

3. **Kaliatka A., Uspuras E., Vaisnoras M.** Uncertainty and sensitivity analysis of parameters affecting water hammer pressure wave behaviour. — *Kerntechnik*, 2006, v. 71, № 5—6, p. 270—278.
4. **Kaliatka A., Uspuras E., Vaisnoras M.** Benchmarking analysis of water hammer effect using RELAP5 code and development of RBMK-1500 reactor main circulation circuit model. — *An. Nucl. Energy*, 2007, v. 34, № 1—2, p. 1—12.
5. **Glaeser H.G.** Uncertainty evaluation of thermal-hydraulic code results. — In: *Proc. of the Intern. Meeting on «Best-Estimate» Methods in Nuclear Installation Safety Analysis (BE-2000)*. Washington DC, USA, 2000, p. 20.
6. **Cukier R., Fortuin C., Shuler K. e.a.** Study of the sensitivity of coupled reaction systems to uncertainties in rate coefficients. 1. Theory. — *J. Chemical Physics*, 1973, v. 59, p. 3873—3878.
7. **Соболев И.М.** Об оценке чувствительности нелинейных математических моделей. — *Мат. моделирование*, 1990, т. 2, № 1, с. 112—118.
8. **Сальтелли А., Соболев И.М.** Анализ чувствительности нелинейных математических моделей: численные опыты. — Там же, 1995, т. 7, № 11, с. 16—28.
9. **Соболев И.М.** Глобальные показатели чувствительности для изучения нелинейных математических моделей. — Там же, 2005, т. 17, № 9, с. 43—52.
10. **Sinclair J.** Response to the PSACoin Level S Exercise. PSACoin Level S Untercomparison. Nuclear Energy Agency, OECD, 1993.
11. **Bolado-Lavin R., Castaings W., Tarantola S.** Contribution to the sample mean plot for graphical and numerical sensitivity analysis. — *Reliability Engng Design*, 2009, v. 94, № 6, p. 1041—1049.
12. **SIMLAB.** Version 2.2. User Manual. European Commission Joint Research Center, IPSC, Ispra, 2005.

Поступило в Редакцию 29.01.10

УДК 621.039.59

НЕТРАДИЦИОННАЯ ПЕРЕРАБОТКА ОКСИДНОГО ТОПЛИВА БЫСТРЫХ РЕАКТОРОВ

Устинов О.А., Полуэктов П.П., Суханов Л.П. (ОАО «ВНИИНМ», г. Москва)

Наиболее перспективным вариантом ядерного энергетического комплекса в настоящее время рассматривается сбалансированное сочетание тепловых и быстрых реакторов в замкнутом топливном цикле. Быстрые реакторы приняты в качестве базовых в Стратегии развития атомной энергетики России в первой половине XXI века и в качестве перспективных в международной программе ведущих ядерных стран «Поколение IV» [1]. Идея завода при АЭС с быстрым реактором в настоящее время высказывается достаточно часто [2—4]. При этом предполагается невысокий коэффициент очистки топлива (10^3) с переходом на производство ТВС из регенерированного топлива.

Общеизвестно, что после извлечения из реактора отработавшее ядерное топливо хранится в водных бассейнах выдержки при реакторной установке. Однако при переработке отработавшего топлива быстрых реакторов нерациональны его первоначальное охлаждение, а затем расход дополнительной энергии на переработку, принимая во внимание декларируемую ориентацию на малоотходные, но энергоемкие пирохимические методы. Заманчивым видится использование тепловыделения отработавшей ТВС для регенерации.

Ориентируясь на оксидное уран-плутониевое топливо быстрых реакторов, предлагаем нетрадиционный подход к решению поставленной задачи — переработка отработавших ТВС сразу после извлечения из реактора без охлаждения по «сухой» схеме,

закрывающейся в их растворении и перекристаллизации в ваннах с легкоплавкой солевой композицией за счет собственного тепловыделения. Для физико-химического обоснования такого процесса использованы изученные ранее реакции, протекающие в молибдатных расплавах.

Приведем краткое описание предлагаемого процесса.

Извлеченная из активной зоны реактора отработавшая ТВС помещается в емкость с сухой солевой композицией. Тепловыделение сборки будет способствовать образованию зоны расплава солевой композиции вокруг нее. Над композицией предполагается наличие кислорода воздуха. При этом первоначально протекают процессы окисления компонентов чехла ТВС и оболочек твэлов с образованием оксидов железа, хрома и никеля, которые взаимодействуют с триоксидом молибдена по известным реакциям с образованием соответствующих молибдатов, растворяющихся в избытке расплава [5, 6]:



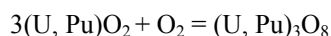
В процессе дальнейшей проработки технологии будет подробно рассчитан тепловой режим системы, обусловленный экзотермическими реакциями окисления, эндотермическими реакциями образования молибдатов и тепловыделением ТВС. В качестве страхового технологического варианта можно ори-

ентироваться на дополнительный нагрев ТВС воздействием электромагнитного поля.

удалении от нее расплав становится более холодным. Возникший температурный градиент способствует переносу образовавшихся молибдатов железа, хрома и никеля от поверхности ТВС через слой расплава в холодную зону и выпадению в виде кристаллов. Этот слой кристаллов молибдатов с плохой теплопроводностью будет способствовать накоплению теплоты и большему разогреву и расплавлению солевой композиции, т.е. расширению зоны расплава, вследствие чего слой кристаллов молибдатов железа, хрома, никеля будет удаляться от ТВС. При этом продолжается подача воздуха для окисления компонентов оболочки и радиационно восстановленных оксидов молибдена.

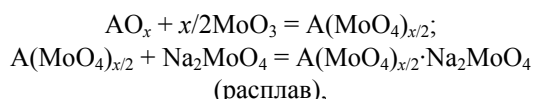
В процессе растворения стальных оболочек наступает разгерметизация твэлов, из расплава выделяются газообразные и летучие продукты деления (иод, тритий, ксенон, криптон). Для улавливания летучих продуктов и аэрозолей применяется традиционная многоступенчатая система газоочистки.

После разгерметизации твэлов таблетки топлива $(U, Pu)O_2$ окисляются до $(U, Pu)_3O_8$ по реакции



и диспергируются.

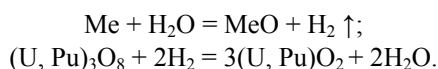
Нелетучие или малолетучие продукты деления (цезий, рубидий, стронций, барий, молибден, цирконий, редкоземельные элементы, технеций, рутений) окисляются, взаимодействуют с расплавом с образованием молибдатов или иных оксидных солей [5—8], которые растворяются и концентрируются в солевом расплаве, дополнительно его разогревая и повышая растворимость:



где A — элемент продуктов деления; x — валентность элемента.

После полного растворения продуктов деления подача кислорода в систему прекращается.

Известно и исследованиями подтверждено, что в солевых расплавах присутствуют следы воды с содержанием от десятых до сотых долей процента. Неокислившиеся фрагменты стали, взаимодействуя с этой водой, выделяют водород, который восстанавливает диспергированное топливо до диоксидов, что подтверждено экспериментально [9]:



Образующиеся диоксиды урана и плутония в расплаве одновременно подвергаются перекристаллизации, преобразуясь в однородные твердые рас-

плава. В этот период наиболее разогретая зона расплава находится в непосредственной близости от ТВС, при

творы диоксидов урана и плутония, дополнительно очищаясь при этом от продуктов деления, захваченных кристаллами в процессе образования. На этой стадии топливо подпитывается необходимым количеством плутония, который в виде диоксида вводится в солевой расплав, после чего формируется однородный твердый раствор диоксидов урана и плутония состава, соответствующего заданному в исходной композиции соотношению урана и плутония, что также подтверждено экспериментально [10].

Подбором температурного режима, содержания компонентов солевой композиции и количества кислорода в атмосфере над композицией можно растворять стальную оболочку с необходимой скоростью, варьировать время перекристаллизации оксидного топлива с очисткой от продуктов деления и при этом исключить проникновение расплава к стенкам охранной емкости. Ограничивающим условием является недопущение остывания расплава с растворенными продуктами деления до затвердевания, так как завершающей операцией является отделение расплава со сконцентрированными продуктами деления от кристаллов диоксидов урана и плутония и промывка свежим расплавом молибдата натрия.

Описанную технологию можно назвать пассивной регенерацией.

Требует дополнительного рассмотрения и изучения операция разделения фазы молибдатов железа, хрома и никеля и фазы кристаллов диоксидов урана и плутония. Предполагается, что диспергированная в расплаве молибдата натрия масса диоксидов урана и плутония может быть отделена от кристаллов молибдатов железа, хрома и никеля, находящихся на периферии зоны расплава, поворотом емкости с расплавом в вертикальное положение и сливом в приемную емкость, но возможность полного отделения при этом топлива от молибдатов компонентов оболочки требует экспериментального подтверждения. Альтернативным традиционным решением будет отмывка топлива от всех примесей, в том числе и от молибдатов компонентов оболочки несколькими порциями расплава молибдата натрия.

Полученные очищенные кристаллы гомогенного твердого раствора $(U, Pu)O_2$ отмываются от остатков молибдата натрия водой, сушатся и используются для изготовления ТВС. Водный раствор молибдата натрия в объеме $\sim 1 \text{ м}^3$ на 1 т топлива является единственным жидким технологическим отходом.

Отделенный расплав с растворенными продуктами деления подвергается фракционированию направленной кристаллизацией. Фракции или утилизируются, или отверждаются. Молибдаты железа, хрома и никеля сплавляют с карбонатом натрия, образовавшийся молибдат натрия используют по-

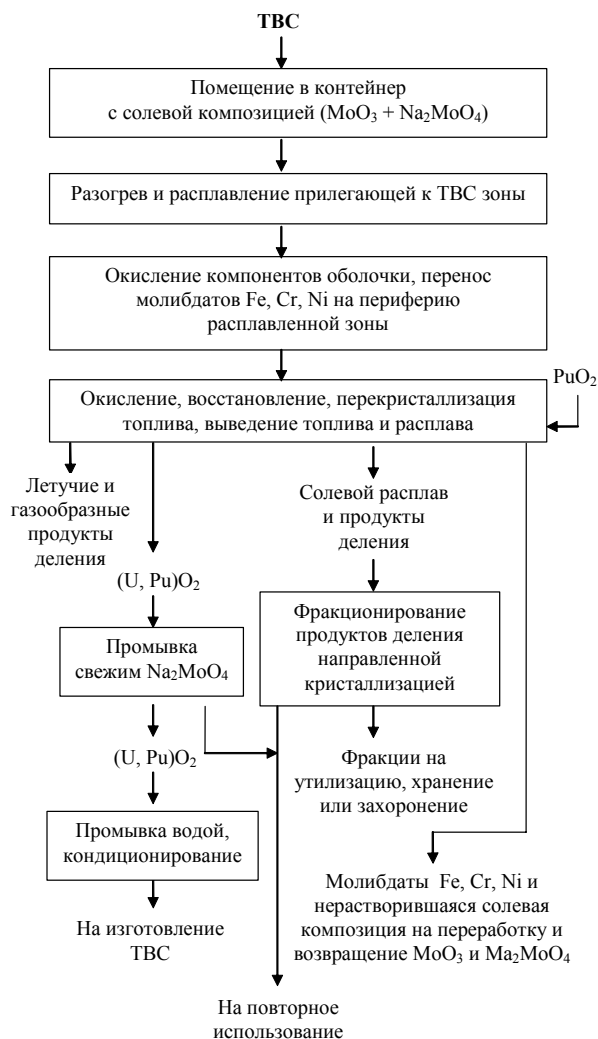


Схема пассивной регенерации отработавших ТВС быстрых реакторов

вторно, оксиды железа, хрома и никеля хранят как твердые отходы.

Аналогичные процессы протекают при обращении с зоной воспроизводства, только в этом случае перекристаллизации подвергается диоксид урана, а наработанный в незначительном количестве плутоний выделяется селективно из расплава.

На рисунке представлена схема описанного процесса.

Таким образом, предложенная нетрадиционная регенерация отработавшего оксидного топлива быстрых реакторов исключает предварительное охлаждение отработавшей ТВС в водном бассейне. Извлеченная из реактора ТВС помещается сразу в солевую композицию, в которой за счет саморазогрева в результате самопроизвольной перекристаллизации ее компоненты будут разделяться на отдельные потоки: очищенное топливо, продукты деления, компоненты стальной оболочки.

К достоинствам процесса, кроме исключения стадии охлаждения в водном бассейне, можно отнести сокращение срока оборота топлива, экономию энергии, малое число операций, компактность оборудования, малые объемы жидких отходов.

Представленный материал далек от завершенности технологических решений, его задача состоит в попытке представить идеальную регенерацию отработавшего топлива быстрых реакторов. Как видно, даже такая кажущаяся идеальной технология включает значительное число сложных операций, требующих серьезных проработок.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кузнецов В.П., Черепнин Ю.С. Инновационные проекты ядерных реакторов. — В сб.: Второй общественный национальный форум-диалог «Атомная энергия, общество, безопасность». Санкт-Петербург, 21—22 апреля 2008 г., с. 44—53.
2. Глазов А.Г., Леонов В.Н., Орлов В.В. Реактор БРЕСТ и пристанционный ядерный топливный цикл. — Атомная энергия, 2007, т. 103, вып. 1, с. 15—21.
3. Петров А.В., Усынин Г.Б., Усынина С.Г. Совместный топливный цикл быстрых реакторов и ВВЭР на основе пиропроцессинга. — Там же, 1998, т. 85, вып. 6, с. 451—457.
4. Калинин В.И., Серов А.В., Шафрова Н.П. Структура замкнутого топливного цикла в новой технологической платформе развития атомной энергетики Российской Федерации в XXI веке. Ядерная и радиационная безопасность России. — Информ. бюл. (ЦНИИатоминформ), 2006, вып. 4(22), с. 83—93.
5. Мохосоев М.В., Алексеев Ф.П., Луцык В.И. Диаграммы состояния молибдатных и вольфраматных систем. Новосибирск: Наука, 1978. 320 с.
6. Устинов О.А., Чеботарев Н.Т., Андрианов М.А. Молибдаты. Синтез, структура и свойства. Обзорная информация, вып. 5(41). М., ВНИИНМ, 1979. 38 с.
7. Устинов О.А. Физико-химическое обоснование регенерации отработавшего оксидного уран-плутониевого топлива перекристаллизацией в молибдатных расплавах. — Атомная энергия, 1997, т. 82, вып. 2, с. 100—104.
8. Ustinov O.A. Reprocessing of mixed U—Pu fuel by recrystallization in molten molybdates. — In: Proc. Intern. Symp. on MOX-Fuel Cycle Technologies for Medium and Long Term Deployment. France, 2000, p. 520—522.
9. Устинов О.А., Суханов Л.П., Якунин С.А. Регенерация оксидного отработавшего ядерного топлива перекристаллизацией в молибдатных расплавах. — Атомная энергия, 2006, т. 101, вып. 4, с. 316—318.
10. Устинов О.А., Андрианов М.А., Чеботарев Н.Т. и др. Получение порошков твердых растворов $\text{UO}_2\text{—PuO}_2$ из молибдатных расплавов. — Радиохимия, 1980, т. 22, вып. 4, с. 597—599.

Поступило в Редакцию 26.03.10

Поправка

В статье Арутюнян Р.В. и др. «Экология и устойчивое развитие региона размещения Нововоронежской АЭС» (т. 109, вып. 2, с. 109—114) допущена опечатка.

Таблицу 2 на с. 113 следует читать так: риску воздействия загрязненного воздуха, в том числе химических канцерогенных веществ в Воронеже подвержены 840,7 тыс. чел., риску проживания в зоне наблюдения Нововоронежской АЭС — 35,6 тыс. чел. Остальное без изменений.