

Таким образом, исследованиями выявлено, что в твэле 6 объем увеличился в результате набухания твердой фазы. Газообразные продукты деления почти не образовали пор и находились в матрице урансодержащего соединения в атомарном виде. Взаимодействие компонентов топлива почти не вносило вклад в изменение его объема.

Заключение. Результаты исследований монолитных твэлов с топливной композицией $U(Al, Si)_3$ —силумин показали, что набухание топливного сердечника и другие ресурсные характеристики твэлов определяются условиями реакторных испытаний. Испытания при плотности теплового потока $6,1 \text{ МВт/м}^2$ являются допустимыми для сохранения работоспособного состояния композиции до выгорания 57%. В этом случае температура топлива не превышает 550°C , объем увеличивается за счет твердого набухания и составляет 21%. Вклад взаимодействия компонентов топлива в изменение объема незначительный, и его следует учитывать только при полном взаимодействии матрицы с топливными частицами.

При плотности теплового потока $7,3 \text{ МВт/м}^2$ и достигнутом выгорании 63,4% в сердечнике произошли выход газообразных продуктов деления из матрицы топлива в поры, значительное набухание $>70\%$ и потеря работоспособности композиции. Причиной существенного набуха-

ния композиции оказалось увеличение температуры в сердечнике выше допустимой 550°C из-за интенсивного взаимодействия его компонентов и значительного снижения теплопроводности.

Для уточнения предельных параметров безопасной эксплуатации твэлов с композицией $U(Al, Si)_3$ —силумин и повышения пределов их работоспособности, прежде всего снижения рабочей температуры сердечника, необходимы дополнительные исследования, технологические и конструктивные доработки.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гильмутдинов И.Ф., Шишин В.Ю., Старков В.А. и др. Исследование опытных дисперсионных твэлов с матрицей на основе алюминия для высокотемпературных исследовательских реакторов. — Атомная энергия, 2015, т. 118, вып. 2, с. 80—84.
2. Гильмутдинов И.Ф., Шишин В.Ю., Крюков Ф.Н. и др. Набухание дисперсионной топливной композиции диоксид урана—силумин в опытных твэлах реактора СМ. — Там же, 2018, т. 124, вып. 1, с. 23—29.
3. Клинов А.В., Калинин Н.К., Пименов В.В. и др. Испытания экспериментальных ТВС с малым вредным поглощением нейтронов в реакторе СМ. — Изв. вузов. Ядерная энергетика, 2013, № 2, с. 114—122.
4. Грачев В.Д. Некоторые вопросы математической реализации метода конечных элементов в задачах реакторной теплофизики: Препринт НИИАР-6 (652). М., ЦНИИатоминформ, 1985.

Поступила в Редакцию 26.10.21

УДК 621.039.542.44

ОЦЕНКИ ЭФФЕКТИВНОСТИ ТРАНСМУТАЦИИ В ЖИДКОСОЛЕВОМ РЕАКТОРЕ-СЖИГАТЕЛЕ

Белогов М.Н., Модестов Д.Г., Симоненко В.А., Хмельницкий Д.В.

(ФГУП «РФЯЦ — ВНИИТФ им. академ. Е.А. Забабахина», г. Снежинск, Челябинская обл.)

e-mail: m.n.belonogov@vniitf.ru

Для снижения объема радиоактивных отходов, направляемых на захоронение, предлагается извлечение при переработке отработавшего ядерного топлива нептуния, америция и кюрия с их последующей трансмутацией в специализированном жидкосолевом реакторе-сжигателе (ЖСР-С) [1, 2]. Как и в работе [2], для указанных элементов будем использовать обозначение MA_{OAT} . Исходя из назначения специализированного реактора, основное требование, предъявляемое к нему, — обеспечить необходимую

скорость трансмутации при минимальном потреблении урана и плутония как основных компонентов топлива энергетических реакторов и минимальной наработке других радиоактивных отходов, кроме продуктов деления.

Трансмутация MA_{OAT} в реакторе — перевод Np , Am , Cm и образующихся из них под действием нейтронов и радиоактивного распада других актиноидов в продукты деления. Основным каналом трансмутации MA_{OAT} в ЖСР-С (до 70%) является их перевод в ^{238}Pu и его последу-

ющее деление. Накопление в составе плутония высокоактивного ^{238}Pu в большом количестве (до 20—40%) будет представлять собой технологическую проблему, чтобы использовать такой плутоний в твердотопливных энергетических реакторах.

В общем случае для обеспечения критичности реактора в зависимости от вариантов топливных загрузок трансмутация $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ в ЖСР-С может сопровождаться как потреблением энергетического плутония, так и отгрузкой избыточного, который следует рассматривать как радиоактивные отходы. Для количественной оценки трансмутации в ЖСР целесообразно ввести показатель эффективности, характеризующий баланс между сжиганием $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$, потреблением энергетического плутония и наработкой радиоактивных отходов, кроме продуктов деления.

Расчетные исследования основных закономерностей трансмутации $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ на примере модельной системы в виде бесконечной среды показали возможность реализации при определенной концентрации актиноидов в топливной соли оптимального режима трансмутации [2]. В этом случае эффективность трансмутации максимальна — топливо подпитки содержит только Np , Am , Cm , не потребляется плутоний, при переработке извлекаются только продукты деления. При концентрации актиноидов ниже оптимальной для поддержания критического состояния необходимо в топливную соль наряду с $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ добавлять плутоний для улучшения ее делящихся свойств. При концентрации выше оптимальной следует периодически извлекать из топливной соли часть плутония.

При переходе к системам конечных размеров вследствие утечки нейтронов оптимальная концентрация возрастает, причем тем больше, чем меньше размеры активной зоны. При этом в силу ограниченной растворимости фторидов актиноидов в расплавах солей оптимальный режим трансмутации $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ может быть реализован только при большом объеме активной зоны или может оказаться недостижимым. В последнем случае для улучшения размножающих свойств необходимо в топливной соли увеличить содержание плутония по отношению к $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$, в том числе и в топливе подпитки, что приведет к уменьшению эффективности трансмутации.

Целью настоящей работы является анализ эффективности трансмутации $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ в ЖСР-С в зависимости от объема активной зоны и свойств несущей соли.

Эффективность трансмутации $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ в ЖСР-С на произвольный момент времени определим следующим образом:

$$K_{\text{МА}} = \frac{M_{\text{МА}}(3) - M_{\text{А}}(в)}{M_{\text{А}}(3)}, \quad (1)$$

где $M_{\text{А}}(3)$ — масса загруженных в реактор всех актиноидов, включая $M_{\text{МА}}(3)$ — массу загруженных $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$; $M_{\text{А}}(в)$ — масса извлеченных из топливной соли актиноидов, не возвращаемых впоследствии в топливный контур реактора, включая потери при переработке и фабрикации. Числитель в выражении (1) представляет собой убыль актиноидов, не пригодных в настоящее время к использованию в твердотопливных энергетических реакторах. Отметим, что традиционно рассматривается трансмутация $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ в разрабатываемых быстрых реакторах [3]. Это требует создания технологий фабрикации высокоактивного топлива в промышленных масштабах. При этом для корректного сравнительного анализа предлагаемых вариантов трансмутации $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ целесообразна разработка единого методологического подхода, аналогичного представленному в настоящей работе.

В отсутствие выгрузки актиноидов показатель $K_{\text{МА}}$ определяет долю $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ общего количества загруженных актиноидов, содержащих в том числе плутоний. При реализации оптимального режима трансмутации и работе реактора в этом режиме длительное время эффективность трансмутации $K_{\text{МА}}(t \rightarrow \infty)$ асимптотически стремится к единице.

Для сравнительного анализа эффективности трансмутации $\text{MA}_{\text{ОЯТ}}$ в ЖСР-С выполнялись расчеты нейтронно-физических характеристик и нуклидной кинетики с использованием программного комплекса ПРИЗМА-РИСК и нейтронных констант ENDF/B VII [4, 5]. Рассматривалась система в виде цилиндра из топливной соли диаметром, равным высоте. Стенки цилиндрического сосуда выполнены из сплава ХН80МТЮ толщиной 5,5 см [1, 6]. Средняя удельная тепловая мощность q принята равной 100 кВт/л [2]. Варьировался объем активной зоны — от возможного объема исследователь-

ского (экспериментального) жидкосолевого реактора 1 м³ до 30 м³ — объема активной зоны реактора MOSART [6].

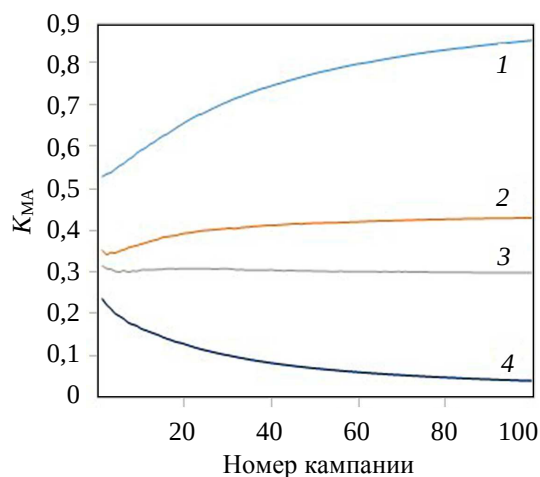
В настоящее время в качестве несущей соли для топливной композиции ЖСП-С рассматриваются расплавы LiF—NaF—KF молярного состава, %: 46,5LiF—11,5NaF—42KF и LiF—BeF₂ молярного состава, %: 73LiF—27BeF₂ с растворимостью фторидов актиноидов ~25 мол. доля, % [7] и ~3 мол. доля, % [1] при 650 °С соответственно.

Концентрация фторидов актиноидов в топливной соли для заданного объема активной зоны выбиралась с учетом их предельной растворимости из условия обеспечения максимальной асимптотической эффективности трансмутации МА_{ОЯТ}. При этом исключались варианты с извлечением из реактора при эксплуатации актиноидов, которые представляют высокоактивные отходы ($M_A(v) = 0$).

При заданной концентрации актиноидов критичность реактора на старте обеспечивалась выбором соотношения плутония и МА_{ОЯТ}. Изотопный состав плутония и нуклидный МА_{ОЯТ} рассчитывались путем моделирования состава ядерного топлива ВВЭР-1000 выгоранием 50 ГВт·сут/т и выдержкой 9 лет. Полученный таким образом состав согласуется с экспериментальными данными [8].

При моделировании переработки из топливной композиции удалялись продукты деления и добавлялось эквивалентное количество топлива подпитки, состоящее из МА_{ОЯТ}. Длительность переработки и потери актиноидов не учитывались. Если после переработки топливной композиции система оказывалась подкритической ($K_{эф} < 1$), то для достижения критического состояния часть содержащихся в топливе подпитки МА_{ОЯТ} заменялась плутонием. Кампания топлива — интервал времени, в течение которого на переработку извлекается объем топливной соли, равный ее объему в топливном контуре, принята равной 300 эф. сут. Объем топливного контура был принят равным объему активной зоны.

Результаты расчетов ЖСП-С приведены в таблице и на рисунке. В таблице $V_{a.з}$ — объем активной зоны, C_A — концентрация фторидов актиноидов на начало кампании, M_A — масса актиноидов в топливе подпитки, $K_{MA}(N)$ — показатель эффективности трансмутации МА_{ОЯТ}



Зависимость K_{MA} от времени для системы на основе LiF—NaF—KF с объемом активной зоны 30 м³ (1) и LiF—BeF₂ с объемом 30 (2), 8 (3) и 2 м³ (4)

на начало N -й кампании. Его асимптотическое значение $K_{MA}(t \rightarrow \infty)$ определялось как отношение массы МА_{ОЯТ} к массе всех актиноидов в топливе подпитки в равновесном режиме, при котором состав и масса топлива подпитки почти (в пределах нескольких процентов) постоянны

Характеристики трансмутации МА_{ОЯТ} в ЖСП-С на основе солей LiF—NaF—KF и LiF—BeF₂

Характеристика	$V_{a.з}, \text{м}^3$					
	30	15	8	4	2	1
M_A , кг	935	468	250	126	63	32
LiF—NaF—KF						
C_A , мол. доля, %	10	11	12	14	17	20
$K_{MA}(1)$	0,53	0,53	0,53	0,56	0,6	0,6
$K_{MA}(10)$	0,59	0,59	0,59	0,6	0,63	0,63
$K_{MA}(20)$	0,66	0,65	0,65	0,65	0,67	0,66
$K_{MA}(50)$	0,78	0,77	0,75	0,75	0,76	0,74
$K_{MA}(100)$	0,86	0,85	0,83	0,83	0,84	0,81
$K_{MA}(t \rightarrow \infty)$	1	1	1	1	1	1
LiF—BeF ₂						
C_A , мол. доля, %	3	3	3	3	3	3
$K_{MA}(1)$	0,35	0,34	0,32	0,29	0,24	0,16
$K_{MA}(10)$	0,37	0,34	0,31	0,25	0,16	*
$K_{MA}(20)$	0,39	0,36	0,31	0,23	0,13	*
$K_{MA}(50)$	0,42	0,37	0,3	0,2	0,07	*
$K_{MA}(100)$	0,43	0,37	0,3	0,18	0,04	*
$K_{MA}(t \rightarrow \infty)$	0,45	0,38	0,3	0,17	0	*

*При $C_A = 3$ мол. доля, % в топливной композиции на основе LiF—BeF₂, $V_{a.з} = 1 \text{ м}^3$, $q = 100 \text{ кВт/л}$ после первой кампании при подпитке только плутонием $K_{эф} < 1$.

от кампании к кампании при слабом (в пределах 1%) изменении $K_{\text{эф}}$ реактора.

Из представленных результатов можно сделать следующие выводы:

реализация оптимального режима трансмутации МА_{ОЯТ} в ЖСР-С на основе LiF—NaF—KF возможна при концентрации фторидов актиноидов в топливной композиции в диапазоне 10—20 мол. доля, %, что ниже их предельной растворимости в этой соли при 650 °С с учетом неопределенностей экспериментальных данных по растворимости;

для ЖСР-С на основе LiF—NaF—KF эффективность трансмутации МА_{ОЯТ} слабо зависит от объема активной зоны, начиная со старта превышает 50%, за время эксплуатации реактора в течение 50 лет доля МА_{ОЯТ} достигнет 74—78% от загруженных в реактор актиноидов. При этом возможность дальнейшего использования топливной композиции равновесного состава после замены корпуса реактора по истечении его ресурса обеспечит близкую к единице эффективность трансмутации, что почти исключает потребление плутония;

при низкой концентрации актиноидов в топливной соли (~3 мол. доля, %), характерной для ЖСР-С на основе LiF—BeF₂, эффективность трансмутации МА_{ОЯТ}, включая асимптотический режим, составляет менее 50%, что означает преимущественное сжигание в таком реакторе плутония;

уменьшение объема активной зоны ЖСР-С на основе LiF—BeF₂ приводит к снижению $K_{\text{МА}}$, в том числе в процессе эксплуатации реактора при $V_{\text{а.з.}} < 10 \text{ м}^3$, до того, что при малом объеме активной зоны (менее 2 м³ при $q = 100 \text{ кВт/л}$) работа реактора со временем может оказаться невозможной из-за деградации состава топливной композиции (накопления четных изотопов плутония) и невозможности достижения критического состояния даже при подпитке одним плутонием.

Заключение. Для анализа свойств жидко-солевого реактора-сжигателя Np, Am, Cm предложено использовать показатель эффективности трансмутации, который характеризует соотношение между сжиганием этих элементов, потреблением плутония и наработкой высокоактивных отходов, кроме продуктов деления. Наибольшее значение показателя достигается

при работе ЖСР-С в оптимальном режиме трансмутации, при котором топливо подпитки содержит только Np, Am, Cm и отсутствует выгрузка из реактора актиноидов.

Оценки эффективности трансмутации выполнены для ЖСР-С на основе солей LiF—NaF—KF и LiF—BeF₂ при варьировании объема активной зоны. В расчетах критичность реактора регулировалась составом топлива подпитки при дополнительном условии ограничения содержания актиноидов в активной зоне их предельной растворимостью: 25 мол. доля, % в LiF—NaF—KF и 3 мол. доля, % в LiF—BeF₂ при 650 °С.

Показано, что в ЖСР-С на основе LiF—NaF—KF для достижения высокой эффективности трансмутации Np, Am, Cm, асимптотически стремящейся к единице, необходимая концентрация актиноидов в топливной композиции определяется, в основном, объемом активной зоны и составляет 10—20 мол. доля, %, что существенно ниже предельной растворимости.

Для ЖСР-С на основе LiF—BeF₂ из-за низкой растворимости в ней фторидов актиноидов наибольшая эффективность трансмутации на уровне ~40% может быть достигнута только при большом (более 15 м³) объеме активной зоны. Однако и в этом случае такой реактор, по существу, является сжигателем плутония, так как его потребление в 1,5 раза превышает потребление Np, Am, Cm.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Игнатьев В.В., Абакин С.С., Гуров М.Ю. и др. Реактор с циркулирующим топливом на основе расплавов фторидов металлов для сжигания Np, Am, Cm. — Атомная энергия, 2020, т. 129, вып. 3, с. 130—134.
2. Модестов Д.Г., Симоненко В.А., Хмельницкий Д.В. и др. Об оптимальном режиме трансмутации минорных актиноидов в жидкосолевом реакторе. — Там же, 2020, т. 128, вып. 3, с. 135—142.
3. Ганев И.Х., Лопаткин А.В., Орлов В.В. Гомогенная трансмутация Am, Cm, Np в активной зоне реактора типа БРЕСТ. — Там же, 2000, т. 89, вып. 5, с. 355—361.
4. Зацепин О.В., Кандиев Я.З., Кашаева Е.А. и др. Расчеты методом Монте-Карло по программе ПРИЗМА нейтронно-физических характеристик активной зоны ВВЭР-1000. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2011, вып. 4, с. 64—74.
5. Модестов Д.Г. Программа решения задач ядерной кинетики РИСК-2014: Препринт РФЯЦ — ВНИИТФ № 243, 2014.

6. Ignatiev V., Feynberg O. Progress in development of Li, Be, Na/F molten salt actinide recycler and transmuter concept. — In: Intern. Congress on Advanced in Nuclear Power Plants. France, 13—18 May 2007, Paper 7548.
7. Лизин А.А., Томилин С.В., Гневашов О.Е. и др. Растворимость PuF_3 , AmF_3 , CeF_3 , NdF_3 в расплаве LiF—NaF—KF . — Атомная энергия, 2013, т. 115, вып. 1, с. 11—16. // Lizin A.A., Tomilin S.V., Gnevashov O.E. et al. PuF_3 , AmF_3 , CeF_3 , and NdF_3 Solubility in LiF—NaF—KF melt. — Atomic Energy, v. 115, № 1, p. 11—17.
8. Петров Е.Р., Бибичев Б.А., Домкин В.Д. и др. Результаты измерения радионуклидного состава и выгорания высоковывоженого топлива ВВЭР-1000 разрушающими методами. — Радиохимия, 2012, т. 54, № 4, с. 348—351.

Поступила в Редакцию 13.07.21

УДК 621.039.73

ПЕРСПЕКТИВНЫЕ ТЕХНОЛОГИИ ОБРАЩЕНИЯ С ЖИДКИМИ РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ В АТОМНОЙ ПРОМЫШЛЕННОСТИ

Пензин Р.А. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва), Милютин В.В. (ИФХЭ РАН, г. Москва),

Свитцов А.А. (РХТУ им. Д.И. Менделеева, г. Москва)

e-mail: penzin_ra@nrcki.ru

На АЭС с вводом в строй были предусмотрены специальные системы очистки жидких радиоактивных отходов, образующихся при эксплуатации и профилактических или ремонтных работах. Стандартной для всех АЭС является выпарная технология, разработанная в начале 1960 гг. По этой технологии образующиеся на АЭС жидкие отходы поступают в единую систему сбора трапных вод и затем направляются на выпарные установки, где очищаются от радионуклидов [1]. Получаемый после выпарки конденсат доочищают на ионообменных смолах, концентрат солевого содержания около 300 г/дм^3 , относящийся к категории среднеактивных отходов, кондиционируют с получением твердого компаунда, пригодного для длительного хранения. Однако различные методы его отверждения — битумирование, цементирование, глубокое упаривание с получением солевого плава широкого промышленного распространения на отечественных АЭС не получили [2]. Отсутствие конечной стадии кондиционирования привело к тому, что на начало 2014 г. в специальных хранилищах жидких отходов АЭС накопилось около 100 тыс. м^3 солевых концентратов, при этом на некоторых станциях они были заполнены на 85—90% [3].

Очистка жидких радиоактивных отходов, основанная на селективной сорбции радионуклидов неорганическими сорбентами, в конце 1980-х гг. была успешно внедрена на РТП «Атомфлот» [4]. Установка была рассчитана на переработку 1200 м^3 в год, в 1989—2013 гг. на ней было очищено около 30 тыс. м^3 разных ти-

пов жидких отходов, образующихся при обслуживании атомного ледокольного флота страны.

Разработанная технология включала в себя двухступенчатую очистку с использованием на первой стадии механического фильтра для удаления взвесей и композиционного ферроцианидного сорбента марки «Селекс-ЦФ» (НЖА или НЖС) для удаления ^{137}Cs , на второй — фильтрацию сначала через тот же НЖА, затем через селективный к ^{90}Sr цеолитный сорбент ЦМП-А. Растворы, очищенные от радионуклидов до санитарных норм и содержащие только химические примеси и балластные соли, направлялись на стандартную систему биологической очистки.

Дальнейшее развитие селективной очистки произошло в конце 1990-х гг., когда в АО «ЦС «Звездочка»» был построен и введен в строй специализированный стационарный комплекс по переработке всех типов радиоактивных отходов, образующихся при эксплуатации и утилизации атомных подводных лодок [5]. В этом проекте впервые была создана аппаратно-технологическая схема комплексной переработки, включающая в себя как отдельный сбор, так и отдельную очистку жидких отходов разного физико-химического состава. Основные технологические решения, заложенные при ее разработке, получили дальнейшее развитие при создании установки ион-селективной очистки солевых концентратов на отечественных АЭС, затем при ликвидации аварии на АЭС «Фукусима» (Япония) [6, 7].