

Влияние на запас устойчивости коэффициентов реактивности, номера и типа гармоники можно видеть из неравенства

$$a_{\pi} b_N < a_r + \alpha_{m,n} - a_3 - \\ - a_x (1 - \bar{X}_{m,n}) \frac{\sigma_x \bar{\Phi}_{m,n}}{\lambda_x + \sigma_x + \bar{\Phi}_{m,n}} \quad (5)$$

при нарушении которого возникает экспоненциальная неустойчивость энергораспределения. Заметим, что расположение корней уравнения (4) рассматривалось также в работе [15].

Оценка «периода» пространственной неустойчивости

Для определения быстродействия систем локального регулирования мощности [15] необходимо знать изменения периода возможной неустойчивости энергораспределения с учетом ожидаемого в процессе кампании реактора изменения коэффициентов реактивности. На рис. 5 приведена зависимость «периода» экспоненциальной неустойчивости от «быстрого» мощностного эффекта реактивности ($\chi = a_{\pi} b_N - a_r$) на первой и второй азимутальной гармониках. Кривые построены при трех значениях a_3 (2β ; 3β ; 4β) соответственно для $a_x = -5\beta$ и $a_x = -8\beta$. Индексы на кривых обозначают номер гармоники, значения a_3 и a_x . С увеличением парового коэффициента реактивности «период» экспоненциальной неустойчивости монотонно уменьшается. При достаточно больших положительных значениях a_{π} «период» экспоненциального ухода на гармонике типа «север — юг» существенно меньше, чем на гармонике типа «правая — левая половина». Последнее означает, что при некоторых условиях требуемое быстродействие локальных регуляторов мощно-

сти может определяться периодом пространственной неустойчивости на первой азимутальной гармонике типа «север — юг».

Поступила в Редакцию 20.IX.76
В окончательной редакции 10.IV.78

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Емельянов И. Я. «Атомная техника за рубежом», 1973, № 5, с. 3.
- Мейер Дж. Е., Роуз Р. Т. «Теплопередача» (Труды американского общества инженеров-механиков), 1963, сер. С, т. 85, № 1, с. 3.
- Плютинский В. И., Фишграйт Л. Л. «Атомная энергия», 1968, т. 25, вып. 6, с. 474.
- Будников В. И., Сабаев Е. Ф. В кн.: Вопросы атомной науки и техники. Сер. Динамика ядерных энергетических установок, 1976, вып. 1 (9), с. 65.
- Мейер Дж. Е., Рейнхард Е. А. «Теплопередача» (Труды американского общества инженеров-механиков), 1965, сер. С, т. 87, № 2, с. 179.
- Токаренко В. Ф. В кн.: Вопросы атомной науки и техники. Сер. Динамика ядерных энергетических установок, 1975, вып. 1 (7), с. 75.
- Будников В. И., Сабаев Е. Ф. Там же, 1975, вып. 2 (8), с. 52.
- Холмс Дж. А. Г., Обертелли Дж. Д., Робертс Х. А. В кн.: Тяжеловодные реакторы парогенерирующего и других типов (Сборник докладов конференции, проходившей 14—16 мая 1968 г. в Англии), вып. 2. М., Атомиздат, 1970, с. 13.
- Мохоп Д. AEEW-R 441, 1966.
- Теория автоматического регулирования. Под ред. В. В. Соловьевника. Кн. 1. М., «Машиностроение», 1967.
- Доллежаль Н. А., Емельянов И. Я. «Атомная энергия», 1976, т. 40, вып. 2, с. 117.
- Хитчкок А. Устойчивость ядерных реакторов. М., Госатомиздат, 1963.
- Постников И. С., Сабаев Е. Ф. «Изв. АН БССР. Сер. физ.-техн. наук», 1967, № 3, с. 46.
- Неймарк Ю. И. Устойчивость линеаризованных систем. Л., изд. ЛКВВИА, 1949.
- Емельянов И. Я., Гаврилов П. А., Селиверстов Б. Н. Управление и безопасность ядерных энергетических реакторов. М., Атомиздат, 1975.

зап. 621.039.58/59

Исследование процесса удаления трития из облученной двуокиси урана при окислительной обработке в воздухе

АЧИМОВ А. Т., ВАЛУЕВ Е. М.

Операция окислительной обработки отработавшего ядерного топлива рассматривается как единственная удовлетворительная для удаления радиологически опасного продукта деления — трития [1, 2]. Процесс удаления трития из облученной двуокиси урана исследовался ранее [3]. Полученная информация позволила

приступить к оптимизации режимов окислительной обработки в целях наиболее полного удаления трития; в качестве окислительного реагента предполагалось использовать воздух.

Для того чтобы в водных сбросах содержание трития не превышало предела, предусмотренного для открытых водоемов ($3,2 \cdot 10^{-6}$ Ки/л),

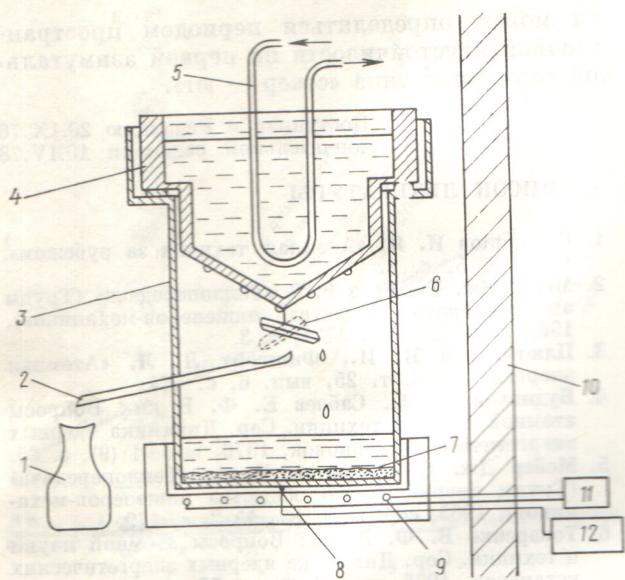


Схема аппарата:

1 — приемная колба; 2 — боковой патрубок; 3 — корпус аппарата; 4 — крышка-конденсатор; 5 — подача охлаждающей воды; 6 — направляющая для стекания конденсата; 7 — топливо; 8 — термопара; 9 — электронагреватель; 10 — биологическая защита; 11 — автотрансформатор; 12 — милливольтметр

требуется удалить из отработавшего топлива перед растворением не менее 99,99% трития, что является весьма сложной задачей. Для возможного повторного использования топлива растворов достаточно удалить из топлива 99,6% трития, что, как оказалось, вполне достижимо.

В настоящей работе исследовали облученную двуокись урана со средним выгоранием $2,56 \cdot 10^4$ МВт·сут/т U. Экспериментально определенное содержание трития в UO_2 находилось в пределах 200 ± 10 Кн/т U. Цель экспериментов — окислительная обработка UO_2 и определение количества удаленного на данной операции трития, которое рассчитывалось по разности его содержания в исходной и обработанной двуокиси урана. Так как при растворении UO_2 в азотной кислоте тритий практически полностью (99,0—99,6%) переходит в раствор [4], была прията следующая последовательность операций определения исходного и остаточного содержания трития: растворение топлива в HNO_3 , двойная дистилляция воды, очистка бидистиллята, определение трития сцинтиляционным методом [6]. Конструкция аппарата (см. рисунок) для экспериментов позволяла провести весь цикл без промежуточной перегрузки. Методика эксперимента заключалась в следующем. Отработавшую кассету твэлов

ВВЭР-440 разбирали в горячей камере на отдельные элементы. Из центральной зоны элемента вырезали образцы для исследования. Оболочку удаляли механическим путем. Двуокись урана взвешивали с точностью $\pm 0,1$ г. Навеска топлива для одного опыта составляла 10—15 г. Для определения исходного содержания трития в топливе его навеску загружали в аппарат, туда же заливали 50 мл азотной кислоты. Растворение проводили при нагревании до 90—95°C в течение 2 ч. При растворении крышки аппарата, которая служила ходильником, была повернута таким образом, чтобы конденсат возвращался в аппарат. После окончания выдержки температуру снижали до 60—70°C, крышку поворачивали на 180°: в таком положении влага, конденсирующаяся на крышке, стекала через боковой патрубок в приемный стакан. Очистку дистиллята от α - и β -активных изотопов выполняли по известной методике [3, 5].

Эксперименты по удалению трития из топлива проводили в том же аппарате, специального дистиллирования топлива в процессе опыта не предусматривалось, высота слоя топлива составляла 2—5 мм. В таком состоянии топливо выдерживали при заданной температуре в течение определенного времени в условиях естественной парциализации воздуха. После выдержки аппарат оплавляли, топливо растворяли и определяли в нем остаточное содержание трития по описанной выше методике. При исследовании варьировались параметрами были температура и время окислительной обработки, так как именно эти два фактора дают возможность оптимизировать процесс [3]. Был запланирован и реализован полный факторный эксперимент 2^2 (табл. 1).

На основании экспериментальных результатов получено уравнение, характеризующее процесс удаления трития в данных условиях:

$$N = 96,0 + 2,64(\tau - 3) + 0,01(t - 520),$$

где N — процент удаления трития; τ — время процесса, ч; t — температура процесса, °C. Весьма высокая степень удаления трития (табл. 2) по сравнению с данными, полученными ранее [3], объясняется, по нашему мнению, использованием в качестве окислительного реагента влажного воздуха.

Рассматривая состояние трития в облученной двуокиси урана, можно предположить, что образующиеся при делении топлива ядра трития (тритоны), имеющие небольшой ионный ра-

Условия проведения и результаты экспериментов по удалению трития из облученной двуокиси урана при окислении в воздухе *

Таблица 1

№ опыта	t, °C	τ, ч	Конечное содержание трития			Количество удаленного трития (по разности)	
			Ки/л раствора	Ки/т U	% исходного содержания	Ки/т U	% исходного содержания
1	620	4	1,0·10 ⁻⁴	1,5	0,8	198,4	99,2
2	620	2	2,7·10 ⁻⁴	4,0	2,0	196,0	98,0
3	420	4	7,0·10 ⁻⁴	10,4	5,2	189,6	94,8
4	420	2	1,1·10 ⁻³	16,2	8,1	183,8	91,9
5	520	3	4,3·10 ⁻⁴	6,5	3,3	193,5	96,7
6	520	3	3,4·10 ⁻⁴	5,2	2,6	194,8	97,4
7	520	3	4,1·10 ⁻⁴	6,2	3,10	193,8	96,9

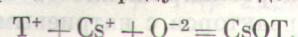
* Содержание влаги в воздухе, поступавшем на окисление, составляло 1,5 об. %.

дис, внедряются в кристаллическую решетку UO_2 , образуя валентные связи с ионами кислорода. Незначительная часть трития, образующегося вблизи поверхности частиц UO_2 , удаляется из них посредством отдачи, но основная часть трития первоначально аккумулируется в матрице топлива в виде кислородных соединений, которые легко диссоциируют под действием температуры и излучения.

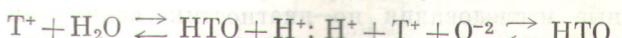
Очевидно, для удаления трития из облученной двуокиси урана требуется обеспечить диффузию его из объема частиц UO_2 к их поверхности и удалить его с поверхности. Время, необходимое для перемещения ионов трития из глубины частиц облученного материала к поверхности (как и для любого диффузионного процесса), определяется природой материала и диффундирующего вещества, температурой и размером частиц. Вопросы диффузии газообразных продуктов деления в окисном топливе рассматривались Ластманом [6], который считает, что коэффициент диффузии в U_3O_8 на 3–4 порядка выше, чем в UO_2 . Таким образом, окислительная рекристаллизация, уменьшающая размер частиц UO_2 и одновременно соответ-

ственно увеличивая коэффициент диффузии, позволяет при относительно невысокой температуре осуществить миграцию трития к поверхности частиц топлива.

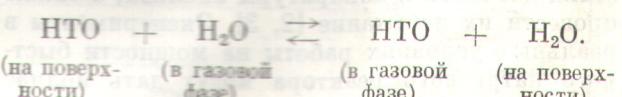
При обработке UO_2 кислородом было определено [8], что тритий удаляется в газовую фазу в виде молекул воды (T_2O , НТО). Для образования воды необходимо взаимодействие двух ионов трития и одного иона кислорода. Учитывая, что тритий содержится в топливе в ничтожно малой концентрации ($2 \cdot 10^{-5}$ ат. %), можно предположить, что весьма вероятными могут быть реакции образования соединения трития с кислородом и продуктами деления типа



Вероятность образования влаги значительно увеличивается на поверхности UO_2 при наличии в газовой фазе H_2O . В данном случае происходят следующие взаимодействия:



Наличие влаги в газовой фазе способствует также увеличению скорости и полноты удаления молекул НТО с поверхности частиц двуокиси урана в газовую фазу за счет изотопного обмена:



Поскольку в воздухе, поступающем на окислительную обработку, молекул H_2O в $2,5 \cdot 10^4$ раз больше, чем образующихся молекул НТО, равновесие данного процесса сдвинуто вправо. При обработке облученной UO_2 влажным воздухом значительно увеличиваются скорость

Результаты экспериментов по оптимизации удаления трития

Таблица 2

№ опыта	t, °C	τ, ч	N, %
8	600	8	99,8
9	650	12	99,96
10	700	16	99,97
11	700	20	99,97

и степень удаления трития с поверхности частиц топлива.

Анализ приведенного уравнения позволил заключить, что план эксперимента расположен в области оптимума, тем не менее было целесообразно продолжить поиск оптимальных условий с помощью метода «кругового восхождения». Уравнение было использовано для движения по градиенту к оптимуму (см. табл. 2). Как видно из данных табл. 2, в опытах получена высокая степень удаления трития, достигающая 99,96% при 12-часовой обработке и $t = 650^\circ\text{C}$. Дальнейшее увеличение температуры и времени процесса не привело к заметному повышению степени удаления трития.

Таким образом, эксперименты позволили на основании полученной математической модели процесса удаления трития найти оптимальные условия для этого процесса: температура 650°C , время выдержки > 12 ч, в качестве окислительного реагента используется влажный воздух.

УДК 621.039.534.6

Эксперименты по вскипанию натрия на реакторе БОР-60

АФАНАСЬЕВ В. А., АЛЕКСАНДРОВ К. А., КЕБАДЗЕ Б. В., МАРКЕЕВ В. М., ГОЛУШКО В. В., КРАСНОЯРОВ Н. В., МИТЕНКОВ Ф. М., МЕРКУЛОВ В. И., ПАХОМОВ В. В., КАРАСЕВ В. Н., ЗЕМЛИН А. В. (СССР), ФУГЕ Р., ПРИДЕЛЬ Э., УЛЬМАН Г., КЭТЦМЕР Д. (ГДР)

Высокая энергонапряженность активной зоны быстрых реакторов с натриевым теплоносителем определяет важность раннего обнаружения аварий, связанных с блокировкой расхода теплоносителя отдельных тепловыделяющих сборок (ТВС) или ячеек активной зоны. В последние годы в ряде стран проводятся интенсивные исследования по диагностике вскипания натрия, целью которых является разработка средств защиты элементов активной зоны от возможного разрушения при локальной аварии [1]. Исследования кипения натрия в стендовых условиях позволяют выбрать характеристики датчиков и аппаратуры анализа, а также провести их испытание [2, 3]. Эксперименты в реальных условиях работы на мощности быстрого натриевого реактора могут дать полное представление о практических проблемах и реальности создания системы диагностики вскипания натрия. В настоящей работе приводятся данные по кипящей сборке, системе измерений и результатам экспериментов со вскипанием натрия в объеме активной зоны реактора БОР-60.

При обработке облученной двуокиси урана в данном режиме степень удаления трития составляет более 99,96%, что обеспечивает радиационную безопасность при обращении с водными растворами, содержащими тритий.

Поступила в Редакцию 19.XII.77
В окончательной редакции 21.IV.78

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Srinivasan N. In: Proc. IAEA «Reprocessing of Highly Irradiated Fuel-Some Alternatives». Vienna, 1970, IAEA-115, p. 148.
2. Watson C. e.a. In: Proc. 16th Conf. on Remote Systems Technology. Vienna, 1969, p. 49.
3. Агеенков А. Т., Валуев Е. М. «Атомная энергия», 1976, т. 41, вып. 2, с. 140.
4. Агеенков А. Т. и др. Там же, вып. 1, с. 23.
5. Ломоносов И. Н., Смирнов Л. Д. Измерение трития. М., Атомиздат, 1968.
6. Ластман Б. Радиационные явления в двуокиси урана. М., Атомиздат, 1964.

Экспериментальное оборудование. На период эксперимента с кипением натрия реактор был оснащен кипящей сборкой и двумя волноводами (рис. 1). Кипящая ТВС расположена на границе активной зоны и состоит из 18 вольфрамовых и одного стального стержня диаметром 6 и длиной 450 мм (высота активной зоны 400 мм), которые окружены двумя обечайками с газовым теплоизолирующим зазором между ними. Расход натрия через кипящий блок 18 л/ч, что обеспечивает выход в режим кипения при мощности реактора 9 МВт; полное энерговыделение от γ -излучения в вольфрамовых стержнях ~ 5 кВт. В объеме кипящей сборки расположено 7 термопар. Кипящая сборка продолжена штангой с выходом над крышкой аппарата; по штанге выведены кабели от термопар и двух погружных датчиков (П-1, П-2), расположенных на расстоянии 300 мм от предполагаемого места склонивания пузырей. Чувствительные элементы датчиков — кристаллы из ниобата лития диаметром 6 мм.

Волноводный датчик (В-1) в перегрузочном канале представляет собой стальной стержень