

ра повреждаемости рассматривается относительное время работы в режимах, отличающихся различной концентрацией хлор-иона и кислорода.

Выводы. На основе стохастической фильтрации Калмана разработан алгоритм прогнозирования ресурсных характеристик парогенератора. Например, полученное с помощью этого метода среднее число заглушенных трубок равно 120 ± 15 , при ремонте заглушено 130. Следует отметить, что не все из заглушенных трубок имели сквозные дефекты, часть заглушена по критерию «нехватка металла». Разработанный оптимальный алгоритм позволяет прогнозировать развитие процесса старения при использовании дополнительной информации в виде данных периодического контроля и зафиксированного состояния объекта. Исходя из требований к темпу процесса старения, можно оценить оптимальный период или оптимальный план последующего контроля.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бараненко В.И., Олейник С.Г., Меркушев В.Н. и др. Эксплуатационная надежность элементов конструкции парогенераторов АЭС с ВВЭР. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Обеспечение безопасности АЭС, 2003, вып. 3, с. 85—100.
2. Острейковский В.А., Сальников Н.Л. Вероятностное прогнозирование работоспособности элементов ЯЭУ. М.: Энергоатомиздат, 1990. 416 с.
3. Лихачев Ю.И., Пупко В.Я. Прочность тепловыделяющих элементов ядерных реакторов. М.: Атомиздат, 1975.
4. Егишянц С.А., Гулина О.М., Коновалов Э.Н. Оценка распределения ресурса при суммировании повреждений. — Известия ВУЗов. Ядерная энергетика, 1997, № 1, с. 18—21.
5. Балакришнан А.В. Теория фильтрации Калмана. М.: Мир, 1988. 168 с.

Поступило в Редакцию 24.01.06

УДК 621. 039.59

РЕГЕНЕРАЦИЯ ОКСИДНОГО ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ПЕРЕКРИСТАЛЛИЗАЦИЕЙ В МОЛИБДАТНЫХ РАСПЛАВАХ

Устинов О.А., Суханов Л.П., Якунин С.А. (ВНИИНМ им. А.А. Бочвара)

В замкнутом ядерном топливном цикле предусматривается переработка отработавшего ядерного топлива, базирующаяся на пурекс-процессе. К недостаткам этой технологии следует отнести большие объемы образующихся радиоактивных отходов, использование пожароопасных экстрагентов, радиоллиз водной и органической фаз с выделением взрывоопасных веществ и др. В противоположность пурекс-процессу неводные (пирохимические или пирометаллургические) методы отличаются малыми размерами технологической аппаратуры, малым объемом жидких отходов, образующихся при переработке топлива, радиационной устойчивостью используемых реагентов и, следовательно, коротким временем выдержки топлива перед переработкой.

Во ВНИИНМ им. А.А. Бочвара изучается пирохимический процесс регенерации оксидного отработавшего топлива с использованием молибдатных расплавов [1, 2]. Изучены двойные и тройные диаграммы состояния: оксиды компонентов отработавшего топлива—триоксид молибдена—молибдат натрия [3—5]. Присутствие триоксида молибдена способствует окислению продуктов деления, находящихся в металлическом состоянии, молибдат натрия растворяет полученные оксиды, что подтверждено экспериментально на примере продукта деления ^{106}Ru [6]. Изотермическое сечение тройной диаграммы состояния $\text{UO}_2\text{—MoO}_3\text{—Na}_2\text{MoO}_4$ показано на рис. 1. Проводили рентгенофазовый анализ образцов плавок, полученных нагреванием смесей UO_2 , MoO_3 , Na_2MoO_4 до 1000°C в инертной атмосфере и охлаждением со скоростью 300°C/ч . Смеси готовили в соответствии с составом, указанным в узловых точках диаграммы. Особенностью системы $\text{UO}_2\text{—MoO}_3\text{—Na}_2\text{MoO}_4$ является кристаллизация в одной области диаграммы диоксида урана UO_2 (на рисунке область кристаллизации показана $\circ$), в другой — молибдата урана $\text{U}(\text{MoO}_4)_2$ ($\blacksquare$) и других соединений. Диаграммы с PuO_2 и оксидами продуктов деления имеют аналогичный вид. Упомянутая особенность использована для разработки спо-

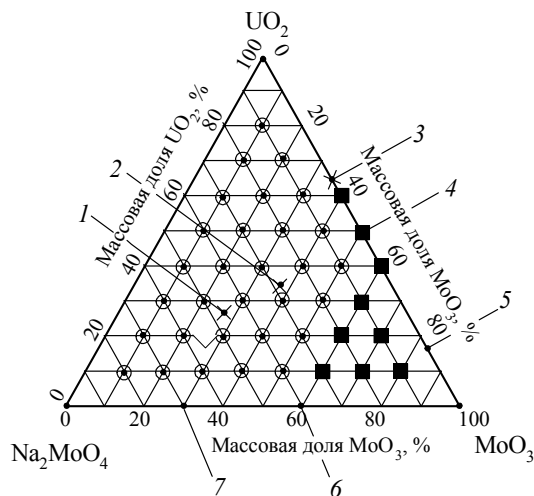
собов регенерации перекристаллизационной очистки диоксидов урана и плутония и молибдата урана в молибдатных расплавах соответствующих составов.

Регенерация оксидного топлива быстрых реакторов. После отделения стальной оболочки таблетки отработавшего оксидного топлива загружаются в расплавленную солевую ванну, содержащую молибдат натрия и триоксид молибдена. Соотношение компонентов варьируется в границах области кристаллизации диоксида урана (плутония) (см. рис. 1). Полученную смесь нагревают до 1000—1200 °С в инертной атмосфере до полного растворения таблеток и медленно охлаждают до 700 °С. Парциальное давление триоксида молибдена над такими смесями невысокое, унос составляет доли процента. Из расплава выпадают кристаллы однородного твердого раствора $(U, Pu)O_2$, состав которого соответствует соотношению урана и плутония в исходной загрузке. Последнее обстоятельство существенно, так как позволяет при приготовлении исходной загрузки корректировать содержание плутония.

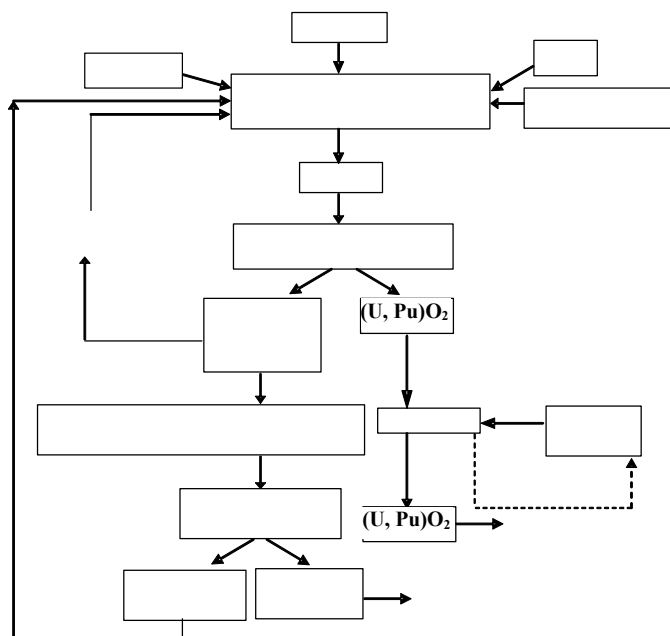
Продукты деления, растворившиеся в молибдатном расплаве, после осаждения $(U, Pu)O_2$ отделяют с расплавом, что обеспечивает очистку от них в 100—1000 раз. Повторные циклы перекристаллизации повышают эффективность очистки. Молибдатный расплав используют многократно (до 10 раз и более, что проверено на имитирующих смесях), после чего направленной кристаллизацией выделяют фракции продуктов деления. Фракции продуктов деления при необходимости используют в народном хозяйстве. Очищенный расплав возвращают в голову процесса. В качестве материала аппаратуры используют никель и сплавы на его основе. Технологическая схема показана на рис. 2.

Регенерация оксидного топлива ВВЭР-1000. Молибдатные расплавы могут быть применены для переработки отработавшего оксидного топлива ВВЭР-1000. Для очистки такого топлива осуществляют перекристаллизацию молибдата урана $U(MoO_4)_2$. Соотношение $UO_2/MoO_3/Na_2MoO_4$ находится в границах области кристаллизации $U(MoO_4)_2$ (см. рис. 1). Плутоний и остальные продукты деления остаются в расплаве.

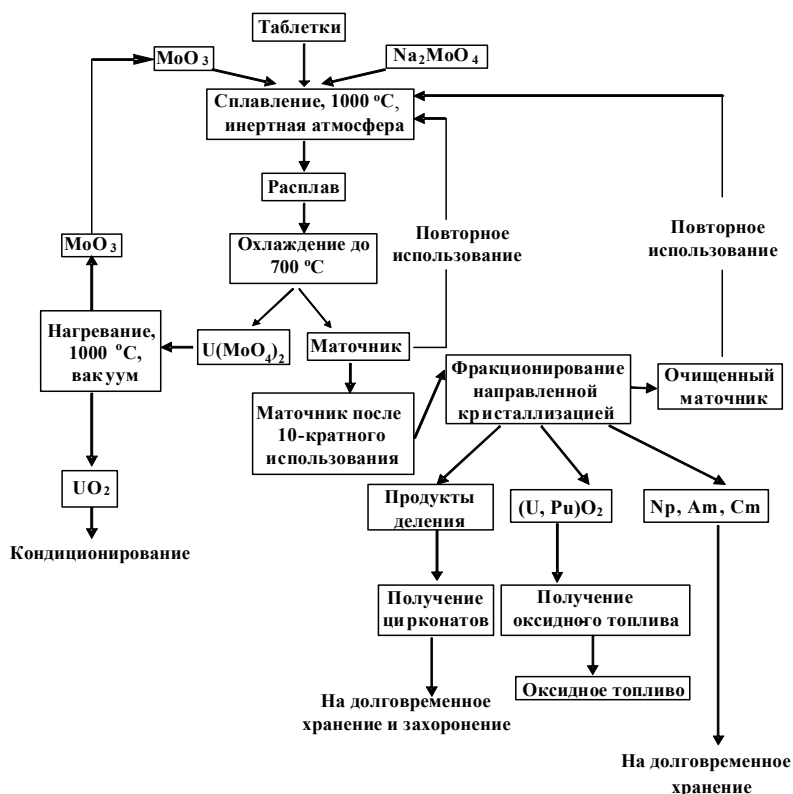
После отделения от конструкционных материалов топливо загружают в кристаллизационную ванну, где оно при 1000 °С и наличии инертной атмосферы растворяется в молибдатном расплаве. Затем расплав охлаждают до выпадения молибдата урана $U(MoO_4)_2$, очищенного от продуктов деления в 100—1000 раз, молибдатный расплав направляют на растворение следующей



Р и с. 1. Диаграмма состояния системы UO_2 — MoO_3 — Na_2MoO_4 : 1 — $Na_4U(MoO_4)_4$; 2 — $Na_2U(MoO_4)_3$; 3 — $UMoO_5$; 4 — $U(MoO_4)_2$; 5 — $UMo_{11}O_{35}$; 6 — $Na_2Mo_4O_{13}$; 7 — $Na_2Mo_2O_7$



Р и с. 2. Схема регенерации отработавшего ядерного топлива быстрых реакторов



Р и с. 3. Схема регенерации отработавшего ядерного топлива ВВЭР-1000

партии топлива. После 10-кратного использования расплав с накопившимися продуктами деления, плутонием и остатками урана подвергают фракционированию направленной кристаллизацией. Фракцию урана и плутония направляют на изготовление топлива быстрых реакторов. Фракции продуктов деления при необходимости используют в народном хозяйстве. Очищенный молибдатный расплав возвращают в технологический процесс.

Кристаллы $U(MoO_4)_2$ промывают свежим расплавом Na_2MoO_4 , затем нагревают при разрежении до полного разложения, отгоняемый при этом триоксид молибдена конденсируется и направляется на повторное использование. Диоксид урана кондиционируют и направляют на изготовление таблеток топлива или хранение. Схема процесса представлена на рис. 3.

Таким образом, молибдатные расплавы могут быть использованы для регенерации отработавшего оксидного топлива как быстрых, так и тепловых реакторов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. 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.
2. Ustinov O.A. Reprocessing of mixed U—Pu fuel by recrystallization in molten molybdates. — In: Proc. on Intern. Symp. on MOX-Fuel Cycle Technologies for Medium and Long-Term Deployment. France, OECD NEA, 2000, p. 520—522.
3. Мохосоев М.В., Алексеев Ф.П., Луцык В.И. Диаграммы состояния молибдатных и вольфраматных систем. М.: Наука, 1978. 319 с.
4. Устинов О.А., Чеботарев Н.Т., Андрианов М.А. Молибдаты. Синтез, структура и свойства. Обз. инф. М., ВНИИНМ, 1979. 38 с.
5. Мохосоев М.В., Базарова Ж.Г. Сложные оксиды молибдена и вольфрама с элементами групп I—VI. М.: Наука, 1990. 255 с.
6. Тульский Г.В., Устинов О.А. Поведение микропримесей рутения, церия и цезия в процессе кристаллизации двуокиси урана из расплава UO_2 — MoO_3 — Na_2MoO_4 . — Радиохимия, 1977, т. 19, № 3, с. 308—313.

Поступило в Редакцию 30.03.06