

ОТЗЫВ

официального оппонента на диссертацию Долгодворова Алексея Павловича на тему: “**Моделирование поведения продуктов деления в нитридном топливе**”, представленную на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 05.14.03 – Ядерные энергетические установки, включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации.

В настоящее время в России активно ведутся работы, направленные на выполнение федеральной целевой программы «Ядерные энерготехнологии нового поколения на период 2010-2015 годов и на перспективу до 2020 года» в частности, на реализацию технологий замкнутого ядерного топливного цикла и разработку интегрированных систем кодов нового поколения.

Смешанный нитрид урана и плутония выбран в качестве перспективного топлива для реакторов на быстрых нейтронах. Разработка ТВЭЛОВ быстрых реакторов с топливом из уран-плутониевого нитрида, требует проведения, как прямых экспериментов, так и развития методов моделирования поведения продуктов деления в таком топливе в процессе эксплуатации.

Существующие в настоящее время термодинамические модели поведения продуктов деления в уран-плутониевом нитриде и программные комплексы (ИВТАНТЕРМО, АСТРА-4, SOLGASMIX-PV и др.) не объединены с кинетическими моделями миграции продуктов деления и не учитывают структуру и локальный характер протекания процессов в топливе при его эксплуатации.

В связи с этим необходимо построение моделей описывающих поведение продуктов деления нитридного топлива при облучении быстрыми нейtronами.

Поэтому, актуальность диссертации Долгодворова Алексея Павловича не вызывает сомнения и обладает несомненной научной и практической значимостью.

Заявленной целью работы является разработка физико-химической модели формирования молекулярно-фазового состава в смешанном нитриде урана и плутония (СНУП) в процессе облучения, транспорт продуктов деления и их вынос в зазор между топливом и оболочкой, а также создание программного модуля, реализующего разработанную модель.

Диссертация состоит из введения, 4-х глав, заключения, списка литературы и изложена на 128 страницах, содержит 58 рисунков и 9 таблиц. Библиография включает 92 наименования.

Во введении обосновывается актуальность, сформулированы цель и задачи работы, изложены научная новизна и практическая значимость работы, приведены основные положения, выносимые на защиту, и обоснована достоверность полученных результатов. Приведены данные по публикациям автора, апробации работы и выделен личный вклад автора.

В первой главе выполнен обзор литературных данных по основным физическим и физико-химическим свойствам нитридов урана, нитрида плутония и смешанного уран-плутониевого нитрида, рассмотрен химический состав облученного СНУП топлива. Выявлены металлические продукты деления (ПД), полностью (цирконий, иттрий и лантаноиды) и ограниченно (ниобий, молибден) растворимые в топливной матрице, а также элементы образующие отдельные фазы нитридов (Ba, Sr) и интерметаллидов (Ru, Rh, Pd).

Представлен сравнительный анализ работ по термодинамическому моделированию молекулярно-фазового состава облученных UN, (U,Pu)N, а также топлив содержащих примесь кислорода. Показано, что примесь кислорода существенно влияет на поведение урана, бария, стронция и не оказывается на поведении технеция, молибдена и интерметаллидов благородных металлов.

Сделан вывод о необходимости построения объединенной термодинамической и кинетической моделей описывающих поведение продуктов деления нитридного топлива при облучении быстрыми нейтронами

и разработки соответствующего программного модуля.

Во второй главе рассмотрена модель поведения облученного СНУП топлива, содержащего продукты деления и описан химический модуль для термодинамического моделирования равновесного состава.

В топливном зерне происходит генерация продуктов деления, которые диффундируют к поверхности зерна. Диффузия ПД в сферически симметричном зерне происходит в атомарном виде и описывается системой уравнений независимой диффузии с источниками, зависящими только от времени. Распад продуктов деления не учитывается. Рассматривается межзеренная пористость двух видов: пузыри на гранях и ребрах. Вторичные фазы образуются только на границе раздела в межзеренных порах. Для задания граничных условий проводится термодинамическое моделирование равновесного молекулярно-фазового состава топлива на основе решения системы уравнений закона действия масс.

Возможность применения термодинамических методов в модели обосновывается оценкой характерных времен процессов внутризеренной диффузии, установления газового равновесия в межзеренных порах. К сожалению, для полноты картины, автор не приводит оценок времени химических реакций образования вторичных фаз, хотя для рассматриваемой области температур 800-1600 К оно не превышает нескольких минут.

В этой же главе подробно рассмотрены математические методы решения задач диффузии продуктов деления и термодинамического моделирования. Приведены численная реализация и алгоритмы.

Следует отметить, что в термодинамическую модель нитридного топлива при облучении включен учет влияния стехиометрического состава, а также примесей кислорода и углерода.

В главе 3 описаны результаты тестирования химического модуля и обоснования корректности его работы на основании сравнения молекулярно-фазового состава с литературными данными. В своей работе наработку ПД автор, Долгодворов А.П. рассчитывал с помощью программного модуля

BONUS, в то время как в сравниваемых литературных данных использовались другие коды. Поэтому существуют различия в массовых долях таких продуктах деления, как Mo, Tc, La, Te и I. Некоторые отличия в количестве образующихся вторичных фаз, например Sr_3N_2 и Cs_2Te , связаны с разными термодинамическими свойствами веществ в используемых базах данных.

Подробно рассмотрено поведение металлических продуктов деления Mo, Tc, теллуридов цезия и бария, а также интерметаллидов благородных металлов в нитридном топливе в зависимости от температуры и выгорания тяжелых атомов. Автором показано, что результаты расчетов концентраций Mo, Tc, Rh_3U и Pd_3U с использованием химического модуля практически совпадают с литературными данными. Различие в концентрациях Ru_3U и Ru связано с образованием интерметаллида $CeRu_2$, свойств которого в термодинамической базе данных химического модуля нет.

С использованием химического модуля автор оценил твердотельное распухание топлива на уровне 0,4 % на % выгорания т.а., что хорошо согласуется с литературными данными.

Особый интерес представляет термодинамическое моделирование молекулярно-фазового состава облученного СНУП топлива с примесью кислорода. Автором показано существенное влияние примеси кислорода на фазовый состав топлива и парциальное давление азота. Кислород, взаимодействуя с щелочноземельными ПД образует их оксиды, поэтому фазы полуторных нитридов бария и стронция не образуются. В тоже время образуется дополнительное количество полуторного нитрида урана по сравнению с топливом без примеси кислорода.

В целом сравнение результатов термодинамического моделирования нитридного топлива с продуктами деления с использованием разработанного химического модуля показали удовлетворительное согласие с литературными данными.

Четвертая глава посвящена сравнительному анализу результатов расчета концентраций актинидов U, Pu и продуктов деления по разработанной модели с

послереакторными исследованиями двух видов нитридного топлива $(U_{0,55}Pu_{0,45})N$ и $(U_{0,4}Pu_{0,6})N$ твэлов облученных в реакторе БОР-60 до максимального выгорания 9,4 и 12,1% т.а. в рамках проекта BORA-BORA.

Расчеты проводились в соответствии со сценарием облучения в эксперименте BORA-BORA, заданных параметрах таблеток их актинидом составе, температуре топлива и давлении под оболочкой.

В диссертации представлены экспериментальные, полученные методом электронно-зондового рентгеноспектрального микроанализа и расчетные распределения концентраций актинидов U, Pu и продуктов деления Cs, Mo, Xe, Nd, Zr и Pd по радиусу таблетки. Поскольку концентрации продуктов деления в топливе существенно зависят от выгорания, проводилось сравнение расчетного и экспериментального выгораний для указанных видов топлив. Ошибка при расчетах не превышала 4%.

Рассчитанный профиль урана в зерне и во вторичных фазах на 2-3% мас. ниже полученного экспериментально. Экспериментальный профиль урана, полученный с помощью электронно-зондового рентгеноспектрального микроанализа имеет флуктуации от 30 до 50% мас., поэтому невозможно однозначно утверждать о наличии интерметаллидной фазы $(Ru,Rh,Pd)_3U$ массовая доля которой составляет $\sim 45\%$. Однако, как правильно утверждает автор, по экспериментальному профилю Pd можно утверждать о присутствии преципитата Pd_3U , поскольку массовая доля Pd в этом соединении составляет $\sim 57\%$, а флуктуации концентрации палладия значительно больше 2% мас.

Диссидентом Долговоровым А.П. показано, что моделирование объясняет характер профилей концентраций U, Pu, Cs, Xe, Mo, Pd, Zr и Nd.

В целом результаты сравнительного исследования показали корректное согласие расчетных и экспериментальных распределений концентраций актинидов U, Pu и продуктов деления Zr, Nd, Mo и Pd по радиусу топливных таблеток с наибольшим выгоранием для двух типов топлива.

Наибольшей научной новизной отличаются вторая, третья и четвертая главы, в которых:

- разработана термодинамическая модель СНУП топлива, содержащего продукты деления, примеси кислорода и углерода,
- разработан программный модуль для определения равновесного молекулярно-фазового состава топлива,
- проведено объединение термодинамической и кинетической моделей с моделью генерации продуктов деления,
- показано корректное согласие расчетных и экспериментальных данных по радиальному распределению актинидов U, Pu и продуктов деления Nd, Mo, Zr, Pd в топливе с наибольшим выгоранием в экспериментах BORA-BORA по облучению смешанного нитридного топлива в реакторе БОР-60.

Наиболее важным с практической точки зрения результатом, полученным автором работы, является:

- разработка программного модуля, который вошел в состав твэльного кода для расчета работы твэла в реакторе на быстрых нейтронах.

Несмотря на многочисленные достоинства, диссертация не лишена недостатков, из которых следует отметить следующие:

- утверждение о том, что "углерод в незначительных количествах растворим в матрице нитридного топлива" не верно; имеет место слабое отклонение от идеального твердого раствора в системе UC-UN,
- Ba и Sr образуют отдельные фазы нитридов (Ba_3N_2 , Sr_3N_2) нерастворимые в топливной матрице, поэтому их можно считать "связанными", а Zr, La, Ce, Nd, Nb находятся в твердом матричном растворе диффундируют в нем и поэтому их нужно считать "несвязанными" (стр.43),
- непонятно почему коэффициент активности молибдена $\gamma_{Mo}=10^6$?
- из каких соображений выбраны коэффициенты активности Cs, Mo_2N , Sb?
- для UC, PuC коэффициент активности γ должен быть равен 1, так же, как и нитридов редкоземельных элементов, поскольку они образуют почти идеальный твердый раствор в $(U,Pu)N$,
- в целом прекрасно оформленная диссертация содержит досадные промахи такие как: вместо YN написано ZrY(стр.17), вместо - RbI- PbI(стр.22).

Приведенные замечания не меняют общей положительной оценки диссертационной работы. В целом работа выполнена на высоком научном уровне. Достоверность полученных автором Долгодворовым А.П. результатов не вызывает сомнений, поскольку термодинамическое моделирование молекулярно-фазового состава облученного нитридного топлива проводится на основе решения уравнений закона действия масс, а разработанная автором объединенная модель термодинамики, кинетики и генерации продуктов деления и программный модуль основаны на апробированных физических моделях транспортных процессов в ядерном топливе.

Личный вклад автора, также не вызывает сомнений, т.к. именно им, либо при его непосредственном участии проводилась разработка математической и физико-химической моделей описывающих термодинамику системы "топливо-продукты деления", а также кинетику выхода продуктов деления из нитридного топлива в процессе облучения в быстром реакторе.

Автором Долгодворовым А.П. разработан программный модуль и выполнены расчеты, исследования и анализ поведения продуктов деления в смешанном уран-плутониевом нитридном топливе, на основании которых обосновано и сформулировано заключение диссертации.

Полученные данные достаточно полно отражены в опубликованных статьях, в том числе в журналах из списка ВАК и включенных в глобальный индекс цитирования Scopus.

Полученные Долгодворовым А.П. на основе построенной физико-химической модели поведения ПД в топливной матрице и газовой фазе научно обоснованные результаты, актуальны и позволили решить важную научно-техническую задачу описания ресурсного поведения продуктов деления в выгорающем смешанном уран-плутониевом нитридном топливе и создания программного модуля.

Диссертация Алексея Павловича Долгодворова является законченной научно-квалификационной работой, отвечающей требованиям, предъявляемым к диссертационным работам на соискание учёной степени кандидата технических наук по специальности 05.14.03 – "Ядерные

энергетические установки, включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации" и соответствует требованиям п. 9 «Положения о присуждении учёных степеней». Долгодворов Алексей Павлович достоин присуждения ему ученой степени кандидата технических наук по специальности 05.14.03 – "Ядерные энергетические установки, включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации".

Автореферат полностью отражает содержание диссертации.

Официальный оппонент,
кандидат технических наук,
ведущий научный сотрудник
ФГУП НИИ НПО "ЛУЧ"



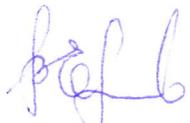
Д.Ю. Любимов

"17" 01. 2018 г.

Подпись Д.Ю. Любимова удостоверяю:

Ученый секретарь

ФГУП НИИ НПО "ЛУЧ"



В.П. Ермаченко