другую работу, чтобы не превысить годового лимита облучения.

Из-за малой разницы в массах ^{239}Pu и ^{240}Pu, эти изотопы не разделяются промышленно широко распространенными способами обогащения. Впрочем, при желании эти изотопы плутония всегда можно разделить на электромагнитном сепараторе. Проще, однако, более чистый ^{239}Pu получить путём сокращения времени пребывания в реакторе кассеты с ^{238}U. Для развитых государств нет причин для снижения процента ^{240}Pu менее 6, так как эта концентрация не мешает создавать эффективные и надежные триггеры термоядерных зарядов. Очень малое количество ^{240}Pu позволяет достичь некоторой дополнительной гибкости, требующейся специализированным или экзотическим изделиям.

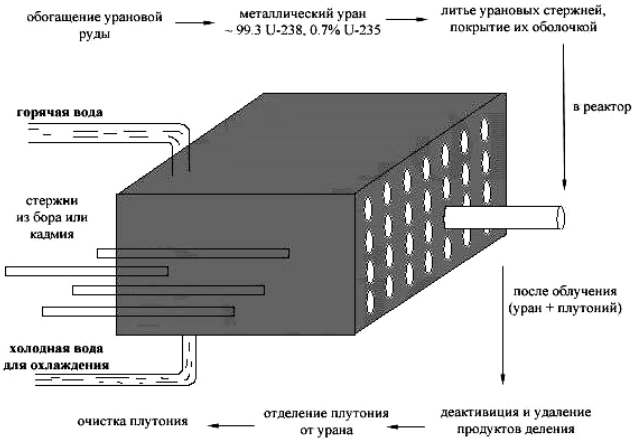

Рис. 43. Схема производства плутония в манхэттенском проекте (США).

Помимо оружейного, существует и реакторный плутоний. Плутоний из отработанного ядерного топлива состоит из множества изотопов. Состав зависит от типа реактора и рабочего режима. Типичные значения для реактора на легкой воде (CANDU): ^{238}Pu - 2%, ^{239}Pu - 61%, ^{240}Pu - 24%, ^{241}Pu - 10%, ^{242}Pu – 3%. Из такого плутония бомбу изготовить трудно (для террористов – практически невозможно). Однако, как уже упоминалось, в странах с развитой технологией реакторный плутоний вполне можно пустить на производство ядерных зарядов (в основном - для триггеров водородных бомб).

Композиция изотопов плутония, накапливающегося в реакторе в результате реакций, происходящих в урановом топливе, зависит от степени выгорания топлива. Из пяти основных образовавшихся изотопов два с нечетными массовыми номерами - ^{239}Pu и ^{241}Pu являются расщепляющимися, т.е. способными к расщеплению под действием тепловых (медленных) нейтронов, и в принципе могут быть использованы в качестве реакторного топлива. Поэтому, если речь идет о возможности использования плутония в качестве реакторного топлива, значение имеет количество накопленного ^{239}Pu и ^{241}Pu. Для ядерного же оружия необходим практически чистый ^{239}Pu, т.к. излучатели нейтронов ^{240}Pu и ^{238}Pu могут спонтанно вызвать «предначальное воспламенение», а это приведет к существенно меньшей силе взрыва атомной бомбы. Поэтому разница в «качестве» плутония обычно определяется его изотопным составом.

Сверхчистый плутоний	практически чистый ^{239}Pu, содержание нерасщепляющегося ^{240}Pu менее 3 %
Оружейный плутоний	содержание ^{240}Pu менее 7 %
Плутоний, используемый в виде реакторного топлива:	содержание ^{240}Pu от 7 % до 18 %
Реакторный (энергетический) плутоний	содержание ^{240}Pu более 18 %

Если извлеченный из отработавшего топлива плутоний повторно использовать в реакторах на быстрых нейтронах, его изотопный состав постепенно становится менее пригодным для оружейного использования. После нескольких топливных циклов, накопление ^{238}Pu, ^{240}Pu и ^{242}Pu делает его неупотребимым для этой цели. Подмешивание такого материала - удобный метод «денатурировать» плутоний, гарантируя нераспространение делящихся материалов.

Табл. 39. Некоторые характеристики оружейного и реакторного плутония

Изотопы плутония	Период полураспада. лет	Активность, кюри/г	Количество оружейного плутония, %	Количество реакторного плутония, % 1
плутоний-238	87,74	17,3	---	1,3
плутоний-239	24110	0,063	93,0	56,6
плутоний-240	6537	0,23	6,5	23,2
плутоний-241	14,4	104	0,5	13,9
плутоний-242	379000	0,004	---	4,9

[1] Типично для водяных под давлением реакторов, наиболее широко распространенного типа действующих реакторов.

Как оружейный, так и реакторный плутоний содержит некоторое количество ^{241}Pu. ^{241}Pu распадается на ^{241}Am путем излучения β-частицы. Поскольку дочерний ^{241}Am обладает значительно большим периодом полураспада (432 года), чем материнский ^{241}Pu (14,4 года), его количество в заряде (или в отходах ЯТЦ) возрастает по мере распада ^{241}Pu. γ-радиация, образующаяся в результате распада ^{241}Am, значительно

сильнее, чем у ^{241}Pu, следовательно, со временем она также нарастает. Таким образом, концентрация ^{241}Pu и период его хранения прямо коррелируют с уровнем γ-радиации, образующейся в результате увеличения содержания ^{241}Am.

Таким образом, плутоний долго хранить нельзя – после его наработки, его надо как можно скорее пустить в дело. Иначе его придётся снова повергнуть трудоёмкому и весьма дорогому рециклингу.

8.6 Наработка плутония

При производстве плутония, уран (как правило – в виде металла) облучают в промышленном реакторе (обычно тепловом, но может быть использован и реактор- размножитель на быстрых нейтронах). Преимущество промышленного реактора: высокая плотность нейтронов, невысокая температура (и, как следствие, отсутствие трудно растворимых оболочек, типа циркония, возможность облучения в течение заданного времени (намного меньшего, чем кампания реактора).

В облучаемом уране идёт ядерная реакция деления и интересующая нас реакция:

$$^{238}U(n,\gamma)^{239}U \xrightarrow[23.5\ мин]{\beta^-} {}^{239}Np \xrightarrow[2.33\ сут]{\beta^-} {}^{239}Pu$$

К сожалению, идут и другие ядерные реакции, приводящие к возникновению других изотопов плутония: ^{238}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu и ^{242}Pu, отделение которых от ^{239}Pu, хоть и разрешимая, но весьма сложная задача.

$$^{239}Pu(n,\gamma)^{240}Pu(n,\gamma)^{241}Pu(n,\gamma)^{242}Pu$$

$$^{238}U(n,2n)^{237}U \xrightarrow[6.8\ сут]{\beta^-} {}^{237}Np(n,\gamma)^{238}Np \xrightarrow[2.1\ сут]{\beta^-} {}^{238}Pu$$

За время работы уранового реактора ^{239}Pu образуется в количестве, прямо пропорциональном дозе нейтронного облучения или освобождаемой энергии. Однако выход реакций, приводящий к образованию других изотопов плутония, приблизительно пропорционален квадрату или более высоким степеням дозы нейтронного облучения. Как уже было указано, в результате последовательного нейтронного захвата ^{239}Pu в реакторе образуется ^{240}Pu, ^{241}Pu, ^{242}Pu и ^{243}Pu. Поэтому изотопный состав конечного плутония зависит от уровня его производства.

При производстве изотопа ^{239}Pu в результате некоторых реакций образуется ^{238}Pu. Небольшая часть нейтронов, испускаемых в процессе деления, обладает энергией, достаточной для возбуждения реакции ^{238}U(n,2n)^{237}U. ^{237}U - β-излучатель и с периодом полураспада 6,8 суток превращается в долгоживущий ^{237}Np. Этот изотоп в графитовом реакторе на природном уране образуется в количестве 0,1% от общего количества одновременно образующегося ^{239}Pu. Захват медленных нейтронов ^{237}Np приводит к образованию ^{238}Np. Поперечное сечение этой реакции 170 барн. Цепочка реакций может быть записана так:

$$^{238}U(n,\alpha) \xrightarrow{\beta^-\ 6{,}8\ сут} {}^{237}Np(n,\gamma)^{238}Np \xrightarrow{\beta^-\ 2{,}1\ сут} {}^{238}Pu$$

Поскольку здесь участвуют два нейтрона, выход пропорционален квадрату дозы облучения и отношение количеств ^{238}Pu к ^{239}Pu приблизительно пропорционально отношению ^{239}Pu к ^{238}U. Пропорциональность соблюдается не совсем точно из-за отставания в образовании ^{237}Np, связанного с 6,8 суточным периодом полураспада ^{237}U. Менее важным источником образования ^{238}Pu в ^{239}Pu является распад ^{242}Cm, образующегося в урановых реакторах.

^{238}Pu образуется также в результате цепочки реакций:

$$^{235}U(n,\gamma)^{236}U \xrightarrow{\beta^-\ 6{,}8\ суу} {}^{237}Np(n,\gamma)^{238}Np \xrightarrow{\beta^-\ 2{,}1\ сут} {}^{238}Pu$$

Поскольку это нейтронная реакция третьего порядка, отношение количества ^{238}Pu, образовавшегося таким путём, к ^{239}Pu приблизительно пропорционально квадрату отношения ^{239}Pu к ^{238}U. Однако эта цепочка реакций становится относительно более существенной при работе с ураном, обогащённым ^{235}U.

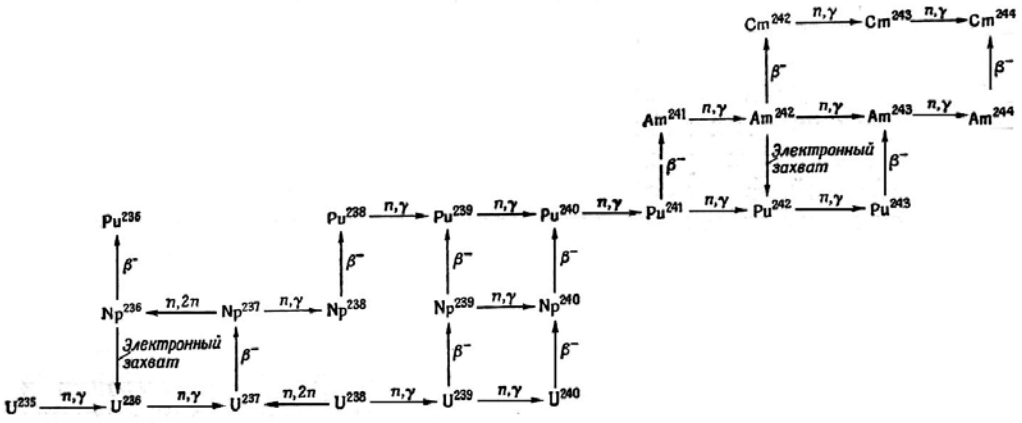

Рис. 44. Некоторые ядра, образующиеся в уране и плутонии при нейтронном облучении.

Наличие ^{236}Pu в плутонии, получаемом в реакторе, связано с подобным же рядом реакций:

$$^{238}U(n,2n)^{237}U \xrightarrow{\beta^- 6{,}8\ сут} {}^{237}Np(n,2n)^{236}Np \xrightarrow{\beta^- 22\ часа} {}^{236}Pu$$

Если уран или плутоний подвергнуть сильному нейтронному облучению, то, помимо уже описанных реакций, под действием нейтронов протекают другие важные реакции:

$$^{241}Am(n,\gamma)^{242m}Am \xrightarrow{\beta^- 16 час} {}^{242}Cm(n,\gamma)^{243}Cm(n,\gamma)^{244}Cm$$ и т.д.

$$^{241}Am(n,\gamma)^{242m}Am \xrightarrow{ИП\ 16\ час} {}^{242}Am(n,\gamma)^{243}Am \xrightarrow{\beta^- 15\ мин} {}^{244}Cm$$ и т.д.

и

$$^{241}Am(n,\gamma)^{242m}Am \xrightarrow{ЭЗ\ 16\ час} {}^{242}Pu(n,\gamma)^{243}Pu \xrightarrow{\beta^- 15\ мин} {}^{243}Am$$ и т.д.

При наработке плутония в ядерном реакторе приходится принимать специальные меры, чтобы не допустить образование паразитных изотопов.

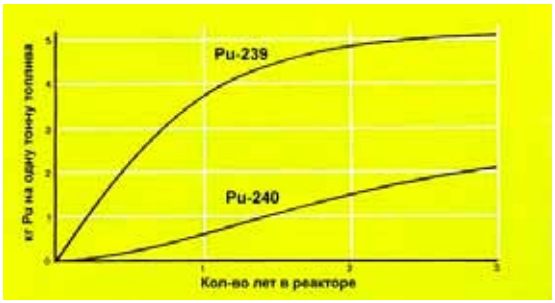

Рис. 45. Накопление изотопов плутония в реакторе (изменение изотопного состава: от оружейного – к реакторному, т.е. к негодному для оружейного использования).

Из **Рис.** видно, что при увеличении времени облучения урана растёт выход ^{240}Pu, но при этом (причём опережающими темпами) растёт выход ^{230}Pu. В результате, чем дольше пребывает плутоний в реакторе, тем больше в нём доля паразитного ^{240}Pu. Поэтому уран находится в промышленном реакторе не 6-8 месяцев (как в энергетическом реакторе), а всего 10-12 дней. Плутония получается мало, но зато он – изотопно чистый! Плутоний, производящийся в промышленных реакторах, содержит относительно небольшой процент ^{240}Pu (<7%). Это - плутоний «оружейного качества». В реакторах АЭС отработанное ядерное топливо имеет концентрацию ^{240}Pu более 20% - это плутоний «реакторного качества».

Общую меру облученности (отработанности) топливного элемента выражают в мегаватт-днях/тонну (МВт-день/т). Плутоний оружейного качества получается из элементов, с небольшим количеством МВт-день/т, в нем образуется меньше побочных изотопов. Топливные элементы в современных водо-водяных реакторах достигают уровня в 33000 МВт-день/т. Типичная экспозиция в оружейном бридерном (с расширенным воспроизводством ядерного горючего) реакторе 1000 МВт-день/т. Плутоний в Хэнфордских реакторах с графитовым замедлителем облучался до 600 МВт-день/т, в Саванне на реакторе на тяжёлой воде производился плутоний такого же качества при 1000 МВт-день/т (часть нейтронов уходила на образование трития). Во время Манхэттенского проекта топливо из природного урана получало всего 100 МВт-день/т, поэтому, получался очень высококачественный ^{239}Pu (всего 0.9-1% ^{240}Pu, остальные изотопы ещё в меньших количествах).

8.7 Выделение плутония из облучённого урана

Радиохимическое производство (и сопровождающие его методы радиохимического анализа и радиометрического контроля) – важнейшая часть ядерной индустрии. Облучение урановой мишени интенсивными потоками нейтронов поставило перед радиохимиками такие задачи, как выделение, концентрирование и очистка оружейного урана, оружейного плутония и нептуния.

Основная трудность извлечения плутония – отделение его от урана и продуктов деления. Из-за присутствия сильно радиоактивных продуктов деления многие операции проводятся при дистанционном управлении. Для того чтобы с конечным продуктом переработки - плутонием - можно было свободно обращаться, концентрация продуктов деления в уране нужно уменьшить в 10^6-10^7 раз. Обычно содержание плутония в облученном уране составляет всего несколько граммов на тонну, поэтому серьёзной проблемой является количественное отделение небольших количеств плутония от больших количеств продуктов деления и непрореагировавшего урана. Эта стадия необходима для уменьшения интенсивности γ-радиации, исходящей от продуктов деления, что должно способствовать более безопасному обращению с плутонием, а также для удаления примесей, активно поглощающих нейтроны. На детали процесса влияет режим ядерной реакции получения плутония и состав окружающих его материалов, неодинаковый во многих существующих типах реакторов и в реакторах разнообразных конструкций.

Несмотря на эти очевидные затруднения, разработан ряд удовлетворительных способов отделения и извлечения плутония. К этим методам относятся: 1) осаждение; 2) экстракция органическими растворителями; 3) ионный обмен и 4) пирометаллургия. Выбор методик в значительной степени определяется экономическими соображениями. Так, для относительно небольших операций может оказаться пригодным метод ионного обмена, а для экономичного производства плутония в крупных масштабах может

потребоваться экстракция органическими растворителями. Для переработки сильно облученного горючего будущих реакторов с большой плотностью энергии, вероятно, потребуются пирометаллургические методы.

Химические методы разделения основаны на том, что плутоний существует в нескольких степенях окисления. Например, плутоний (VI) гораздо менее устойчив, чем уран (V1), но плутоний (III) более устойчив, чем уран (III). Таким образом, можно приготовить растворы, в которых уран (VI) присутствует вместе с плутонием (Ш) или (IV). В этом случае осуществить разделение довольно легко. Отделение продуктов деления также основано на отличии их свойств от свойств плутония в той или иной степени окисления. Первоначальная стадия извлечения плутония - это период охлаждения, которое заключается в хранении облученных тепловыделяющих элементов в течение двух-четырех месяцев под водой, чтобы уменьшилась активность продуктов деления (главным образом ^{133}Xe и ^{131}J) и прошло достаточное время для распада изотопа ^{237}U до ^{237}Np и достаточно полного превращения ^{239}Np в ^{239}Pu.

Из-за низкой концентрации плутония, его нельзя высадить непосредственно. Поэтому, любой процесс разделения должен основываться на методах соосаждения с носителем. Первым был разработан крупномасштабный процесс выделения плутония из реакторного урана, основанный на использовании фосфата висмута. Процесс основывался на количественном соосаждении Pu^{4+} из кислотного раствора с носителем - фосфатом висмута, и на способности Pu^{6+} остаться в растворе в присутствии фосфат-висмутового носителя.

Для плутония разработаны циклы очистки с применением таких носителей, как фторид лантана, фосфат циркония, уранилацетат натрия, фениларсонат циркония и оксалат тория. Обычно используются четырёхвалентное и шестивалентное состояния, но есть циклы, основанные на различии в соосаждении трёхвалентного и четырёхвалентного плутония, например, с фениларсонатом циркония. Окислительно-восстановительный цикл, помимо отделения других элементов от нептуния и плутония, часто применяется для отделения этих элементов друг от друга. Различие в устойчивости степеней окисления и в кинетике изменения валентного состояния позволяет получить нептуний и плутоний в одном растворе в разных валентных состояниях и использовать различие в их поведении для разделения. Любые условия, достаточные для восстановления нептуния до четырёхвалентного состояния, приводят к восстановлению плутония до трёхвалентного состояния.

Рис. 46. Схема выделения плутония из облучённого урана и производство металлического плутония оружейного качества в ходе Манхэттенского проекта (США).

Метод осаждения с применением фосфата висмута - старейший метод извлечения плутония из облученного природного урана. В нём плутоний осаждается совместно с $BiPO_4$ и LaF_3, применяемыми в качестве носителей. Облученный нейтронами уран растворяют в азотной кислоте и к полученному раствору приливают серную кислоту, которая образует комплексное соединение с ураном, препятствующее его осаждению. Затем плутоний (IV) осаждают совместно с $BiPO_4$. Осадок растворяют в азотной кислоте, и плутоний (V) окисляется до плутония (VI), а образующийся осадок фосфата висмута удаляют. Оставшийся в растворе плутоний(VI) восстанавливается до плутония (IV), который снова осаждают с $BiPO_4$, и цикл очистки повторяют. После второго осаждения в качестве носителя применяется LaF_3; дальнейшая очистка и концентрирование плутония производятся таким же циклом окисления-восстановления. После этого концентрация плутония становится достаточной, и окончательную очистку проводят без носителя. Плутоний осаждается из кислого раствора в виде перекиси. Недостаток фосфат-висмутого процесса - извлечение исключительно плутония и переход всего урана в отходы из которых его потом трудно извлечь.

Эта радиохимическая технология известна в научных кругах под названием «Королева Мэри» (**Рис. 46)**. Облучённое топливо, извлечённое из реакторов «B» и «D», обрабатывали фосфатом висмута, с целью получения нитрат плутония, который затем отправляли в Лос-Аламос для изготовления бомбы,

задействованной в испытании «Тринити» («Троица») и бомбы, сброшенной на г. Нагасаки. Из-за высокой концентрации плутония в полученном продукте, на заключительной стадии очистки не было нужды в каком-либо носителе, поэтому осаждение пероксида плутония вели прямо из основного раствора. Пероксид был преобразован в пасту нитрата плутония, которая и направлялась в Лос-Аламос. В этом процессе выход плутония составлял более 95% и плутоний содержал примесей менее 1 части на 10^7 частей плутония. Процесс генерировал большое количества химических и радиоактивных отходов (примерно 10000 галлонов на метрическую тонну переработанного урана).

Разделение близких по химическим свойствам актинидов - урана, нептуния и плутония - основано на разнице в свойствах их четырех- и шестивалентных соединений. Нептуний в виде нептуний Np(IV) и плутоний в виде Pu(III) или Pu(IV) практически количественно захватываются при осаждении фторида лантана в определённой области кислотности в растворах соляной, азотной и серной кислоты. Большая очистка (коэффициент очистки, больше 1000) от урана получается в растворах серной кислоты, так как сульфатные ионы образуют прочные комплексы с ионами уранила. В шестивалентном состоянии нептуний и плутоний не захватываются.

В ходе лантанфторидного цикла облучённые урановые бруски растворяют в азотной кислоте. Азотная кислота - сильный окислитель при растворении и уран, и плутоний, и примеси окисляются. Нульвалентные атомы плутония превращаются в ионы Pu^{6+}. Плутоний растворяется вместе с ураном. Из этого раствора его восстанавливают до трехвалентного состояния сернистым газом, а затем осаждают фторидом лантана. Осадок кроме плутония содержит нептуний редкоземельные элементы. Но основная масса вещества уран - остается в растворе и отделяется от плутония. Полученный осадок растворяют вновь и окисляют нептуний до четырехвалентного состояния броматом калия. На плутоний этот реактив не действует, и при вторичном осаждении тем же LaF_3 трехвалентный плутоний переходит в осадок, а нептуний остается в растворе. Чтобы отделить осколки дарения, плутоний снова окисляют до шестивалентного состояния и вновь добавляют фторид лантана. Теперь редкоземельные элементы переходят в осадок, а плутоний остается в растворе. Затем полученные соединения плутония превращали в химически чистый тетрафторид PuF_4, который при 1200° восстанавливают парами бария. Так получали чистый плутоний.

Для производства плутония в большом масштабе из нескольких имеющихся методов разделения была выбрана экстракция органическими растворителями. Широко использовались два метода экстракции - пурекс- и редокс-процессы, а также различные их варианты.

ПУРЕКС-процесс (PUREX -plutonium/uranium/recovery/extraction) был внедрён в ядерную технологию в начале 1960-х. Этот процесс позволял извлекать из облучённого урана плутоний, уран и другие элементы путём непрерывной экстракции органическими растворителями. Урановое горючее растворяется в азотной кислоте с образованием раствора, содержащего уран, плутоний и продукты деления. Методы экстракции основаны на различиях в растворимости этих компонентов в органической жидкости, практически не растворимой в воде. После растворения в азотной кислоте, нитраты плутония и урана переходят в органическую фазу, тогда как продукты деления удаляются с водной фазой. Этот процесс оказался намного более экономичным, чем фосфат-висмутовая технология.

В технологической схеме, которая получила название **пурекс**-процесса (**Рис.**), раствор, после растворения ТВЭЛ в азотной кислоте, содержащий UVI, PuIV, продукты деления (ПД), экстрагируют раствором трибутил фосфата (ТБФ) в керосине. Экстракция ведётся при различных типах контактирования потоков. При этом U(VI), Pu(IV), и частично ПД переходят в органическую фазу, а основная часть ПД остается в водной фазе. ТБФ, содержащий уран и плутоний, контактирует с разбавленной азотной кислотой в колонне восстановительной реэкстракции, в результате чего плутоний восстанавливается до трехвалентного состояния (плутоний восстанавливается гидразином (NH_2OH) до Pu^{3+}, а уран – до U^{4+}). Вновь проводят экстракцию ТБФ в керосине. Уран и четырехвалентные ПД переходят в органическую фазу, трехвалентный плутоний экстрагируется плохо и остаётся в водном растворе. U^{4+} реэкстрагируют водой. Дальнейшая очистка плутония достигается за счет окисления его снова до четырехвалентного состояния и реэкстракции ТБФ.

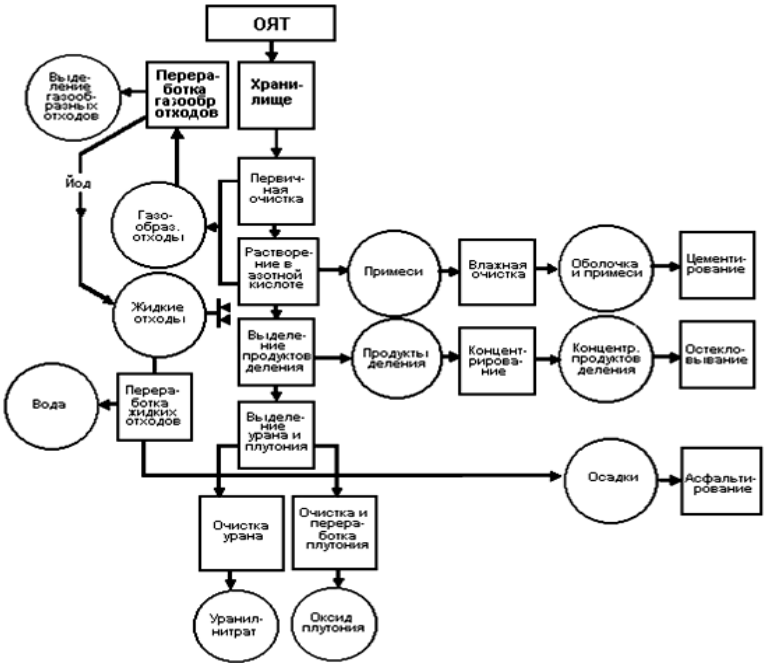

Рис. 47. Общая схема ПУРЕКС – процесса.

Пью́рекс-проце́сс *(от англ.* ***P****lutonium-****U****ranium* ***R****ecovery by* ***EX****traction (****PUREX****) - регенерация урана и плутония посредством экстракции) — технологический процесс переработки облучённого урана.*

Пурекс-процесс имеет три ветви: урановую, плутониевую и нептуниевую. Две из них мы рассмотрели в обзорах УРАН и НЕПТУНИЙ (в целом этот процесс описан в курсе лекций ЯДЕРНАЯ ИНДУСТРИЯ). Здесь мы коротко остановимся на плутониевой ветви.

Схема предусматривает совместную экстракцию U(VI) и Pu(IV, VI) из 1-4M HNO_3 трибутилфосфатом в инертном разбавителе для сброса основной массы продуктов деления, которые остаются в водном растворе. После промывки экстракта U и Pu разделяют селективной реэкстракцией Pu(III) разбавленной азотной кислотой в присутствии восстановителя (восстановительная реэкстракция). При этом плутоний переходит в водную фазу. Оставшийся в органической фазе уран реэкстрагируют разбавленным раствором азотной кислоты. Дальнейшую очистку проводят отдельно в урановой и плутониевых ветвях с помощью повторных циклов экстракции или с привлечением сорбционных процессов.

Разделение урана и плутония во всех технологических схемах осуществляют селективной восстановительной реэкстракцией плутония после операции их совместной экстракции. Для этой цели плутоний переводят из экстрагируемого четырехвалентного состояния в неэкстрагируемое трехвалентное с помощью противоточной промывки экстракта, содержащего уран и плутоний, водным раствором разбавленной азотной кислоты, в которой добавлен восстановитель. Восстановителями плутония могут быть: гидразин, гидроксиламин, ион железа (II), добавляемый в виде сульфомата, нитрата или ацетата, нитрат урана (IV), азотная кислота, аскорбиновая кислота, водород. Рабочая концентрация сульфомата железа (II) лежит в пределах 0,02-0,04M, что несколько превышает стехиометрическую величину.

Избыток восстановителя необходим для полноты восстановления плутония и зависит от концентрации плутония в растворе, концентрации нитрат-иона, общей кислотности и времени пребывания раствора в аппарате. Сульфамат железа (II) достаточно стабилен в азотнокислых растворах. С помощью этого восстановителя в противоточном экстракторе удается получить коэффициенты очистки плутония от урана и урана от плутония, равные соответственно 10^6 и 10^4.

Плутоний после отделения от основной массы урана подвергают дальнейшей очистке от продуктов деления, урана и других актинидов до собственного фона по γ- и β-активности. В качестве конечного продукта стремятся получать диоксид плутония. Все стадии технологического процесса очистки и концентрирования плутония требуют особой надежности систем обеспечения ядерной безопасности, а также защиты персонала и предотвращения возможности загрязнения окружающей среды ввиду токсичности плутония и высокого уровня α-излучения. При разработке оборудования учитывают все факторы, которые могут вызвать возникновение критичности: массу делящегося материала, гомогенность, геометрию, отражение нейтронов, замедление и поглощение нейтронов, а также концентрацию делящегося вещества в данном процессе и др. Минимальная критическая масса водного раствора нитрата плутония равна 510 г (при наличии водяного отражателя). Ядерная безопасность при осуществлении операций в плутониевой ветви обеспечивается главным образом специальной геометрией аппаратов (их диаметр и объем) и ограничением концентрации плутония в растворе, которая постоянно контролируется в определенных точках непрерывного процесса.

Технология окончательной очистки и концентрирования плутония основывается на проведении последовательных циклов экстракции или ионного обмена и дополнительной аффинажной операции осаждения плутония с последующим термическим превращением его в диоксид. Завершающая стадия плутониевой ветви - денитрация растворов плутония, осуществляемая осаждением оксалатов или термической денитрацией.

Первый цикл экстракции в плутониевой ветви проводят с использованием в качестве экстрагента 30%-ного ТБФ в инертном разбавителе, керосине или н-додекане. Плутоний в реэкстракте после отделения от урана находится в трехвалентном состоянии, поэтому перед проведением следующего цикла экстракции его окисляют либо нитритом натрия, либо газообразными окислами азота, пропуская их противотоком в насадочной абсорбционной колонне, либо электрохимически. Методы окисления нитритом натрия и газообразными оксидами азота несовершенны: применение нитрита натрия приводит к образованию солесодержащих среднеактивных отходов, а применение оксидов азота требует тщательной очистки как раствора плутония от нитрозных газов, которые в дальнейших операциях приводят к потерям плутония, так и отходящих газов при самой реакции окисления. Непрерывный процесс анодного окисления лишен указанных недостатков.

Водный раствор окисленного плутония поступает на экстракционный цикл, осуществляемый в трех экстракционных блоках: в первом идет экстракция плутония трибутилфосфатом и промывка, во втором - восстановительная реэкстракцию плутония, в третьем - промывка плутониевого водного раствора трибутилфосфатом. В качестве восстановителя используют нитрат U(IV), нитрат гидразина или нитрат гидроксиламина. Очистку плутония от нептуния можно улучшить добавлением азотистой кислоты.

Водный раствор плутония после первого цикла очистки в плутониевой ветви снова окисляют и подают на следующий цикл экстракции, который проводят идентично предыдущему. Обычно технологическая схема включает операцию упаривания водного раствора нитрата плутония для его концентрирования. Упаривание слабокислых растворов плутония обусловливает его необратимую полимеризацию и отложение продуктов на стенках выпарного аппарата, что приводит к частым остановкам процесса. Операция упаривания раствора плутония требует предосторожности с точки зрения ядерной безопасности и коррозии аппаратуры. Избежать этих осложнений можно, используя безупарочный вариант экстракционной очистки и концентрирования плутония, так называемый рефлакс-процесс.

Процесс осуществляют в двухколоночном экстракционном цикле. В среднюю часть первой колонны подают исходный раствор плутония, подлежащий очистке и концентрированию. Снизу колонны поступает раствор ТБФ, сверху - водный промывной раствор. Промытый органический экстракт затем поступает во вторую колонну, где плутоний реэкстрагируется в водный раствор. Небольшую долю этого водного экстракта выводят из процесса как плутониевый продукт. Остальную же часть возвращают в процесс, смешивая с водным промывным раствором, поступающим в первую колонну сверху. При достижении динамического равновесия концентрация плутония в водном растворе, выходящем из второй колонны, в десятки раз больше, чем она была в простом традиционном цикле без возврата. Применение рефлакс-технологии повышает эффективность очистки плутония от продуктов деления и позволяет без упаривания получить концентрированные растворы плутония (40-50 г/л), пригодные для осуществления оксалатного осаждения плутония. В результате двух циклов экстракции с использованием 30%-ного раствора ТБФ с CCl_4 в плутониевой ветви достигается очистка от циркония 2000 раз, от рутения 10000 раз, от РЗЭ в 50000 раз. Для получения достаточной очистки плутония при переработке глубоковыгоревшего топлива добавляют еще один, третий экстракционный цикл в ветви плутония (экстрагент - третичные амины).

Эффективным методом концентрирования плутония является ионный обмен, т. к. кроме концентрирования плутония он обеспечивает дополнительную очистку продукта. Используют сильноосновные аниониты (Дауэкс-1, А-17). Однако радиационная стойкость ионообменных смол позволяет использовать их лишь в условиях, когда интегральная доза облучения не превышает 100 Мрад.

Диоксид плутония получают осаждением пероксида Pu(III) или оксалата Pu(III) и Pu(IV) с последующим прокаливанием этих соединений. Оксалатное осаждение - наиболее распространенный способ денитрации плутония. Для типового перерабатывающего завода мощностью 1500 т/год установка отверждения плутония должна потреблять 15 т плутония в год. Удельная поверхность порошка PuO_2 сильно зависит от удельной поверхности осадка оксалата плутония, поэтому при осаждении оксалата контролируют кислотность исходного раствора, концентрацию щавелевой кислоты и скорость ее добавления, скорость перемешивания, валентность плутония, продолжительность и температуру процесса осаждения.

Осаждение оксалата Pu(IV) осуществляется добавлением в раствор $Pu(NO_3)_4$ щавелевой кислоты при температуре 50-60^o. Кислотность раствора и валентности плутония корректируют добавлением азотной кислоты, воды и перекиси водорода к исходному раствору. Образовавшийся оксалат плутония промывают и фильтруют на вращающихся вакуумных фильтрах. Маточные растворы, в которых содержится плутоний, концентрируют и возвращают в цикл в аппарат корректировки. Суспензию оксалата плутония

$[Pu(C_2O_4)_2 \cdot H_2O]$ с фильтра направляют на сушку и прокаливание. Прокаливание осуществляют при температуре 300-400^o в шнековой печи, имеющей ядернобезопасные размеры.

Термическое разложение оксалатов плутония происходит по схемам:

Для Pu(III)

$$Pu_2(C_2O_4)_3 \bullet 10H_2O \xrightarrow{70^oC} Pu_2(C_2O_4)_3 \bullet 2H_2O \xrightarrow{159^oC}$$

$$Pu_2(C_2O_4)_3 \bullet H_2O \xrightarrow{350^oC} PuO_2$$

Для Pu(IV)

$$Pu_2(C_2O_4)_2 \bullet 6H_2O \xrightarrow{110^oC} Pu_2(C_2O_4)_2 \bullet 3H_2O \xrightarrow{170-200^oC}$$

$$Pu_2(C_2O_4)_2 \bullet H_2O \xrightarrow{380^oC} PuO_2$$

На физические характеристики порошка PuO_2 влияют условия прокаливания: толщина слоя осадка в реакторе, время, температура и атмосфера прокаливания. Повышение температуры прокаливания способствует увеличению удельной поверхности порошка и снижению его химической активности. Оптимальной температурой прокаливания считают 750^o, при этом удельная поверхность возрастает до 25-35 м^2/г.

Диоксид плутония поступает в установку кондиционирования, где его подвергают прокаливанию, дроблению, просеиванию, комплектованию партий и упаковке.

Для изготовления смешанного уран-плутониевого топлива целесообразен метод химического соосаждения урана и плутония, позволяющий достичь полной гомогенности топлива. Такой процесс не требует разделения урана и плутония при переработке отработавшего топлива. В этом случае смешанные растворы получают при частичном разделении урана и плутония вытеснительной реэкстракций. Таким способом можно получать $(U, Pu)O_2$ для легководных ядерных реакторов на тепловых нейтронах с содержанием PuO_2 около 3%, а также для реакторов на быстрых нейтронах с содержанием PuO_2 20%.

В другом методе - **редокс-**процессе непрерывной экстракции - после растворения ТВЭЛ в азотной кислоте плутоний окисляют бихроматом калия до шестивалентного состояния, затем извлекают его вместе с ураном экстракцией гексоном из раствора алюминия в HNO_3 при недостатке азотной кислоты против стехиометрического по отношению к алюминию, что предотвращает окисление гексона азотной кислотой. Уран и плутоний переходят в органическую фазу, а ПД остаются в водной фазе. Органическую фазу очищают от продуктов деления промыванием раствором нитрата алюминия. Затем уран и плутоний реэкстранируют разбавленной HNO_3. Далее плутоний восстанавливают до 3^+, оставляя уран в степени окисления 6+ и разделяют их экстракцией урана гексоном. U(VI) переходит в органическую фазу, а Pu(III) – в водную. Затем уран реэкстрагируют разбавленной азотной кислотой, а плутоний подвергают дополнительным операциям очистки. Этот процесс подобен пирекс-процессу в том отношении, что выполняются одинаковые функции и берутся те же исходные вещества, но экстрагент и высаливатель другие. Экстрагентом служит гексон (метил-мзобутилкетон), а высаливателем обычных ионов является нитрат алюминия. Восстановление и окисление плутония осуществляют соответственно с помощью $Fe(SO_3NH_2)_2$. и $K_2Cr_2O_7$.

По третьему методу - ТТА-процессу - плутоний экстрагируется из исходного водного раствора раствором теноилтрифторацетона (ТТА) в бензоле, что обеспечивает отделение от урана и практически от всех продуктов деления, за исключением циркония. ТТА представляет собой хелатное соединение. Следы продуктов деления отмывают из органической фазы разбавленной азотной кислотой. Затем плутоний реэкстрагируют из органической фазы путем промывки восстановителем. Поскольку плутоний (III) не экстрагируется в заметной степени ТТА, он переходит в водную фазу. Цирконий не реэкстрагируется с плутонием и удаляется из экстр агента при промывке смесью щавелевой и азотной кислот. Преимущество данного процесса состоит том, что в этом случае не применяются высаливатели, содержащие ионы тех или иных металлов, поэтому упрощается удаление отходов. Однако большим недостатком является то, что экстракция происходит медленно и трудно осуществить непрерывный процесс.

В настоящее время разрабатываются пирометаллургические методы извлечения и концентрирования плутония: дистилляция, экстракция солями и экстракция расплавленными металлами.

Плутоний можно извлечь из расплавленного урана дистилляцией в вакууме при 1500-1800^o. Давление пара плутония при 1540^o в 300 раз больше, чем у урана. Может быть достигнута степень извлечения выше 99%. Главные проблемы способа состоят в выборе конструкционных материалов и разработке приемников для плутония. Легче осуществим метод дистилляции, в котором уран переводится в гексафторнд. Облученное горючее растворяют в трифториде хлора или брома. Гексафторид урана очищают и отделяют дистилляцией от фторирующих агентов и продуктов реакции. Плутоний оставляют в аппарате для растворения в виде осадка нерастворимого тетрафторида плутония. Этот осадок обрабатывают раствором нитрата алюминия для извлечения плутония экстракцией растворителем или фторируют содержащийся в нём плутоний до

гексафторида и затем извлекают его дистилляцией. Недостаток процесса возгонки фторида - высокая стоимости фтора. Однако он компенсируются выгодой работы с меньшими объемами перерабатываемых материалов и отходов и простотой фторидных процессов.

Плутоний успешно экстрагировался из расплавленного урана такими галогенидами, как UF_4 и MgF_2. Из расплавленной смеси UF_4 и металлического урана, взятых в одинаковых по весу количествах, 90% плутония переходит в солевую фазу. Путем повторных операции экстракции можно извлечь почти весь плутоний. Таким путем извлекают фторид или хлорид плутония, которые затем восстанавливают до металла. Экстракция расплавленными металлами. Серебро и магний не смешиваются с расплавленным ураном и оба удовлетворительно экстрагируют плутоний. В случае применения магния следует иметь в виду его высокое давление пара при температуре плавления урана. Магний можно отделить от плутония возгонкой. При использовании серебра последующее отделение плутония затруднительно. В настоящее время серебро предпочитают отделять дистилляцией. Церий и лантан также можно применять как возможные. Эти металлы не смешиваются с ураном в расплавленном состоянии, и хорошо экстрагируют продукты деления, особенно РЗЭ. Однако плутоний извлекается лишь частично. Методы экстракции расплавленными металлами отличаются невысокой избирательностью для отделения урана и плутония от продуктов деления, но пригодны при дистанционном контроле. По-видимому, они окажутся перспективными, если будут допустимы сравнительно высокие концентрации радиоактивных загрязнений в извлекаемом металле.

8.8 Металлургия плутония

8.8.1 Способы получения металлического плутония

В результате экстракции органическими растворителями получается разбавленный раствор нитрата плутония в азотной кислоте. Чтобы избежать больших потерь при осаждении и свести к минимуму размеры применяемого оборудования, исходный раствор, полученный путем экстракции, концентрируют до содержания плутония 10-100 г/л. Это достигается выпариванием, экстракцией растворителями или методами ионного обмена. Далее из концентрата можно получить металлический плутоний, осаждая подходящее соединение, например трифторид плутония, который затем восстанавливается до металла, оксалаты плутония или перекись плутония, которые перед восстановлением переводятся сухим методом в PuF_4. Выбор процесса зависит от степени чистоты исходного раствора, легкости извлечения из него плутония, желаемых коэффициентов очистки и от применяемого оборудования.

Металлический плутоний может быть получен пирохимическим восстановлением любого галогенида плутония подходящим щёлочным или щёлочноземельным металлом. Обычно PuF_4 восстанавливается кальцием и йодом, это стандартный в США метод. Высокую очистку достигают электролитическим рафинированием пирохимически произведенного металла. Это делается в ячейках для электролиза при 700° с электролитом из натрия, калия и хлорида плутония, вольфрамовым или танталовым катодом. Таким образом получают 99,99% плутоний. Другие способы базируются на прямом пирохимическом восстановлении и электрорафинировании плутониевого оксида. Преимущество этих методов - меньшее количество утилизируемых отходов производства. Обработка расплавленного плутония и литье плутония осуществляется из оборудования, сделанного из слегка окисленного тантала. Литейные формы могут изготовляться из графита, мягкой стали или чугуна, если они покрыты фторидом кальция или оксидом циркония или иттрия

Лучшей реакцией является восстановление тетрафторида PuF_4 кальцием, так как он не гигроскопичен, и удобнее в обращении, чем литий. Хлорид, бромид и иодид плутония сильно гигроскопичны, поэтому нужно соблюдать особую предосторожность, чтобы в них не попала влага до операции восстановления в бомбе. Восстановление PuF_4 проводят при нагревании в индукционной печи или в печи сопротивления реактора, выложенного огнеупорным материалом и выдерживающего давление 28 атм при температурах до 1600°. К PuF_4 добавляется кальций (избыток 25% против стехиометрического количества); реакция начинается около 600^o. При введении подогревающей добавки из эквивалентных количеств кальция и йода выделяется дополнительное количество тепла, и улучшаются свойства шлака. Оптимальное отношение йода к PuF_4 зависит от веса восстанавливаемой шихты. В процессе восстановления в бомбе достигаются выходы выше 99%. Обычно получают плутоний со степенью чистоты 99,87 вес.%. Металл может содержать примеси 0,05% железа, 0,04% углерода, 0,02% хрома, 0,02% никеля, 0,01% сурьмы и 0,01% кремния. Однако при соблюдении необходимых мер предосторожности восстановлением в бомбе можно получить плутоний со степенью чистоты 99,97%.

К металлическому плутонию предъявляются особенно высокие требования по чистоте в отношении элементов, изотопы которых обладают большим сечением захвата нейтронов. Некоторые из них (Nd, Sm, Eu, Gd, Ru) являются продуктами деления. После отделения от урана и осколков и тщательной очистки солей или окислов плутония, металл может быть получен различными путями. Большинство методов основано на восстановлении галогенидов плутония или его окиси щелочноземельными металлами.

Как уже упоминалось, впервые металлический плутоний был получен восстановлением тетрафторида плутония парами бария при 1400° под высоким вакуумом. Впоследствии в качестве исходного соединения применяли фториды плутония, которые менее гигроскопичны, чем хлориды. Однако применение хлоридов для получения металлического плутония позволяет уменьшить в 100 раз нейтронный поток, образующийся под действием α-излучения на галогены. Это значительно облегчает условия работы. Безводные галогениды получают из диоксида плутония.

Полученный из галогенидов металлический плутоний содержит 1% примесей. Один из приёмов дополнительной очистки является метод зонной плавки, позволяющий получать металл исключительно высокой чистоты. Существуют методы получения плутония электролизом расплавов хлоридов. Электролитический метод позволяет получать металл с содержанием 99,98% плутония. Интересен метод высокотемпературного разложения PuC_2 с возгонкой плутония, в результате которого образуется продукт высокой чистоты. Однако использование этого метода связано с рядом технических трудностей.

Во всех описанных выше методах получается порошкообразный металл, из которого плавлением изготовляют слитки. Возможно прямое получение компактного плутония путем восстановления хлорида плутония металлическим кальцием в присутствии йода.

Рис. 48. Кольцо из электролитически очищенного металлического плутония (чистота более 99.96%). Такие кольца получали в Лос-Аламосе и отправляли в Роки Флетс для производства оружия. Масса кольца 5.3 кг, достаточна для изготовления современного стратегического заряда, диаметр - 11 см. Кольцевая форма важна для обеспечения критической безопасности.

8.8.2 Требования к оружейному плутонию

При комнатной температуре плутоний представляет собой кристаллическую структуру, называемую «альфа фаза». В этой форме плутоний имеет свою максимальную плотность - 19.84 г/см^3 при 20°. Атомы в α-альфа фазе связаны ковалентной связью (в отличии от металлической связи), поэтому физические свойства ближе к минералам, чем к металлам. Это твёрдый, хрупкий и ломающийся в определенном направлении материал. α-фаза не поддается обработке обычными для металлов технологиями производства. В самом «лёгком» виде, дельта-фазе (плотность 15.9), плутоний достаточно ковкий и вязкий. Так же и в γ-фазе. В δ-фазе плутоний имеет нормальные металлические свойства, включая превосходную ковкость. Дельта фаза имеет прочность и пластичность сходную с алюминием, делая простой обработку и отливку. Хотя δ-фаза и проявляет аномальное свойство сжиматься при нагревании, этот отрицательный коэффициент расширения невелик. Плутоний в δ-фазе неустойчив - стремится осесть в плотную α-фазу под очень небольшим давлением, увеличив на 25% свою плотность. В чистом плутонии δ-фаза не может существовать при давлении более 1 килобара. Увеличение на 25% плотности урана (или α-фазы плутония) требует давления 450 килобар. При давлениях свыше 30 килобар плутоний существует только в α- и β-фазах. Это свойство перехода дельта→альфа фазы (и увеличение его плотности на 25%) используется в имплозионных схемах оружия.

Плутоний можно стабилизировать в δ-фазе при комнатной температуре путем сплавления его с трёхвалентными металлами, такими как галлий, алюминий, церий, индий и америций в концентрации нескольких молярных процентов. Даже стабилизированная, δ-фаза продолжает оставаться легко сжимаемой давлением в несколько килобар. Интересен факт, что в стабилизированном галлием плутонии δ-фаза действительно метастабильна при содержании галлия менее 4 мол%. Это означает, что процесс фазового перехода под давлением в α-фазу необратим. Для оружейного применения плутоний стабилизируется в δ-фазе сплавлением с 3-3.5 мол% (0.9-1% по весу) галлия. Этот сплав стабилен при температурах по крайней мере от -75 до 475°. Стабилизация предотвращает изменения объема плутония при колебаниях температуры после изготовления, что может повредить прецезионно сделанные компоненты устройства. Сплав имеет почти нулевой коэффициент теплового расширения. Так же он облегчает литье из-за наличия единственного эпсилон→дельта фазового перехода во время охлаждения. Наконец, стабилизация снижает восприимчивость плутония к коррозии. Трёхпроцентный галлиевый сплав применялся в Gadget`e и Fat Man`e. Если не считать галлий, плутоний в их ядрах был очень высокой чистоты.

Алюминий хороший материал для сплавления, но первоначально он отсутствовал в американской оружейной программе из-за образования нейтронов в результате реакций α→n. Церий не использовался вообще, т.к. он не давал стойкость к коррозии. Плутоний для ядер бомб покрывается слоем металла (обычно никелем) для защиты его от ржавчины и снижения биологической опасности. Никелем были покрыты ядра Fat Man'a, бомб, взорванных в операции Crossroads, и первом советском заряде РДС-1.

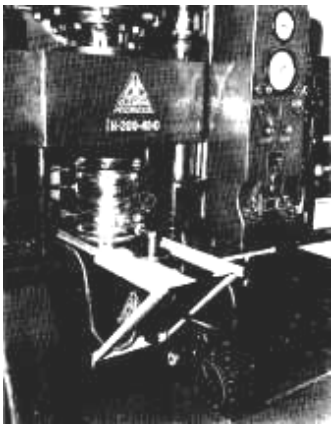

Рис. 49. Пресс для горячего прессования плутониево-галлиевого сплава в виде полусфер. Этот пресс использовался в Лос-Аламосе для изготовления плутониевых ядер для зарядов, взорванных в Нагасаки и в испытании Тринити.

Потенциально серьезная проблема для использования плутония в оружии - наличие у него высокого фона спонтанных нейтронов. Присутствие нейтронов в то время, когда ещё только достигается надкритическая масса ведёт к преждевременной ядерной реакции, недостаточному выходу энергии и в некоторых случаях вообще к отказу оружия, лёгкому «хлопку». Существуют два источника нейтронного фона: изотоп ^{240}Pu, чей уровень спонтанного деления достаточен для появления 10^6 нейтронов/с·кг и взаимодействие сильного α-излучения с легкими элементами, находящимися в плутонии. Эти проблемы заставили отказаться от пушечного дизайна домбы. Поэтому присутствие лёгких элементов в плутонии должно находиться в отношении одна часть к миллиону, что трудно добиться. Алюминий, из которого α-частицы выбивают нейтроны, не очень желательное вещество для сплавления.

Рис. 50. Плутониевые изделия, изготовленные во время манхэттенского проекта на представленном на предыдущем снимке прессе. Две полусферы из плутониево-галлиевого сплава, покрытые снаружи никелем для защиты от коррозии. Из них было изготовлено ядро одного из первых американских атомных взрывных устройств. В современных мощных атомных бомбах радиус сфер намного меньше.

8.8.3 Плавка, отливка и обработка изделий из плутония

К сожалению, полученный в пирохимических процессах плутоний не годится на роль конструкционного материала – тепловыделяющих элементов энергетических ядерных реакторов из него не сделать, заряда атомной бомбы не отлить. При каких бы «ультращадящих» режимах ни отливали детали из чистого плутония, в отливках при затвердевании всегда появятся трещины. При 640° (температура плавления) твердеющий плутоний образует кубическую кристаллическую решетку. По мере уменьшения температуры плотность металла постепенно растет. Но при температуре 480° плотность плутония резко падает - атомы плутония перестраиваются в кристаллической решетке. Она становится тетрагональной и очень «рыхлой». Такой плутоний может плавать в собственном расплаве, как лёд на воде. Температура продолжает падать и при 451° атомы снова образуют кубическую решетку, но располагаются на большем, чем в первом случае, расстоянии друг от друга. При дальнейшем охлаждении решетка становится сначала орторомбической, затем моноклинной. Всего плутоний образует шесть различных кристаллических форм! Две из них отличаются замечательным свойством – отрицательным коэффициентом температурного расширения: с ростом температуры металл не расширяется, а сжимается. Когда температура достигает 122° и атомы плутония в шестой раз перестраивают свои ряды, плотность меняется особенно сильно – от 17,77 до 19,82 г/см^3. Больше, чем на 10%! Соответственно уменьшается объем слитка. Если против напряжений, возникавших на других переходах, металл ёще мог устоять, то в этот момент разрушение неизбежно. Для изготовления деталей из этого металла металлурги легируют плутоний галлием и получают отливки без единой трещины. Из них и делают плутониевые заряды ядерных бомб.

Плавка и отливка плутония осложняются высокой реакционной способностью расплавленного металла. Чтобы избежать реакции с воздухом, плутонии и богатые плутонием сплавы плавят в высоковакуумных печах. Условия плавки и литья бедных плутонием сплавов определяются характеристиками основного компонента сплава. Алюминиевые сплавы, содержащие до 20 вес.% плутония, были получены в тигельной печи, которая помещалась в камеру с перчатками, заполненную аргоном. Сначала плавился алюминий, а затем при интенсивном перемешивании расплава добавлялись небольшие куски плутония. Успешно применяется и метод дуговой плавки на охлаждаемом поду. При дуговой плавке отпадает необходимость подбора подходящего материала для тигля. Ввиду сильной восстановительной способности плутония в качестве материала контейнеров для расплавленного металла пригодны только более устойчивые оксиды, карбиды, нитриды, бориды и силициды. Обычно тигли для расплавленного плутония, нагреваемого при температурах не выше 1200°, изготовляют из высокообожженных окиси магния и окиси кальция. При этом заметной реакции между тиглем и расплавом не наблюдается. Если время плавки ограничено и допускает значительное загрязнение углеродом, то применяют графитовые тигли. Покрытие графита фторидами магния или кальция расширяет возможность применения таких тиглей. Для более высоких температур (выше 1500°), используются тигли из диоксида тория. В качестве материалов для тиглей применялись также некоторые тугоплавкие металлы. Меньше всего реагирует с плутонием вольфрам, но из

него трудно изготовлять сосуды подходящей формы, имеющие настолько малую пористость, чтобы они не впитывали плутоний. Танталовые тиглей пригодны для расплавленного плутония, если максимальная температура равна 1000°. Относительно низкая температура плавления, большая жидкотекучесть и высокая плотность плутония, а также малое изменение объема при затвердевании - благоприятные литейные свойства. Но большие положительные и отрицательные изменения объема в твёрдом состоянии вследствие аллотропических превращений делают практически неосуществимой отливку изделий сложной формы.

Отливка изделий простой формы, например цилиндров и сфер, не представляет затруднений. В некоторых случаях для отливки более сложных изделий можно конструировать изложницы, разбираемые при достаточно высокой температуре, чтобы полиморфные превращения могли пройти без задержки, создаваемой изложницей. Чаще всего материалом литейной формы служит оксид магния. Используется также графит, покрытый фторидом магния или фторидом кальция. Из него можно изготовлять изложницы с более точными размерами. Хорошим материалом для охлаждаемых водой изложниц или массивных изложниц, от которых должно отводиться большое количество тепла, служит медь. При литье бедных плутонием сплавов выбор материала изложницы определяется свойствами основного компонента сплава. Для изготовления прототипов сердечников прутковых ТВЭЛ для реактора EBR-II сплав урана с 20 вес.% плутония успешно отливался под давлением в стеклянные трубки, покрытые диоксидом тория

Горячая и холодная прокатка, выдавливание, ковка и волочение проволоки из плутониевых сплавов производятся обычными способами при надлежащем изолировании оборудования с целью предотвращения загрязнения плутонием. Плутоний-алюминиевые сплавы отличаются очень высокой стойкостью против окисления. Их поверхность может быть очищена химическими и ультразвуковыми методами от активных загрязнений частицами плутония. Это значительно упрощает последующее одевание оболочки на сплав.

8.8.4 Сложность обращения с металлическим плутонием

Хотя испускание нейтронов не является такой уж серьезной проблемой для конструкторов оружия, оно может создать сложности в производстве и обращении с таким зарядом. Нейтроны создают дополнительный вклад в облучение тех, кто собирает или обслуживает оружие. Заряды требующие непосредственный контакт с людьми, например Davy Crocket, требуют по этой причине сверхчистого плутония с низким уровнем испускания нейтронов.

Непосредственная отливка и обработка плутония выполняется вручную в герметичных камерах с перчатками для оператора. Это подразумевает совсем небольшую защиту человека от испускающего нейтроны плутония. Поэтому плутоний с большим содержанием ^{240}Pu обрабатывается только дистанционно либо жёстко ограничивается время работы с ним каждого работника. Этими причинами (радиоактивность, худшие свойства ^{240}Pu) объясняется, почему плутоний реакторного качества не применяется для изготовления оружия - дешевле нарабатывать оружейный плутоний в специальных реакторах. Хотя и из реакторного плутония, как мы уже говорили, можно изготовить ядерное взрывное устройство.