

16. Колесов В.Ф., Завьялов Н.В., Иванин И.А. и др. Экспериментальное исследование моделей каскадного blankets электроядерного устройства. — Атомная энергия, 2002, т. 92, вып. 1, с. 42—50.
17. Колесов В.Ф., Хоружий В.Х. Нейтронные характеристики моделей каскадного двухсекционного blankets. — Там же, 2000, т. 88, вып. 5, с. 330—337.
18. Кочубей Ю.К., Житник А.К., Артемьева Е.В. и др. Программа С-95. Моделирование совместно-го переноса нейтронов и γ -квантов методом Монте-Карло. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Математическое моделирование физических процессов, 2000, вып. 2, с. 49—52.
19. Кувшинов М.И., Воронцов С.В., Горелов В.П. и др. Тестовые критические эксперименты на установке ФКБН-2М. — Там же, Сер. Физика ядерных реакторов, 2000, вып. 2—3, с. 142—149.
20. Дюррани С., Балл Р. Твердотельные ядерные детекторы: Пер. с англ. М.: Энергоатомиздат, 1990. 264 с.
21. Севастьянов В.Д., Кошелев А.С., Маслов Г.Н. и др. Стандартное поле нейтронов в центре активной зоны БИР-2. — Атомная энергия, 1994, т. 76, вып. 1, с. 55—61.

Поступила в Редакцию 2.09.03

УДК 621.039.516.4

АНАЛИЗ ВОЗМОЖНОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ТОПЛИВА НА ОСНОВЕ РЕГЕНЕРАТА УРАНА В ВВЭР

*Проселков В.Н., Алешин С.С., Попов С.Г., Сидоренко В.Д.,
Славягин П.Д., Татауров А.Л. (РНЦ «Курчатовский ин-т»),
Милованов О.В., Михеев Е.Н. (ФГУП ВНИИНМ им. А.А. Бочвара),
Ананьев Ю.А. (ФГУП ОКБ «Гидропресс»), Пыткин Ю.Н. (Кольская АЭС),
Пименов Ю.В. (ОАО «Твэл»)*

Длительная эксплуатация и развитие энергетических реакторов предполагают замыкание топливного цикла: возврат плутония и регенерата урана. Возврат в топливный цикл АЭС урана из отработавших ТВС изучали давно. Такой процесс в той или иной мере уже реализуется во многих странах. Сегодня можно говорить о его частичном решении в нашей стране — с начала 80-х годов в РБМК-1000 совместно с топливом из обогащенного ^{235}U природного урана загружаются ТВС, изготовленные из регенерированного топлива. Его особенностью является наличие помимо традиционных ^{235}U и ^{238}U ^{236}U и ^{232}U . Первый изотоп привносит в топливо незначительное дополнительное поглощение нейтронов, второй в процессе радиоактивного распада образует ^{208}Tl , испускающий высокоэнергетическое γ -излучение.

В настоящее время поставлена задача показать принципиальную возможность вовлечения регенерата урана в топливный цикл ВВЭР-440, -1000 и отработать технологию изготовления топливных таблеток обогащением 4% для этих реакторов. К текущему моменту разработаны требования к начальному изотопному составу опытных партий топливных таблеток обогащением 4%, рассчитан коэффициент компенсации, разработаны требования к контролю изотопного состава, определена технология изготовления топливных таблеток из регенерированного топлива.

Изготовление топлива для ВВЭР из регенерированного урана. Опытная партия топлива для ВВЭР-440, -1000 производится по следующей схеме:

изготавливается плав уранил-нитрата с содержанием ^{235}U 2,4—2,5% путем смешивания регенерированного урана из отработавших ТВС ВВЭР-440 (содержание ^{235}U 0,8—1,2%) и среднеобогащенного (содержание ^{235}U 14—17%) регенерированного урана;

затем по гидролизно-экстракционной схеме изготавливается исходный порошок диоксида урана эффективным обогащением 4% по ^{235}U из плава уранил-нитрата (содержание ^{235}U 2,4—2,5%) и регенерированной U_3O_8 (содержание ^{235}U 14—17%). При этом фактическое обогащение этого порошка 4,139% при содержании ^{236}U 0,463%, т.е. с учетом коэффициента компенсации 0,3. Гидролизно-экстракционная схема (АДУ-процесс) изготовления этого порошка включает следующие основные технологические операции: растворение отдельно в азотной кислоте плава уранил-нитрата и регенерированной U_3O_8 , контроль содержания ^{235}U в растворах, смешивание этих двух растворов в соотношении, обеспечивающем получение раствора с фактическим содержанием ^{235}U 4,139%, экстракция и реэкстракция полученного раствора для очистки от примесей, обработка водным раствором аммиака для осаждения полиураната аммония, фильтрация осадка, сушка и прокаливание, восстановление U_3O_8 в водороде, контроль на соответствие следующим нормативным показателям: массовая доля смеси изотопов урана, условная массовая доля изотопов ^{235}U , ^{236}U , ^{234}U и ^{232}U , кислородный коэффициент (О/У), полная удельная поверхность, массовая доля влаги, суммарный борный эквивалент.

Полученный порошок регенерированного диоксида урана соответствовал нормативным требованиям и был использован для изготовления топливных таблеток. Таблетки опытной партии топлива из регенерированного урана изготавливали по штатной технологии: уплотнение исходного порошка диоксида урана, смешивание уплотненного порошка со связкой в смесителе-грануляторе, просев полученного гранулята через вибросито, холодное прессование, сушка прессованных таблеток в низкотемпературной печи в среде азота, высокотемпературное спекание таблеток в печи в среде водорода, шлифование таблеток на бесцентровом станке с охлаждающей жидкостью, предварительная сушка прессованных таблеток на воздухе в виброконвейере и заключительная сушка в низкотемпературной печи в среде азота, контроль качества опытной партии таблеток*.

Изготовленные таблетки опытной партии таблеток из регенерированного урана по результатам контроля качества полностью удовлетворяли требованиям нормативно-технической документации. Результат контроля качества таблеток таков:

Массовая доля изотопов урана, % . . .	$\geq 87,9$
Расчетная массовая доля, % к урану:	
^{235}U . . .	$4 \pm 0,05$
^{236}U . . .	0,3—1
^{232}U . . .	$< 1,7 \cdot 10^{-7}$
Pu . . .	Не нормируется
Плотность, г/см ³ . . .	10,41—10,69
Масса столба таблеток длиной 1000 мм, г . . .	444,2—449,1
Доспекаемость ($\Delta d/d$), % . . .	0,1—0,3
Объемная доля открытых пор, % . . .	< 1
Средний условный размер зерна, мкм . . .	10,2—12,8
Суммарный борный эквивалент, % . . .	$< 0,0018$

*Решетников Ф.Г., Бибилашвили Ю.К., Головин И.С. и др. Разработка, производство и эксплуатация тепловыделяющих элементов энергетических реакторов. Кн. 1. М.: Энергоатомиздат, 1995.

Исследования показали, что радиационно-гигиенические условия при выпуске опытных партий таблеток из регенерированного топлива не отличаются от таковых при производстве таблеток по штатной технологии, за исключением мест размещения сырья и готовой продукции в лодочках и контейнерах.

Кроме того, следует отметить, что изготовление топлива из регенерированного урана возможно по другой технологической схеме, включающей следующие технологические операции: растворение регенерированной U_3O_8 , переработка в гексафторид урана, обогащение до требуемого значения по ^{235}U , изготовление порошка диоксида урана по газопламенной технологии из гексафторида урана, изготовление из порошка диоксида урана топливных таблеток по штатной технологии.

Нейтронно-физические характеристики топлива из регенерированного урана. В регенерированном топливе в отличие от штатного, которое содержит природные изотопы, присутствуют ^{236}U и ^{232}U . Влияние ^{232}U на нейтронно-физические характеристики пренебрежимо мало ввиду низкого содержания в регенерированном топливе. Этот изотоп оказывает существенное воздействие на радиационные характеристики. Влияние ^{236}U сказывается в дополнительном поглощении нейтронов, ухудшении нейтронно-физических характеристик топлива (сокращение длительности топливного цикла). Для сохранения нейтронно-физических характеристик необходимо компенсировать влияние ^{236}U путем повышения исходной концентрации ^{235}U .

Под коэффициентом компенсации понимается равенство

$$K_{236} = \frac{C_{235U}^{p.t} - C_{235U}^{шт.т}}{C_{236U}^{p.t}},$$

где $C_{236U}^{p.t}$, ^{235}U — концентрация ^{236}U , ^{235}U в регенерированном топливе; $C_{235U}^{шт.т}$ — концентрация ^{235}U в штатном топливе.

Коэффициент компенсации определяется из требования сохранения длительности интервала работы между перегрузками при замене штатного топлива на регенерированное. Для расчета коэффициента компенсации ^{236}U проведена серия нейтронно-физических расчетов выгорания топлива с фиксированной исходной концентрацией ^{236}U и различной исходной концентрацией ^{235}U . Результаты расчетов позволили определить такую исходную концентрацию ^{235}U в топливе, при которой средний по кампании коэффициент размножения такой же, как и для штатного топлива. В расчетах учитывали реальную работу ВВЭР. Коэффициент компенсации ^{236}U для регенерированного топлива ВВЭР-440 исходным обогащением 2,4 и 3,6% был рассчитан для диапазона изменения концентрации ^{236}U 0,3—1,5%. Аналогичные расчеты выполнены для топлива исходным обогащением 4,4%, предназначенного для ВВЭР-1000. Анализ полученных результатов расчетов приводит к выводу, что для опытной партии регенерированного топлива ВВЭР-440, -1000 можно рекомендовать коэффициент компенсации ^{236}U , равный $0,3 \pm 0,05$. Реально это означает, что на каждый 1 кг ^{236}U содержание ^{235}U необходимо увеличить на 300 ± 50 г по сравнению с его концентрацией в штатном топливе того же обогащения.

Увеличение обогащения ^{235}U может вызвать в случае возможных различий в обогащении урана в соседних топливных таблетках нежелательные градиенты энерговыделения по высоте твэлов. Это обуславливает необходимость регулярного контроля нуклидного состава каждой партии свежего ядерного топлива (табл. 1).

Т а б л и ц а 1. Предварительные технические требования к регулярному контролю нуклидного состава партий свежего ядерного топлива ВВЭР

Изотоп	Массовая доля, %	Абсолютная погрешность измерения*, %	Число измерений
^{238}U	95,5—96,3	0,11	3
^{236}U	0,5—0,7	0,04	2
^{235}U	2,4—4,6	0,02	2
^{234}U	0,02—0,05	0,004	1

*При доверительной вероятности 0,95.

Нейтронно-физические характеристики активной зоны реакторов ВВЭР-440. Расчет нейтронно-физических характеристик 21-й топливной загрузки первого энергоблока Кольской АЭС с шестью ТВС обогащением 2,4% по ^{235}U , изготовленных из регенерата урана, показал, что коэффициент неравномерности энерговыделения ТВС $K_q = 1,28 < K_q^{\text{доп}} = 1,35$, коэффициент неравномерности энерговыделения твэлов $K_r = 1,45 < K_r^{\text{доп}} = 1,48$, максимальная линейная мощность $Q_l = 314 < Q_l^{\text{доп}} = 325$ Вт/см. В начале кампании при всех извлеченных органах регулирования СУЗ, критической концентрации борной кислоты и температуре теплоносителя на входе в реактор 260 °С коэффициент реактивности по температуре теплоносителя $d\rho/dT_{\text{H}_2\text{O}} = -3 \cdot 10^{-5}$ 1/°С (<0), коэффициент реактивности по плотности теплоносителя $d\rho/dG = 4,71 \cdot 10^{-5}$ г/см³ (>0), эффективность аварийной защиты с учетом возможного заклинивания одного наиболее эффективного органа регулирования СУЗ $\Delta\rho = 7,3\% > \Delta\rho^{\text{доп}} = 6,3\%$, подкритичность реактора в холодном состоянии при всех извлеченных органах регулирования СУЗ и стояночной концентрации борной кислоты 12 г/кг $|\Delta\rho| = 6,1\% > |\Delta\rho^{\text{доп}}| = 2\%$.

На основании анализа результатов нейтронно-физических расчетов сделан вывод, что 21-я загрузка первого энергоблока Кольской АЭС с первой опытной партией из шести ТВС обогащением 2,4% по ^{235}U , изготовленных из регенерата урана, удовлетворяет проектным требованиям.

В РНЦ «Курчатовский институт» разработан проект внедрения модернизированного топливного цикла для второго энергоблока Кольской АЭС с подпиткой ТВС 3,82%. В рамках этого проекта при формировании первой переходной загрузки (25-й) в состав подпитки включена опытная партия из 12 профилированных ТВС эквивалентным обогащением 3,82% по ^{235}U с твэлами из регенерата урана. Профилирование ТВС — 24 штатных твэла обогащением 3,6% (периферийный ряд), 18 штатных твэлов обогащением 3,3% (угловые твэлы) и 84 твэла с топливом на основе регенерированного урана эквивалентным обогащением 4%. Изотопный состав регенерированного топлива с учетом компенсации ^{236}U (коэффициент компенсации равен 0,3) следующий, % по массе: ^{234}U 0,043, ^{235}U 4,139, ^{236}U 0,463, ^{238}U

95,355. Расчетная максимальная глубина выгорания при выгрузке составляет 41,2 МВт·сут/кг. На основании анализа результатов расчета основных нейтронно-физических характеристик загрузок с опытной партией ТВС с регенерированным топливом и загрузок со штатным топливом можно сделать вывод об их идентичности и возможности опытной эксплуатации ТВС на регенерированном топливе в ВВЭР-440.

ВВЭР-1000. В 15-ю топливную загрузку второго блока Калининской АЭС загружено 12 ТВС с регенерированным ураном обогащением по ^{235}U , эквивалентным 4%. Расчет размножающих свойств ТВС с штатным топливом (обогащением 4% по ^{235}U) и ТВС с топливом на основе регенерированного урана (обогащением 4,139, что соответствует обогащению 4% по ^{235}U для штатного топлива при коэффициенте компенсации 0,3) показал, что они близки. Результаты нейтронно-физических расчетов свидетельствуют, что основные нейтронно-физические характеристики 15-й топливной загрузки удовлетворяют ограничениям, принятым в проекте ВВЭР-1000 (В-320).

Опыт эксплуатации. В нашей стране регенерат урана успешно используется в топливе РБМК. Опыта эксплуатации в ВВЭР-440 пока мало, в ВВЭР-1000 такое топливо пока не использовалось. Для проверки возможности использования нового топлива были изготовлены для опытной эксплуатации шесть ТВС. Топливо имело следующий состав, %: ^{235}U 2,4%, ^{236}U 0,45%. Компенсация ^{236}U не проводилась. ТВС с регенератом урана были установлены в реакторе первого энергоблока Кольской АЭС в 21-ю топливную загрузку.

ТВС с регенератом урана и свежим штатным топливом обогащением 2,4% были установлены в симметричные (30 град. симметрии) ячейки. Анализ результатов опытной эксплуатации показал, что нейтронно-физические и теплофизические свойства использованных на Кольской АЭС ТВС из регенерата урана совпадают с таковыми для ТВС из штатного урана. Так, отклонение в коэффициенте неравномерности энерговыделения в ТВС из регенерата урана отличается от обычных штатных симметричных им ТВС не более чем на 0,04. Разброс в показаниях термопар для ТВС с регенератом составляет 2% и совпадает с этой характеристикой для штатных ТВС. Высотное распределение энерговыделения в ТВС из регенерата урана имеет тот же характер, что и в штатных ТВС. В процессе опытной эксплуатации шести ТВС из регенерата урана в течение 21-й, 22-й и 23-й кампаний на первом блоке Кольской АЭС в них было достигнуто выгорание 19,81 МВт·сут/кг. В ходе 21-й и 22-й кампаний выполнялся штатный контроль активности теплоносителя. Превышение допустимого уровня не зафиксировано. Контроль герметичности оболочек во время перегрузок топлива также не выявил каких-либо отклонений от нормы. Заключительный вывод: ТВС, содержащие регенерат урана с концентрацией ^{236}U 0,5%, по своим физическим свойствам идентичны штатным ТВС.

Радиационная безопасность. В результате ядерных превращений при облучении в реакторе изотопный состав урана в выгружаемом топливе качественно отличается от исходного: в нем присутствуют ^{232}U ($T_{1/2} = 72$ года) и ^{236}U ($T_{1/2} = 3,4 \cdot 10^6$ лет), которых нет в первичном топливе, изготовленном из природного сырья. ^{232}U в значительной степени определяет радиационную обстановку на всех этапах топливного цикла. В процессе его радиоактивного распада образуется ^{208}Tl , испускающий

высокоэнергетическое γ -излучение. Концентрация ^{232}U в регенерированном уране зависит от многих факторов, главным из которых является время хранения отработавших ТВС до переработки. Для оценки радиационных характеристик был рассчитан изотопный состав регенерированного урана. В табл. 2 приведен расчетный изотопный состав регенерированного урана для топлива ВВЭР-440, -1000 (обогащение 4%, коэффициент компенсации 0,3). Данные представлены для двух вариантов хранения: 3 года (вариант А) и 7 лет (вариант Б).

Таблица 2. Изотопный состав топлива из регенерата урана эффективным обогащением 4% по ^{235}U с коэффициентом компенсации ^{236}U 0,3

Изотоп	Концентрация, % по массе	
	Вариант А	Вариант Б
^{232}U	$1,38 \cdot 10^{-7}$	$1,68 \cdot 10^{-7}$
^{234}U	0,043	0,043
^{235}U	4,139	4,139
^{236}U	0,463	0,463
^{238}U	95,355	95,355

Из табл. 2 следует, что максимальная расчетная концентрация ^{232}U в уране для опытной партии топлива составляет примерно $1,7 \cdot 10^{-7}\%$ по массе. Однако в регенерированном уране она зависит от многих факторов, которые не могут в настоящее время с достаточной точностью быть учтены в расчетах. Поэтому для оценки радиационных характеристик и факторов дозовой реализации при изготовлении топлива рекомендуется $2 \cdot 10^{-7}\%$ по массе.

Была проведена расчетная оценка накопления продуктов деления в топливе и под оболочкой герметичных твэлов, выхода продуктов деления и радиационной обстановки на АЭС с ВВЭР-440, -1000 при разгерметизации штатных твэлов и твэлов с регенерированным ураном. Механизмы выхода продуктов деления из диоксида урана для обычных условий облучения в ВВЭР не зависят от изотопного состава урана. Поэтому при одинаковой скорости образования продуктов деления в топливе следует ожидать и одинаковую скорость их выхода для топлива как из природного, так и регенерированного диоксида урана.

Анализ накопления продуктов деления в топливе и под оболочкой герметичных твэлов ВВЭР-440, -1000 показывает, что результаты расчетов для штатного топлива не отличаются от расчетных данных для регенерированного топлива. Это означает, что радиационные последствия проектных и запроектных аварий при переходе с штатного топлива на регенерированное не возрастают.

Расчет предельной активности основных дозообразующих радиационно опасных продуктов деления в теплоносителе работающих ВВЭР-440 (проект В-213) и -1000 (проект В-320) был проведен для условий наличия в активной зоне 0,2% твэлов с дефектами типа «газовая неплотность» и 0,02% твэлов с прямым контактом топлива с теплоносителем. Для ВВЭР-440 расчет выполнен для средненапряженных твэлов мощностью 28 кВт, обогащением топлива 3,82%, средним выгоранием 30 МВт-сут/кг. Для ВВЭР-1000 аналогичные расчеты сделаны для суперпозиции двух групп твэлов по мощности: группы средненапряженных твэлов мощностью

53,7 кВт и группы максимально напряженных твэлов средней мощностью 75,4 кВт. Обогащение топлива 4,4%, среднее выгорание 30 МВт-сут/кг. Анализ показывает, что результаты расчетов для штатного топлива почти не отличаются от расчетных данных для регенерированного как для ВВЭР-440, так и ВВЭР-1000. Это означает, что радиационное воздействие АЭС на население и окружающую среду при переходе на топливо из регенерата урана не меняется.

Сопоставление расчетных данных и данных допустимой суммарной активности изотопов иода и допустимой активности ^{131}I в теплоносителе работающего ВВЭР-440, -1000 показывает, что при использовании регенерата урана указанные пределы не нарушаются.

Заключение. Анализ показывает, что основные нейтронно-физические характеристики удовлетворяют ограничениям, принятым в проектах ВВЭР-440 (проект В-230) и ВВЭР-1000 (проект В-320), радиационное воздействие на население и окружающую среду при переходе на топливо из регенерата урана такое же, как и при использовании штатного оксидного топлива, радиационные последствия в проектных и запроектных авариях при переходе с штатного топлива на топливо из регенерата урана не возрастают.

Поступила в Редакцию 10.07.03

УДК 621.039.526

ТЕРМОХИМИЧЕСКАЯ СТАБИЛЬНОСТЬ, РАДИАЦИОННЫЕ ИСПЫТАНИЯ, ИЗГОТОВЛЕНИЕ И РЕГЕНЕРАЦИЯ МОНОНИТРИДНОГО ТОПЛИВА

*Рогозкин Б.Д., Степеннова Н.М. (ФГУП ВНИИНМ им. А.А. Бочвара),
Бергман Г.А. (ИТЭС ОИВТ РАН), Прошкин А.А. (ИЯР РНЦ «Курчатовский ин-т»)*

Термодинамические свойства мононитридов урана, плутония и продуктов деления являются важными характеристиками, определяющими термохимическую стабильность и изменение фазового состава мононитридного топлива в процессе облучения при разной температуре. Термохимическая стабильность мононитридного топлива влияет на выбор температурного режима его эксплуатации в быстрых реакторах, методов изготовления и регенерации. Вместе с тем только радиационные испытания твэлов с таким топливом позволяют объективно оценить совокупность всех свойств, выбрать конструкцию твэла и наиболее благоприятные условия его эксплуатации в промышленном реакторе. Отсюда важно обобщить результаты радиационных испытаний твэлов разной конструкции, исследований по изготовлению топлива из оксидов и сплавов урана с плутонием, а также регенерации отработавшего топлива посредством гидрометаллургического и пироэлектрохимического процессов.

Термохимическая стабильность. Под термохимической стабильностью понимают устойчивость химического соединения без заметной диссоциации при разной температуре и равновесном давлении паров соединения и элементов, входящих в его состав. Термохимическая стабильность определяется энергией Гиббса образования нитридов урана, плутония и продуктов деления. Из анализа табл. 1 следует,