

## 10. УРАН-ПЛУТОНИЕВЫЙ ТОПЛИВНЫЙ ЦИКЛ

Долгие годы плутоний (в основном – оружейного качества) целенаправленно нарабатывался на промышленных (военных) реакторах на тепловых нейтронах, и отчасти – на реакторах-бридерах на быстрых нейтронах и шёл на создание ядерных боеголовок. В настоящее время в основных ядерных странах промышленные реакторы остановлены, а быстрые так и не получили развития. Некоторая часть изотопно чистого плутония целенаправленно нарабатывается уже не для военных, а для гражданских целей. Переработка «отходного», обеднённого по изотопу  $^{235}\text{U}$  в ценное энергетическое сырьё  $^{239}\text{Pu}$  позволяет в 100 раз повысить эффективность уранового топлива. Однако эта часть не велика – в основном из-за проблем с распространением ядерного оружия. Сейчас плутоний в мире сам-с собой нарабатывается в топливе медленных энергетических и транспортных реакторов. В принципе, процесс самопроизвольной наработки плутония в реакторе можно только приветствовать, т.к. почти половина энергии в урановом реакторе генерируется как раз образовавшимся плутонием. Проблема плутония возникает после извлечения из реактора отработанного топлива. Чтобы вернуть не сожженный  $^{235}\text{U}$  обратно в процесс, облучённое урановое топливо надо комплексно переработать, очистив уран от продуктов деления (нейтронных ядов), актинидов, и, конечно, плутония. Получаемый при этом реакторный плутоний – вещество крайне плохого качества. Его изотопный состав ужасен: нужного нуклида –  $^{239}\text{Pu}$  – там только половина! (Типичный изотопный состав топлива отработанного топлива американского водо-водяного реактора:  $^{239}\text{Pu}$  (58%),  $^{240}\text{Pu}$  (24%),  $^{241}\text{Pu}$  (11%),  $^{242}\text{Pu}$  (5%),  $^{238}\text{Pu}$  (2%)). Причём зловредного  $^{240}\text{Pu}$  – четверть. Военным такой плутоний даром не нужен, энергетикам, в принципе, тоже: в условиях, когда урановое топливо стоит копейки, кто будет связываться с дорогой, невероятно сложной и опасной технологией очистки  $^{239}\text{Pu}$  от сопутствующих изотопов?! Американская позиция здесь однозначна: реакторный плутоний специально отравляют  $\gamma$ -излучающими изотопами для обеспечения невозможности его какого-либо использования, заливают в стекло или керамику, и отправляют на длительное хранение с перспективой его окончательного захоронения в геологических структурах. В некоторых странах (Япония, Франция, Россия) полагают, что решение проблемы плутония – производство смешанного уран-плутониевого топлива и сжигание МОКС топлива в быстрых и медленных энергетических реакторах. Полагают, что это – топливо будущего. Возможно! Но не ранее конца 21-го века...

### 10.1 Энергетические реакторы

В настоящее время за единственным исключением (быстрый реактор БН-600 на Белоярской АЭС) в энергетике используются реакторы на тепловых нейтронах: уран-графитовые, водо-водяные на обычной воде, водо-водяные на тяжёлой воде и газо-охлаждаемые уран-графитовые реакторы. Общее количество нарабатываемого в них плутония и его изотопный состав зависят от типа реактора, вида топлива, степени обогащения урана изотопом  $^{235}\text{U}$ , интенсивности потока нейтронов и его энергетического спектра, продолжительности кампании (времени облучения) и др. параметров.

Коротко остановимся на конструкции различных типов энергетических реакторов.

#### 10.1.1 Уран-графитовый реактор канального типа

Это – бескорпусной тепловой одноконтурный реактор с графитовым замедлителем, теплоноситель – обычная (дистиллированная) вода, тепловыделяющие элементы расположены в вертикальных каналах графитовой кладки. Реакторы такого типа мощностью 1000 МВт и более в России называются РБМК (реактор большой мощности канальный).

**Замечание.** Тепловая мощность реактора РБМК-1000 3200 МВт, а электрическая мощность реакторной установки 1000 МВт.

Реактор работает на тепловых нейтронах, в качестве теплоносителя используется обычная вода (гетерогенный реактор).

В одноконтурном канальном энергетическом уран-графитовом реакторе, установленном на АЭС, вода при прохождении через активную зону нагревается до температуры кипения. В верхней части активной зоны образуется пар. Пароводная смесь поступает в сепаратор, где делится на воду, возвращающуюся на вход реактора, и пар, идущий на турбину. Конденсат пара из конденсатора турбины направляют через подогреватели низкого давления в деаэрактор, а затем в реактор. Неконденсирующиеся газы из конденсатора турбины выбрасывают в систему вентиляции.

Канальные кипящие реакторы типа РБМК состоят из цилиндрической графитовой кладки замедлителя, размещаемой в бетонной шахте, через которую проходят специальные каналы для органов регулирования и технологические каналы с урановым топливом, охлаждаемым водой. Проходя через технологические каналы, вода сначала подогревается, а затем частично испаряется. Пароводная смесь по индивидуальным трубопроводам направляется в барабан - сепаратор, где пар осушается, а затем транспортируется в турбину. Конденсат пара смешивается с теплоносителем из барабан - сепаратора и циркуляционным насосом возвращается в реактор.

Основные технические характеристики РБМК следующие.

В самом общем виде реактор представляет собой цилиндр, составленный из графитовых блоков, помещенный в бетонную шахту. Реактор окружен боковой биологической защитой в виде кольцевого бака с водой. В топливном канале устанавливается тепловыделяющая сборка (ТВС). Активная зона собрана из графитовых шестигранных колонн, составленных из блоков. По центру каждого блока сквозь всю колонну проходят сквозные отверстия для размещения технологических каналов и стержней управления защитой.

Ядерным топливом служит диоксид урана ( $UO_2$ ), обогащенный  $^{235}U$  до 2%, в виде таблеток диаметром 11,5 мм запрессованных в ТВЭЛы - трубки из сплава на основе циркония с наружным диаметром 13,6 мм с толщиной стенок 0,9 мм. 18 таких ТВЭЛов смонтированы в одну общую тепловыделяющую сборку. ТВС в РБМК состоят из двух частей верхней и нижней. Помимо ТВЭЛов, ТВС содержит крепежные детали из сплава циркония и несущий стержень их оксида ниобия. Две последовательно соединенных тепловыделяющих сборки, длина каждой из которых (т.е. высота столбика таблеток) 3,5 м образуют тепловыделяющую кассету. Стенки кассеты плотно фиксированы к графитовой кладке. Кассета помещается в вертикально расположенную трубу (технологический канал), по ней прокачивается охлаждающая вода, которая превращается в пар непосредственно в ядерном реакторе. Одна топливная загрузка – 200 т урана. Преимущество РБМК - возможность перегрузки выгоревшего топлива без остановки реактора. Загрузка топлива в реактор осуществляется с помощью разгрузочно-загрузочной машины. Теплоноситель, вода, движется в каналах с низу в верх, омывая ТВС и снимая тепловую энергию. Реакторная установка РБМК-1000 является **одноконтурной** по теплоносителю, поскольку вода, пройдя реактор, нагревшись и частично испарившись, в виде пара поступает в турбину и, совершив работу, снова возвращается в реактор. Но в

тепловой схеме функционируют **два тепловых контура**, со своими источниками и потребителями тепловой энергии.



Рис. 68. Разрез реактора РБМК-1000.

Основные характеристики реактора РБМК-1000 приведены в Табл. 40.

Табл. 40. Основные характеристики реактора РБМК-1000

| Мощность                                    |                   |
|---|-------------------|
| Электрическая                               | 1000              |
| Тепловая                                    | 3200              |
| Размеры активной зоны, мм                   |                   |
| Эквивалентный диаметр                       | 11 800            |
| Высота                                      | 7 000             |
| Шаг топливных каналов, мм                   | 250               |
| Число топливных каналов                     | 1693              |
| Максимальная мощность теплового канала, кВт | 3000              |
| Тип ТВЭЛа                                   | стержневой        |
| Материал оболочки                           | циркониевый сплав |
| Паропроизводительность реактора, т/ч        | 5800              |

| Параметры пара перед турбиной                |       |
|--|-------|
| Давление, МПа                                | 6.38  |
| Температура, град С                          | 280   |
| Температура теплоносителя в каналах реактора |       |
| Вход   | 270   |
| Выход  | 284   |
| Расход воды через реактор, т/ч               | 37500 |
| Среднее массовое паросодержание на выходе, % | 14,5  |

### 10.1.2 Легко-водный реактор

Это - корпусной реактор, использующий в качестве замедлителя и теплоносителя обычную воду. В России это реакторы типа ВВЭР-1000 (водо-водяной энергетический реактор).

Реакторы водо-водяного типа с обычной («легкой») водой под давлением нашли широкое развитие в России. Весьма привлекательны дешевизна используемого в них теплоносителя-замедлителя и относительная безопасность в эксплуатации, несмотря на необходимость использования в этих реакторах обогащенного урана. Реактор ВВЭР-1000 представляет собой второе поколение легководных реакторов большой мощности. Электрическая мощность энергоблоков составляет 1000 МВт.

*Реактор с водой под давлением - легководный реактор, в котором вода находится под давлением, достаточным для предотвращения ее закипания и в то же время обеспечивающим высокую температуру теплоносителя (более 300°C). Тепловая энергия, вырабатываемая в активной зоне реактора, передается от твэлов теплоносителю (воде) первого контура. Теплоноситель поступает в теплообменники (парогенераторы), где отдает энергию во второй контур. Образующийся во втором контуре пар приводит в действие турбогенератор. В западных странах этот тип реактора обозначают PWR. Эксплуатирующиеся в России водо-водяные энергетические реакторы (ВВЭР) относятся к типу реакторов с водой под давлением.*

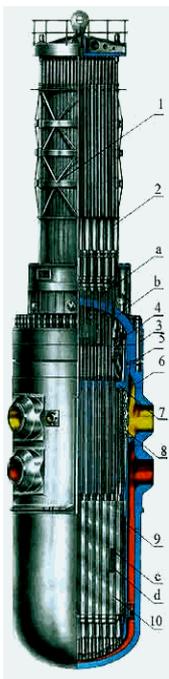
**ВВЭР** - водо-водяной энергетический реактор. Корпусной энергетический реактор, теплоносителем и замедлителем, в котором служит некипящая вода под давлением.

В энергетических реакторах корпусного типа ВВЭР (водо-водяной энергетический реактор) в качестве замедлителя нейтронов и теплоносителя используется обычная вода (гетерогенный реактор). Активная зона помещается в один общий корпус, через который прокачивается вода. Используется двухконтурная схема теплоотвода. В первом контуре циркулирует вода под давлением 160 атм при температуре на выходе из реактора 325<sup>0</sup>. В парогенераторах тепло передается воде второго контура, которая превращается в пар, подаваемый под давлением 60 атм на турбины. Первый контур, реакторный, полностью изолирован от второго, что уменьшает радиоактивные выбросы в атмосферу.

Загрузка природного урана 66 т, обогащение <sup>235</sup>U до 3-4%.

В корпусном кипящем реакторе активная зона размещена в высокопрочном, толстостенном стальном баке (**Рис. 69**). Корпус реактора является одним из ответственных конструктивных элементов и должен обеспечить абсолютную надежность и полную герметичность как в обычных условиях работы, так и при возможных аварийных ситуациях. Корпус полностью заполнен водой под высоким давлением (12,5 МПа и более). Корпус должен быть прочным, хорошо противостоять коррозионному и эрозийному воздействию теплоносителя и ионизирующих излучений.

**Рис. 69.** Разрез реактора ВВЭР-1000. 1 — верхний блок; 2 — привод СУЗ; 3 — шпилька; 4 — труба для загрузки; 5 — уплотнение; 6 — корпус реактора; 7 — блок защитных труб; 8 — шахта; 9 — выгородка; 10 — топливные сборки. а — теплоизоляция реактора; b — крышка реактора; c — регулирующие стержни; d — топливные стержни.



Вода подается в реактор снизу под давлением. Сверху реактор закрыт стальной крышкой, герметизирующей его корпус и являющейся биозащитой. Для предотвращения перегрева топлива в случае обезвоживания активной зоны смонтирована система, позволяющая быстро залить активную зону водным раствором борной кислоты. При этом не только охлаждаемая сама активная зона, но и прекращается цепная реакция деления.

Активная зона состоит из 163 ТВС шестигранной формы ТВЭЛами.

ТВЭЛы реактора собирают в тепловыделяющие сборки, ТВС, для удобства их перегрузки и транспортировки. ТВС шестигранной формы (163 штуки) расположены в середине активной зоны с шагом 20 - 25 см. Все ТВС в активной зоне монтируются в корзине. Корзина удерживает ТВС в определенном положении и распределяет поток теплоносителя через них. Некоторые ТВС дополнены сверху поглотителем из бороциркониевого сплава и нитрида бора и способны находиться в активной зоне или бороциркониевой частью, или урановой - таким образом осуществляется регулирование цепной реакции. Между ТВС активной зоны размещают устройства, поглощающие нейтроны, - это стержни системы регулирования.

В Табл. 41 приведены основные технические характеристики ядерного реактора ВВЭР-1000.

**Табл. 41** Технические характеристики ВВЭР

| Параметр   | Значение |
|--|----------|
| Мощность тепловая номинальная, МВт                                   | 3000     |
| Продолжительность работы между перегрузками топлива, месяц           | 12       |
| Внутренний диаметр корпуса реактора, м                               | 4,136    |
| Количество насосов первого контура, шт.                              | 4        |
| Давление теплоносителя первого контура, МПа                          | 15,7     |
| Общий расход теплоносителя первого контура, м <sup>3</sup> /час      | 84800    |
| Температура теплоносителя первого контура на входе в реактор, °С     | 290      |
| Температура теплоносителя первого контура на выходе из реактора, °С  | 320      |
| Количество парогенераторов, шт.                                      | 4        |
| Давление пара, МПа   | 6,27     |
| Температура пара, °С   | 278,5    |
| Паропроизводительность, т/час  | 1470     |
| Количество гидроемкостей системы аварийного охлаждения, шт.          | 4        |
| Количество высоконапорных насосов системы аварийного охлаждения, шт. | 3        |
| Количество низконапорных насосов системы аварийного охлаждения, шт.  | 3        |
| Количество генераторов надежного электропитания, шт.                 | 3        |

### 10.1.3 Тяжёловодный реактор

Самым известным реактором на тепловых нейтронах, использующим в качестве замедлителя тяжёлую воду и работающим на природном (не обогащённом) уране является реактор CANDU - канадский дейтерий-урановый реактор с тяжелой водой под давлением, в котором тяжелая вода используется в качестве замедлителя и теплоносителя.

CANDU (CANada Deuterium Uranium) – тяжёлый водо-водяной двухконтурный ядерный реактор производства Канады. В 1-м контуре CANDU используется не обычная, а тяжёлая вода, что позволяет (при достаточно больших размерах активной зоны и, соответственно, большом запасе ядерного топлива) использовать в качестве топлива обычный природный уран. В отличие от большинства водо-водяных реакторов (например, ВВЭР), CANDU – канальный реактор, это позволяет заменять использованное топливо свежим, не останавливая реактор.

Большинство энергетических реакторов во всём мире копируют американские принципы - активная зона должна быть размещена в едином корпусе высокого давления. Но в CANDU - иной подход. Здесь активная зона разбита на сотни топливных каналов, способных выдерживать относительно высокое давление. Эксплуатировать подобный реактор сложнее, но зато его возможно перегружать "на ходу", в то время как легководные аппараты для смены топлива приходится полностью останавливать.

В настоящее время мощность действующих реакторов этого типа не превышает 750 МВт, однако разработан проект реактора мощностью 1200 МВт. В реакторах CANDU тяжёловодный теплоноситель в пределах активной зоны распределяется по топливным каналам, т. е. индивидуальным трубам, содержащим ТВС. В первом контуре поддерживается давление примерно 10 МПа. Температура теплоносителя на входе в топливный канал 267°, на выходе 310°. Для теплоизоляции замедлителя топливные каналы заключены в другие трубы, так что образуется кольцевой газовый зазор. 390 таких двустенных труб располагаются горизонтально в корпусе реактора, заполненном тяжёлой водой. Каждая канальная труба через коллектор связана с циркуляционным насосом и парогенератором. Для поддержания необходимого давления первый контур оборудован компенсатором давления. Тяжёловодный замедлитель заключен в корпус каландра, который имеет собственную систему охлаждения, его температура поддерживается примерно на уровне 70°, давление близко к атмосферному. Каландр реактора мощностью 600 МВт имеет диаметр 7,6 и длину

внутренней полости 6 м; толщина стенки благодаря низкому давлению составляет всего 29 мм. Первый контур теплоносителя представляет собой две петли, соединенные в форме восьмерки и оборудованные циркуляционными насосами и парогенераторами. Во втором контуре применяется обычная вода, используемая для получения пара, питающего турбогенератор. КПД энергоблока с реакторами CANDU. В качестве топлива в реакторах CANDU используется диоксид природного урана (0,72%  $^{235}\text{U}$ ). Трубки из циркония наружным диаметром 13,1 мм с таблетками из  $\text{UO}_2$  образуют ТВЭЛы. 37 ТВЭЛов, объединенных в цилиндрический пучок, образуют ТВС. В каждый топливный канал реактора загружается комплект из 12 таких ТВС. Всего в активной зоне содержится 4560 ТВС или 95 т диоксида урана. Активная зона имеет диаметр 6,3, длину 5,9 м, энергонапряженность 11 кВт/л. В CANDU ТВС могут выгружаться на работающем реакторе. За 200 эффективных суток эксплуатации выгорание выгружаемого урана равно 7 МВт•сут/кг. При этом выгружаемое топливо содержит 0,2%  $^{235}\text{U}$  и 0,3% Pu.

Этот реактор стал успешно продвигаться в мире, поскольку имел самый высокий коэффициент установочной мощности. В Канаде было построено 22 блока с реакторами CANDU, и ещё 11 канадских тяжёловодников появилось за рубежом (правда, в таких странах, как Южная Корея, Румыния, Индия). Однако, потом начались неприятности. Сначала четыре блока с этими установками на АЭС "Дарлингтон" подскочили в цене с запланированных 2,5 миллиардов до 14,4 миллиардов долларов, затем, вместо ожидаемого продления срока эксплуатации, восемь реакторов в Онтарио пришлось остановить ещё до истечения 25-летнего срока эксплуатации, причём на возврат в строй четырёх из них было затрачено несколько миллиардов долларов, а два блока на АЭС "Пикеринг" признано нецелесообразным модернизировать. Сами блоки с CANDU работают неплохо, но в терминах среднего за срок службы КИУМ они уступают своим собратьям от "Вестингауза" и AREVA. Кроме того, время перегрузки топлива в американских реакторах намного меньше, чем в канадских. Поэтому подобные реакторы больше не строятся.

Тем не менее, сейчас они активно эксплуатируются и зарабатывают интересующий нас плутоний.

В реакторах «CANDU» топливо находится во множестве напорных труб внутри корпуса реактора, называемого «Каландрия» (или «бак-каландр»). Короткие пучки топливных стержней расположены в горизонтальных каналах. Тяжелая вода в герметичном контуре под давлением прокачивается через напорные трубы и передает теплоту парогенератору. Тяжелая вода низкого давления также заполняет «Каландрию», окружая напорные трубы, и выполняет функции холодного замедлителя. Все процессы происходят внутри большой бетонной или стальной оболочки. Пар подают на генератор турбины. В CANDU используется естественный уран (в виде диоксида), содержащий 0,7% изотопа  $^{235}\text{U}$ . Именно это обстоятельство обеспечило популярность CANDU в мире, поскольку не требует дорогостоящего и трудоёмкого разделения изотопов урана при обогащении его по  $^{235}\text{U}$  (правда, тяжёлая вода тоже денег стоит). Реактор CANDU работает с самым высоким коэффициентом нагрузки (84% - 87%) в мире.

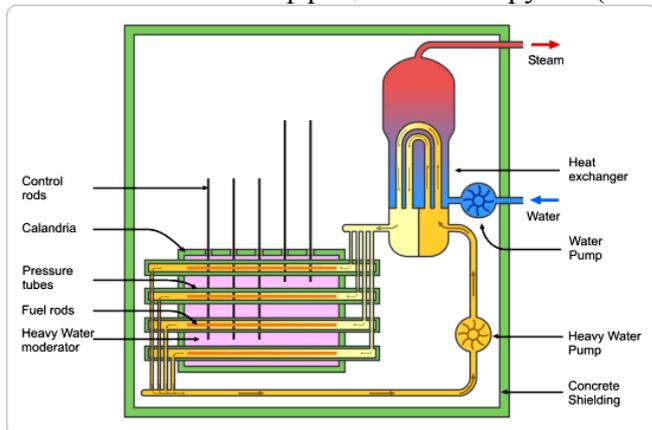


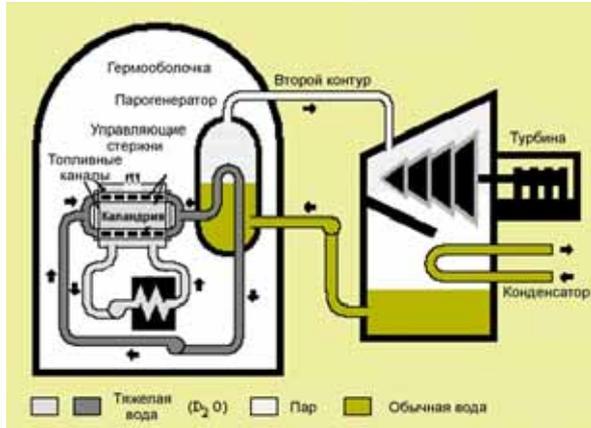
Рис. 70. Схема реактора CANDU.

Горизонтальность топливных позволяет осуществлять перегрузку топлива непосредственно в процессе работы реактора, которая осуществляется проталкиванием пучков во встречных направлениях в соседних каналах. Перегрузка позволяет иметь минимальные потери нейтронов и приемлемое выгорание на природном топливе. Горизонтальность каналов с топливом и бака-каландра с замедлителем играет свою позитивную роль ослабления последствий наиболее тяжелых аварий. При тяжелой аварии

приводящей к длительному осушению контура и каналов и потери  $\text{D}_2\text{O}$  замедлителя (утечки или испарения) из бака-каландра, разрушенные из за перегрева топливные сборки упадут вниз бака-каландра и будут долго охлаждаться через его обечайку, отдавая остаточное тепло большому объему воды биозащиты, в которую погружен бак-каландр.

Сейчас основное преимущество CANDU видят в возможности полного перехода этих реакторов на смешанное уран-плутониевое топливо (MOX-топливо), т.к. другие тепловые энергетические реакторы в мире (и то далеко не все) позволяют только треть своей загрузки переводить на MOX-топлива. Поэтому реакторы этого типа – основная надежда на уничтожение мировых запасов плутония.

Среди важных неприятных особенностей КАНДУ отметим небольшой, но существенный положительный паровой эффект реактивности (рост реактивности при потере тяжелой воды в каналах), который трудно устранить, особенно в реакторах КАНДУ с природным топливом, что привело к необходимости второй системы быстрого аварийного гашения реактора.



**Рис. 71** Энергетический реактор "CANDU" на тяжелой воде (PWRH) в схеме АЭС.

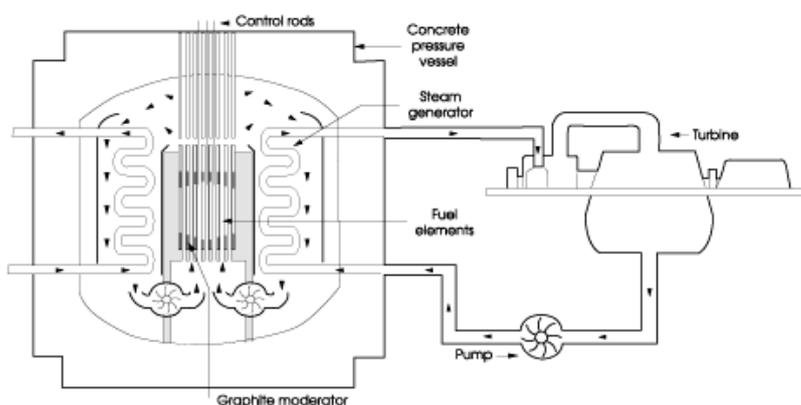
Атомные электростанции CANDU лучше других используют ресурсы ядерного топлива, и могут функционировать на разновидностях низко обогащенного топлива, включая топливо, отработанное на других типах реакторов. Обогащение топлива не требуется, но необходимо производство тяжелой воды. Однако тяжелая вода загружается один раз при запуске реактора, а сроков ее использования не существует. Реакторы CANDU хорошо подходят для сжигания уран-плутониевого (MOX) топлива. Торий можно также использовать как топливо для реакторов CANDU. В этом случае торий ( $^{232}\text{Th}$ ), поглощая нейтроны в реакторе, становится расщепляющимся ураном ( $^{233}\text{U}$ ), который и продолжает цепную реакцию деления. Торий приблизительно в три раза более распространен в земной коре, чем уран.

#### 10.1.4 Газоохлаждаемый реактор

Графит является хорошим замедлителем и обладает относительно небольшим сечением поглощения нейтронов. В связи с этим тепловые реакторы с графитовым замедлителем и газообразным теплоносителем (диоксид углерода или гелий) могут работать на природном уране. Однако из-за низкого содержания делящегося материала выгорание топлива в таких реакторах мало. По этой причине в усовершенствованных газоохлаждаемых реакторах используется обогащенный уран. Меньшая доля замедляющихся нейтронов по отношению к нейтронам тепловых энергий является результатом относительно большого объема замедлителя в активной зоне. Поэтому использование графита приводит к значительным размерам активной зоны и весьма низкой энергонапряженности. Газографитовые реакторы на природном уране (магноксовые реакторы) начали разрабатываться в Великобритании, и Франции в 50-60-х годах. Первая АЭС с четырьмя такими реакторами Колдер-Холл, мощностью 4x40 МВт(эл.), была пущена в 1956. В настоящее время маг-ноксовые реакторы больше не строятся,

Первыми двумя реакторами в ядерном центре в г. Селлафильде (Великобритания) были реакторы «Виндскейл Пейл», представляющие собой реактор с графитовым замедлителем и воздушным теплоносителем. Эти реакторы использовались для наработки оружейного плутония. Они имели горизонтальные топливные каналы. Эти два реактора производили 35 кг оружейного плутония ежегодно. Мощность одного реактора составляла 180 МВт.

Название «Магнокс» происходит от ядерного топлива, применявшегося в этих реакторах. В качестве топлива использовался **природный** металлический уран, который помещался в специальную оболочку из оксида **магния**.



**Рис. 72.** Уран-графитовый реактор с  $\text{CO}_2$ -теплоносителем Магнокс (Великобритания) в схем АЭС.

**Магноксовый реактор (Magnox reactor)** - газоохлаждаемый реактор с графитовым замедлителем, в котором теплоносителем является углекислый газ, а в качестве ядерного топлива используется природный уран. Наименование "магноксовый" произошло от названия материала топливной оболочки - сплава магния. Реакторы такого типа эксплуатируются в

Великобритании.

Активная зона реактора состоит из нескольких графитовых стрержней, внутри каждого из которых имелся канал охлаждения. Газ выводится снизу бака реактора через активную зону на вершину бака. Это нагревает воду во вторичном контуре и превращает её в пар, что в свою очередь приводит в действие генератор электричества. Давление во вторичном контуре (в котором находится вода) выше, чем в первичном (в котором находится газ). В больших башнях-градирнях происходит охлаждение пара до состояния воды. Большинство реакторов типа «Магнокс» для уменьшения давления внутри реактора имеют большие круглые реакторные баки. Бак встроен в бетонный кожух для защиты от радиации. Реакторы строились для производства оружейного плутония, но потом стали первыми в мире реакторами, производящими и подающими потребителю электричество в коммерческих масштабах. Мощность АЭС с реактором «Магнокс»

- всего 50 МВт(э). Магноксовые реакторы имеют низкую выработку электроэнергии на единицу объема активной зоны и большое число ТВЭЛов. При температуре газа 400° производится пар с более низкими параметрами, чем на ТЭС на угле. Общий тепловой КПД составляет 30%.

Следующие модели реакторов типа АGR достигли широкого распространения в 70-е – 80-е годах. По сравнению с реакторами типа «Магнокс» новое поколение имело большую производительность – до 600 МВт, а затем и 1000 МВт(э). В реакторах АGR температура газа на выходе достигает 650°, а КПД – 40%. Использование металлического топлива «Магнокс» стало основной причиной экологических проблем, связанных с безопасностью. Металлический уран быстрее подвергается коррозии при взаимодействии с водой, чем керамическое топливо на основе окиси урана. При взаимодействии с водой металлический уран образует оксид урана и гидрид урана, оба легковоспламеняемые вещества. Это представляет дополнительную угрозу безопасности реактора. Сильно корродируют и отработанные ТВЭЛы при их промежуточном хранении в бассейнах при АЭС.

В конце 20-го века, в рамках борьбы с потеплением климата, британское правительство приняло решение о сокращении использования в промышленности углекислого газа и строительство подобного типа реакторов было прекращено.

Тем не менее, в настоящее время Великобритания остаётся единственной в мире страной, до сих пор использующей на АЭС реакторы с газовым охлаждением (26 из 27). Реакторы подобного типа есть в Италии и Японии.

Дальнейшее развитие этого направления в основном происходило в Великобритании и привело к созданию усовершенствованных газоохлаждаемых реакторов. В США и ФРГ построены высокотемпературные газоохлаждаемые реакторы, имеющие высокие температуру газа и КПД. Такие реакторы могут служить источниками высокопотенциальной теплоты для ряда производств с высокотемпературными технологическими процессами.

## 10.2 Нарботка плутония энергетическим реактором

**Глубина выгорания** топлива определяется как отношение количества израсходованного ядерного топлива к общему количеству первоначально загруженного топливного материала, выраженное в процентах, или как отношение количества выработанной энергии к количеству загруженного топлива.

Учитывая, что тепловая энергия одного акта деления  $^{235}\text{U}$  составляет 190 МэВ и что 1 эВ/атом соответствует 23 ккал/моль (1 ккал=4186,8 Дж/моль), можно считать, что при "сгорании" 1 г  $^{235}\text{U}$  выделяется энергия:

$$E_{\text{тепл}} = \frac{190 \cdot 10^6 \cdot 23}{235} = 1,86 \cdot 10^7 \text{ ккал/г } ^{235}\text{U}$$

или  $E_{\text{тепл}} = 1,86 \cdot 10^7 \cdot 1,16 = 2,15 \cdot 10^7$  Вт.ч/г=0,89 МВт.сут/г=2,44\*10<sup>-3</sup> МВт/г.

КПД современных энергетических реакторов составляет примерно 30%. Это означает, что для обеспечения электрической мощности 1000 МВт необходим реактор с тепловой мощностью 3300 МВт, т.е. в течение одного года должно выгореть 1,3 т  $^{235}\text{U}$ . В реальных условиях уранового топливного цикла это значение ниже, так как существенный вклад в выработку энергии вносит образующийся при работе ядерного реактора  $^{239}\text{Pu}$ . По мере его накопления в топливном материале возрастает вероятность деления ядер плутония. При обычных режимах работы реакторов на тепловых нейтронах примерно половина всех актов ядерного деления приходится на долю  $^{239}\text{Pu}$ . Поэтому плутоний - полноценное ядерное топливо даже при загрузке в реактор чистого уранового топлива. С учетом деления  $^{239}\text{Pu}$  в реактор мощностью 1000 МВт (эл.) необходимо загрузить 670 кг/год  $^{235}\text{U}$ , что при 3%-ном обогащении соответствует 22 т U. При длительности кампании 3 года, загрузка составит 66 т U. Чтобы при этом обеспечить 3%-ную глубину выгорания, начальное обогащение  $^{235}\text{U}$  должно быть выше 3%, т.е. 3,5-4,5%. Загруженные 70 т урана должны быть постепенно, в течение трех лет, заменены свежим топливом. Поэтому из легководного реактора мощностью 1000 МВт (эл) выгружается и поступает на переработку 20-30 т U в год. Тепловая энергия реактора 3300 МВт (тепл).  $365 = 1,2 \cdot 10^6 / 30 = 40$  ГВт.сут/г. Реактор ВВЭР-1000 мощностью 1 ГВт при загрузке 66 т U с обогащением 3,3-4,4% рассчитан на глубину выгорания топлива 27000-40000 МВт.сут/т U.

Естественно, состав выгружаемого топлива зависит от его исходного состава. Напомним, что топливо реакторов Канду и Магнокс – природный уран (0,7% $^{235}\text{U}$ ), РБМК – 2% и ВВЭР – 4% (Это не идёт ни в какое сравнение с топливом быстрых реакторов, в которых 40% и более  $^{235}\text{U}$ ).

Об элементном и изотопном составе отработанного топлива реактора на тепловых нейтронах можно судить по приведённым ниже таблицам и рисункам.

**Табл. 42.** Состав отработанного ядерного топлива.

| Состав           | Легководные реакторы | Быстрые реакторы |
|------------------|----------------------|------------------|
| Уран, кг         | 960                  | 856              |
| Плутоний, кг     | 7                    | 103              |
| Продукты деления |                      |                  |
| Цезий, Ки        | 142000               | 152000           |
| Стронций, Ки     | 70300                | 162000           |
| Рутений, Ки      | 72000                | 1210000          |
| Родий, Ки        | 72000                | 1210000          |
| Криптон, Ки      | 9                    | 9                |

*Примечание:* Время выдержки ОЯТ - 3 года для легководных реакторов, 150 суток для реакторов на быстрых нейтронах.

**Табл. 43.** Состав отработанного ядерного топлива водо-водяных реакторов

| Показатель   | Тип реактора                            |                     |
|--|---|---------------------|
|  | ВВЭР-440                                | ВВЭР-1000           |
| Объем ОЯТ, выгружаемого в год, т/Гв                    | 35                                      | 25                  |
| Обогащение ураном 235, %                               |   |                     |
| Начальное  | 3,6                                     | 3,3-4,4             |
| Конечное   | до 0,7                                  | до 1,3              |
| Удельная активность ОЯТ (3 года выдержки), Бк/т        |   |                     |
| Содержание в ОЯТ радионуклидов (3 года выдержки), кг/т | $2 \cdot 10^{10}$ - $2,5 \cdot 10^{16}$ | $3 \cdot 10^{16}$   |
| Уран   |   |                     |
| Плутоний   | 960                                     | 947                 |
| Нептуний   | 9-9,5                                   | 9,9                 |
| Америций   | 0,5-0,6                                 | 0,7                 |
| Кюрий  | 0,15                                    | 0,2                 |
| Палладий   | 0,04                                    | 0,06                |
| Технеций   | 0,7-1,4                                 | 0,8 – 1,5           |
| Стронций-90, Бк/т                                      | 0,8-0,9                                 | 0,9 – 1,0           |
| Цезий-137, Бк/т  | $2,4 \cdot 10^{15}$                     | $3,5 \cdot 10^{15}$ |
| Общее содержание продуктов деления, кг/т               | $3,0 \cdot 10^{15}$                     | $4,8 \cdot 10^{15}$ |
|  | 30                                      | 42                  |

**Табл. 44.** Изменение состава топлива легководного реактора в результате облучения

| Состав топлива до облучения в реакторе            | Количество выгоревшего топлива                   | Состав облученного топлива   |
|---|--|--|
| $^{238}\text{U}$ 967 кг<br>$^{235}\text{U}$ 33 кг | $^{238}\text{U}$ 24 кг<br>$^{235}\text{U}$ 25 кг | $^{238}\text{U}$ 943 кг<br>$^{235}\text{U}$ 8 кг<br>$^{236}\text{U}$ 4.6 кг<br>Изотопы Pu 8.9 кг<br>$^{237}\text{Np}$ 0,5 кг<br>$^{243}\text{Am}$ 0.12 кг<br>$^{244}\text{Cm}$ 0.04 кг<br>Осколочные нуклиды 35 кг |
| Всего: 1000 кг<br>Обогащение 3,3%                 | Всего: 49 кг                                     |  |
| Изотоп  | Свежее топливо                                   | Отработанное топливо после выгрузки из реактора, вес, %  |
| $^{235}\text{U}$                                  | 3.3  | 0.80   |
| $^{236}\text{U}$                                  | -  | 0.46   |
| $^{238}\text{U}$                                  | 96.7   | 94.30  |
| Продукты деления                                  | -  | 3.50   |
| Pu  | -  | 0.89   |

|                               |     |      |
|-------------------------------|-----|------|
| Другие трансурановые изотопы* | -   | 0.05 |
| Итого:                        | 100 | 100  |

*Примечание:* данные приведены для ВВЭР-1000, при КИУМ = 70 %. Атомные номера трансурановых изотопов больше, чем у урана; изотопы образуются при абсорбции нейтронов (без деления) урановым топливом (в особенности  $^{238}\text{U}$ ).

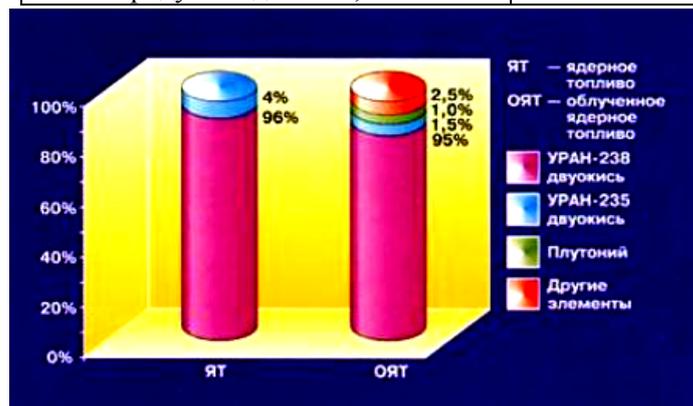
**Табл. 45.** Концентрация актинидов в ОЯТ энергетических реакторов, г/т U.

Нуклид ВВЭР-440 ВВЭР-1000 РБМК-1000

|                   |        |        |        |
|-------------------|--------|--------|--------|
| U <sup>235</sup>  | 12700  | 12300  | 2940   |
| U <sup>236</sup>  | 4280   | 5730   | 2610   |
| U <sup>238</sup>  | 942000 | 929000 | 962000 |
| Pu <sup>238</sup> | 75,6   | 126    | 68,6   |
| Pu <sup>239</sup> | 5490   | 5530   | 2630   |
| Pu <sup>240</sup> | 1980   | 2420   | 2190   |
| Cm <sup>244</sup> | 14,8   | 31,7   | 5,66   |
| Am <sup>241</sup> | 517    | 616    | 293    |
| Am <sup>243</sup> | 69,3   | 120    | 73,8   |

**Табл. 46.** Состав ОЯТ ядерных реакторов типа ВВЭР

| Показатель   | Тип реактора                          |                     |
|--|---------------------------------------|---------------------|
|  | ВВЭР-440                              | ВВЭР-1000           |
| Объем ОЯТ, выгружаемого в год, т/Гвт                   | 35                                    | 25                  |
| Обогащение ураном-235, %:                              |                                       |                     |
| Начальное  | 3,6                                   | 3,3-4,4             |
| Конечное   | до 0,7                                | до 1,3              |
| Удельная активность ОЯТ (3 года выдержки), Бк/г        | $2 \cdot 10^{16} - 2,5 \cdot 10^{16}$ | $3 \cdot 10^{16}$   |
| Содержание а ОЯТ радионуклидов (3 года выдержки), кг/г |                                       |                     |
| Уран   | 960                                   | 947                 |
| Плутоний   | 9-9,5                                 | 9,9                 |
| Нептуний   | 0,5-0,6                               | 0,7                 |
| Америций   | 0,15                                  | 0,2                 |
| Кюрий  | 0,04                                  | 0,06                |
| Палладий   | 0,7-1,4                               | 0,8-1,5             |
| Технеций   | 0,8-0,9                               | 0,9-1,0             |
| стронций-90, Бк/г                                      | $2,4 \cdot 10^{15}$                   | $3,5 \cdot 10^{15}$ |
| цезий-137, Бк/г  | $3,0 \cdot 10^{15}$                   | $4,8 \cdot 10^{15}$ |
| Общее содержание продуктов деления, кг/т               | 30                                    | 42                  |



**Рис. 73.** Изоотопный состав свежего и отработанного

Отработавшее ядерное топливо (ОЯТ) выгружают из реактора в виде сборок ТВЭЛов, которые направляют на выдержку в специальные хранилища, а затем транспортируют на химическую переработку. В процессе выдержки, активность радионуклидов изменяется по довольно сложному закону, но в целом – уменьшается.

**Табл. 47.** Изоотопный состав плутония в отработавшем топливе различных АЭС

| Тип реактора       | Выгорание, ГВт·сут/т U | Изотопный состав, % Pu |                   |                   |                   |                   |
|--------------------|------------------------|------------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
|                    |                        | <sup>238</sup> Pu      | <sup>239</sup> Pu | <sup>240</sup> Pu | <sup>241</sup> Pu | <sup>242</sup> Pu |
| ВВЭР–440           | 10                     | 0,2                    | 69,7              | 20,3              | 8,4               | 1,3               |
|                    | 22                     | 0,8                    | 59,9              | 22,9              | 12,8              | 3,6               |
|                    | 30                     | 1,2                    | 59,2              | 22,1              | 13,6              | 3,9               |
| ВВЭР–1000          | 40                     | 1,6                    | 44,1              | 30,4              | 16,4              | 7,3               |
| LWR                | 33                     | 1,3                    | 56,6              | 23,2              | 13,9              | 4,7               |
|                    | 43                     | 2,0                    | 52,5              | 24,1              | 14,7              | 6,2               |
| AGR                | 18                     | 0,6                    | 53,7              | 30,8              | 9,9               | 5,0               |
| BWR                | 27,5                   | 2,6                    | 59,8              | 23,7              | 10,6              | 3,3               |
| Magnox             | 5                      | —                      | 68,5              | 25,0              | 5,3               | 1,2               |
| CANDU              | 7,5                    | —                      | 66,0              | 26,6              | 5,3               | 1,5               |
| РБМК–1000 *        | 18                     | 0,8                    | 44,0              | 40,0              | 9,0               | 6,2               |
| БН–600 **          | —                      | 0,1                    | 85,0              | 13,5              | 1,0               | 0,1               |
| Оружейный плутоний | —                      | 0,05                   | 93,6              | 6,0               | 0,4               | 0,05              |

Примечания. \* Расчётные данные. \*\* Расчетные данные при загрузке реактора оружейным плутонием.

### 10.3 Переработка отработанного топлива реакторов АЭС

Основные процессы переработки отработанного топлива тепловых реакторов те же, что и при обработке облучённого урана из промышленных реакторов: растворение, экстракция-реэкстракция, широкое применение окислительно-восстановительных реакций, позволяющих переводить элементы из одной валентности в другую и тем самым разделять актиниды. Здесь применяются варианты уже описанных нами процессов пурекс и редокс. Мы их ещё раз бегло рассмотрим.

Отличие состоит, прежде всего, в необходимости вскрытия прочных ТВЭЛов энергетических реакторов и избавления от тугоплавкой, прочной и кислотоустойчивой оболочки, и растворение керамических таблеток (растворить металлический уран в процессе получения оружейного плутония, естественно, намного проще).

Первая стадия радиохимического производства включает подготовку топлива, т.е. освобождение его от конструкционных деталей сборок и разрушение защитных оболочек ТВЭЛов. Следующая стадия связана с переводом ядерного топлива в ту фазу, из которой будет производиться химическая обработка: в раствор, в расплав, в газовую фазу. Перевод в раствор чаще всего производят растворением в азотной кислоте. При этом уран переходит в шестивалентное состояние и образует ион уранила,  $UO_2^{2+}$ , а плутоний - частично в шести и в четырехвалентное состояние,  $PuO_2^{2+}$  и  $Pu^{4+}$  соответственно. Перевод в газовую фазу связан с образованием летучих галогенидов урана и плутония. После перевода ядерных материалов в требуемую фазу проводят ряд операций, непосредственно связанных с выделением и очисткой ценных компонентов и выдачей каждого из них в форме товарного продукта.

Переработка (репроцессинг) ОЯТ заключается в извлечении урана, накопленного плутония и фракций осколочных элементов (96 % ОЯТ - это  $^{235}U$  и  $^{238}U$ , около 1% - Pu, 2-3% - радиоактивные осколки деления). В 1 т ОЯТ на момент извлечения из реактора содержится 950-980 кг  $^{235}U$  и  $^{238}U$ , 5,5-9,6 кг Pu, а также небольшое количество  $\alpha$ -излучателей (нептуний, америций, кюрий и др.), активность которых может достигать 26 тыс. Ки на 1 кг ОЯТ. Именно эти элементы в ходе замкнутого ЯТЦ необходимо выделить, сконцентрировать, очистить и перевести в необходимую химическую форму.

Технологический процесс переработки ОЯТ включает:

- механическую фрагментацию (рубку) ТВС и ТВЭЛов с целью вскрытия топливного материала;
- растворение;
- очистку растворов балластных примесей;
- экстракционное выделение и очистку урана, плутония и других товарных нуклидов;
- выделение диоксида плутония, диоксида нептуния, гексагидрата нитрата уранила и закиси-оксида урана;
- переработку растворов, содержащих другие радионуклиды, и их выделение.

ТВЭЛы энергетических реакторов изготавливают из термостойких  $UO_2$  или  $PuO_2$ , из смешанных уран-плутониевых оксидов ( $UO_2 \cdot PuO_2$ ). Оболочки ТВЭЛ - из термостойких, механически прочных и коррозионно-стойких материалов с высокой теплопроводностью - циркония и его сплавов, нержавеющей стали. Все конструкционные материалы отличаются химической стойкостью, и растворение их представляет трудную задачу. Кроме делящихся материалов, ТВЭЛы содержат различные накопители и покрытия, состоящие из нержавеющей стали, циркония, молибдена, кремния, графита, хрома и др. При растворении ядерного топлива эти вещества не растворяются в азотной кислоте и создают в полученном растворе большое количество взвесей и коллоидов.

Глубина выгорания топлива промышленных реакторов, используемых для получения плутония, существенно отличается от глубины выгорания топлива энергетических реакторов. Если первые имеют глубину выгорания 0,3-0,5 ГВт.сут/т U, то глубина выгорания в энергетических реакторах на тепловых нейтронах составляет 15-40 ГВт.сут/т U, а в активной зоне реакторов на быстрых нейтронах достигает 100 ГВт.сут/т U и выше. Поэтому на переработку поступает материалы с гораздо более высоким содержанием радиоактивных осколочных элементов и плутония на 1 т U. Это приводит к повышению требований к процессам очистки получаемых продуктов и к обеспечению ядерной безопасности в процессе переработки. Трудности возникают из-за необходимости переработки и захоронения большого количества жидких высокоактивных отходов.

Обработанное топливо АЭС транспортируют из бассейнов для промежуточного хранения, расположенных на территории АЭС, затем - в бассейны на перерабатывающем заводе. Далее проводят выделение, разделение и очистку урана, плутония и нептуния тремя экстракционными циклами. В первом цикле осуществляют совместную очистку урана и плутония от основной массы продуктов деления, а затем проводят разделение урана и плутония. На втором и третьем циклах уран и плутоний подвергают дальнейшей раздельной очистке и концентрированию. Полученные продукты - уранилнитрат и нитрат плутония - помещают в буферные ёмкости до передачи их в конверсионные установки. В раствор нитрата плутония добавляют щавелевую кислоту, образующуюся суспензию оксалата фильтруют, осадок кальцинируют. Порошкообразную окись плутония просеивают через сито и помещают в контейнеры. В таком виде плутоний хранят до того, как он поступит на завод по изготовлению новых ТВЭЛов.

Основные технологические показатели такого процесса: коэффициенты очистки U от Pu -  $10^7$ ; от U -  $10^6$ ; U от продуктов деления (ПД) -  $10^7$ ; Pu от ПД -  $10^8$ ; извлечение урана и плутония более 99%.

Механические методы снятия оболочек включают несколько стадий. Сначала отрезают концевые детали тепловыделяющей сборки и разбирают ее на пучки ТВЭЛов и на отдельные ТВЭЛы. Затем механически снимают оболочки отдельно с каждого ТВЭЛа.

Вскрытие ТВЭЛов может проводиться без отделения материалов оболочки от материала сердечника. При реализации водно-химических методов оболочку и сердечник растворяют в одном и том же растворителе с получением общего раствора. Совместное растворение целесообразно при переработке топлива с высоким содержанием ценных компонентов ( $^{235}U$  и Pu) или когда на одном заводе перерабатывают разные виды ТВЭЛов, различающихся размером и конфигурацией. В случае пирохимических методов ТВЭЛ обрабатывают газообразными реагентами, которые разрушают не только оболочку, но и сердечник.

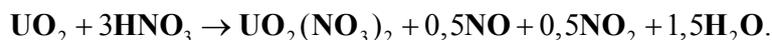
Удачной альтернативой методам вскрытия с одновременным удалением оболочки и методам совместного разрушения оболочки и сердечников оказался метод «рубка-выщелачивание». Метод пригоден для переработки ТВЭЛов в оболочках, нерастворимых в азотной кислоте. Сборки ТВЭЛов разрезают на мелкие куски, обнаружившийся сердечник ТВЭЛа становится доступным действию химических реагентов и растворяется в азотной кислоте. Нерастворившиеся оболочки отмывают от остатков задержавшегося в них раствора и удаляют в виде скрапа. Рубка ТВЭЛов имеет определенные преимущества. Образующиеся отходы - остатки оболочек - находятся в твердом состоянии, т.е. не происходит образования жидких радиоактивных отходов, как при химическом растворении оболочки; не происходит и значительных потерь ценных компонентов, как при механическом снятии оболочек, так как отрезки оболочек могут быть отмыты с большой степенью полноты; конструкция разделочных машин упрощается в сравнении с конструкцией машин для механического снятия оболочек. Недостаток метода рубки-выщелачивания - сложность оборудования для рубки ТВЭЛов и необходимость его дистанционного обслуживания. В настоящее время исследуют возможность замены механических способов рубки на электролитический и лазерный методы.

В обработанных ТВЭЛлах энергетических реакторов высокой и средней глубины выгорания накапливается большое количество газообразных радиоактивных продуктов, которые представляют серьезную биологическую опасность: тритий, йод и криптон. В процессе растворения ядерного топлива они в основном выделяются и уходят с газовыми потоками, но частично остаются в растворе, а затем распределяются в большом количестве продуктов по всей цепочки переработки. Особенно опасен тритий, образующий тритированную воду НТО, которую затем трудно отделить от обычной воды  $H_2O$ . Поэтому на стадии подготовки топлива к растворению вводят дополнительные операции, позволяющие освободить

топливо от основной массы радиоактивных газов, сосредоточив их в небольших объемах сбросных продуктов. Куски оксидного топлива подвергают окислительной обработке кислородом при температуре 450-470°. При перестройке структуры решетки топлива в связи с переходом  $UO_2-U_3O_8$  происходит выделение газообразных продуктов деления - Т, J, благородных газов. Разрыхление топливного материала при выделении газообразных продуктов, а также при переходе диоксида урана в закись-окись способствует ускорению последующего растворения материалов в азотной кислоте.

В принципе, радиохимическая переработка ОЯТ АЭС - достаточно устоявшаяся технология. Универсальным процессом является экстракция трибутилфосфатом (ТБФ) четырех- и шестивалентных актинидов (урана, плутония, нептуния) из азотнокислых растворов. Экстракционный процесс включает в головном цикле следующие стандартные операции: совместную экстракцию урана, плутония, нептуния; промывку экстракта от слабоэкстрагируемых осколочных нуклидов; восстановительную реэкстракцию плутония и нептуния с последующей отмывкой реэкстракта от урана тем же экстрагентом; реэкстракцию урана; содовую регенерацию экстрагента.

Выбор метода переведения ядерного топлива в раствор зависит от химической формы топлива, способа предварительной подготовки топлива, необходимости обеспечения определенной производительности. Металлический уран растворяют в 8-11М  $HNO_3$ , а диоксид урана - в 6-8М  $HNO_3$  при температуре 80-100°. При этом происходят реакции:

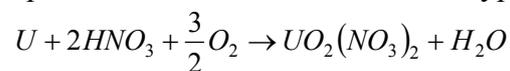


Разрушение топливной композиции при растворении приводит к освобождению всех радиоактивных продуктов деления. При этом газообразные продукты деления попадают в систему сброса отходящих газов. Перед выбросом в атмосферу сбросные газы очищают.



**Рис. 74.** Ёмкости на радиохимическом производстве где происходит процесс экстракции урана и плутония трибутилфосфатом (извлечение делящихся материалов из жидкой смеси органическим растворителем). Такая ёмкость взорвалась в 1993 на СХК.

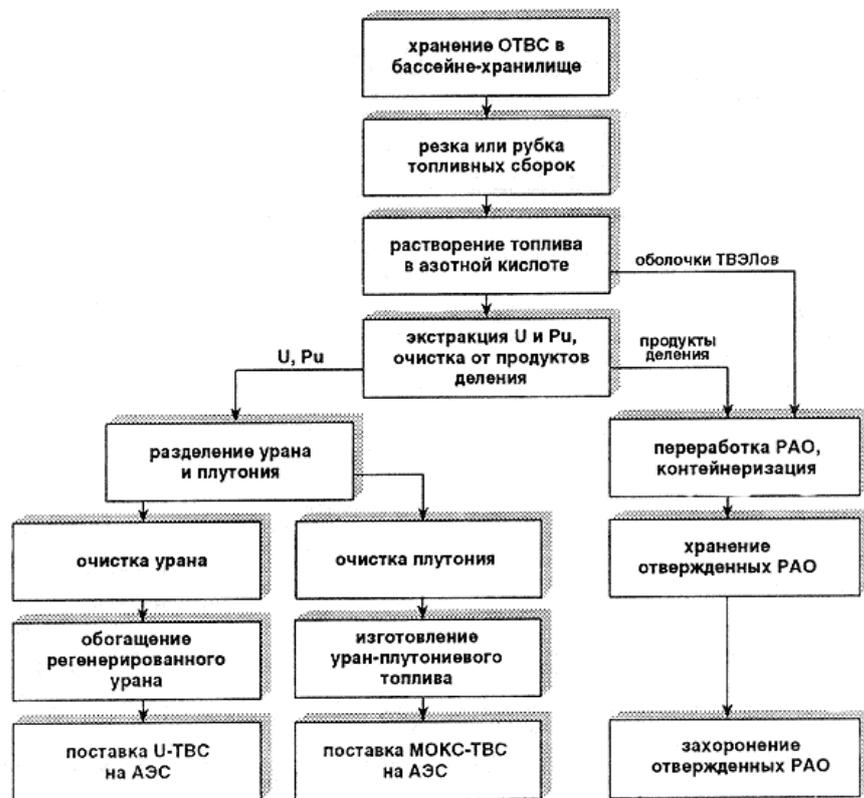
Лучше растворение проводить в присутствии кислорода. Тогда процесс протекает без выделения газов по уравнению:



Расход кислоты снижается, а радиоактивные ксенон, криптон и пары йода не разбавляются азотом и оксидами азота.

Большая часть негазообразных продуктов деления, растворяется в азотной кислоте с образованием нитратов соответствующих элементов. Однако при высокой степени выгорания топлива, когда количество образующихся продуктов деления достигает килограммов на 1 т U, часть труднорастворимых осколочных элементов полностью в раствор не переходит и образует нерастворимые взвеси. К таким элементам относятся рутений и молибден. В нерастворенном виде остаётся часть углерода и кремния, которые могут присутствовать как в материале сердечника, так и в смазочных материалах. Растворение и выщелачивание ядерного топлива осуществляют в периодическом, полунепрерывном и непрерывном режимах. Для каждого из этих режимов разработаны многочисленные конструкции аппаратов-растворителей.

Полученный в процессе растворения азотнокислый раствор ядерного топлива, содержащий все сопутствующие компоненты (продукты деления, конструкционные материалы, примеси), направляют на дальнейшую переработку. Эффективность процесса экстракции и, в частности бесперебойная работа экстракционного оборудования, достижение запланированных коэффициентов очистки ценных компонентов от продуктов деления и получение высоких коэффициентов разделения урана и плутония во многом зависит от состава раствора, поступающего на экстракцию. При этом кроме факторов, непосредственно влияющих на коэффициенты очистки и разделения (общая концентрация солей в растворе, концентрация кислоты, окислителей, восстановителей, присутствие комплексообразователей и т.д.), на ход экстракционных процессов влияют присутствующие в растворе макровзвеси и коллоиды.



**Рис. 75.** Основные операции по радиохимической переработке отработавшего топлива АЭС. ТВС - тепловыделяющая сборка; РАО - радиоактивные отходы; МОКС (mixed oxides, MOX) - смешанные оксиды урана и плутония, используемые как вторичное топливо; ТВЭЛ - тепловыделяющие элементы; ОТВС - отработавшая тепловыделяющая сборка.

Особенно много взвесей образуется при растворении ТВЭЛов с большой глубиной выгорания и содержащих труднорастворимые материалы (сталь, цирконий, кремний, углерод). В процессе экстракции взвеси концентрируются на границе раздела фаз, образуя плёнки, стабилизирующие капли эмульсии и уменьшающие скорость расслаивания фаз. При значительном накоплении взвесей в зоне расслаивания образуется объёмный осадок, который нарушает режим работы

экстракционных аппаратов, снижает их производительность, и длительность бесперебойной работы. Высокое тепловыделение радиоактивных осадков вызывает местные перегревы. Это приводит к усилению разрушения экстрагента, а затем – к образованию стабилизированных эмульсий. Эти осадки захватывают из раствора значительное количество ценных компонентов, что приводит к снижению коэффициентов очистки. Поэтому на стадии подготовки растворов к экстракции серьезное внимание уделяется их осветлению.

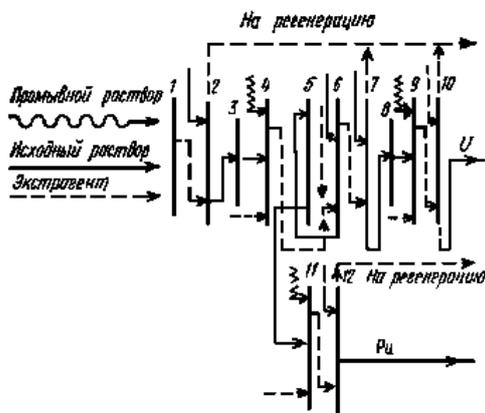
Для осветления растворов в промышленных условиях используют центрифугирование или фильтрацию через твёрдые фильтрующие материалы. Осветление растворов предусматривает удаление не только нерастворенных взвешенных частиц, но и содержащихся в растворе веществ, таких как кремниевая кислота, цирконий, молибден и другие компоненты. Для этого используют их флокуляцию с помощью водорастворимых органических соединений с последующим удалением образующихся осадков вместе с другими взвесьями центрифугированием или фильтрованием.

Окончательную подготовку исходного раствора ядерного топлива к экстракции проводят в специальных аппаратах для корректировки кислотности и состава раствора. Аппараты снабжены нагревателем и используются для упаривания. Стадия корректировки исходного раствора включает стабилизацию плутония и нептуния в экстрагируемом четырех- и шестивалентном состоянии, которую проводят нитритом натрия или окислами азота. В случае переработки топлива с высоким содержанием плутония целесообразно осуществлять его электрохимическое окисление, чтобы избежать введения в раствор большого количества солеобразующих веществ, увеличивающих объем высокоактивных сбросов.

Далее следуют операции, мало чем отличающиеся от уже описанных нами процессов экстракции в ходе наработки оружейного плутония. Отметим только несколько моментов.

Переработка отработанного ядерного топлива, извлечение из него урана, нептуния и плутония, а также некоторых ценных продуктов деления проводилась и проводится методами экстракции. Для той цели используются ТБФ, гексон (метилизобутилкетон), бутекс (бутиловый эфир диэтиленгликоля), Д2ГЭФК, ТОА (триоктиламин) и др. Наиболее эффективным способом остаётся пурекс-процесс (восстановление урана и плутония путем экстракции). В пурекс-процессе используется три-н-бутилфосфат (ТБФ), который может быть разбавлен, например, керосином или парафиновым (углеводородным) растворителем. ТБФ устойчив к азотной кислоте и может селективно экстрагировать комплексы нитратов трехвалентного и шестивалентного урана и плутония, но не экстрагирует комплексы нитратов трёхвалентного плутония.

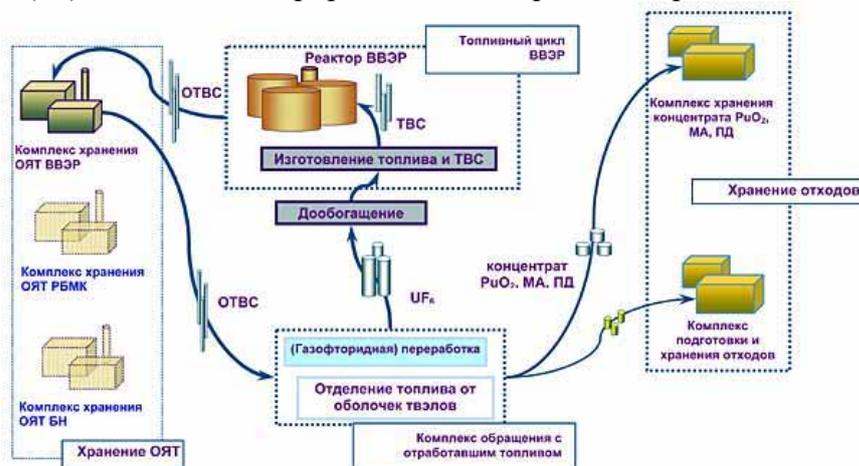
На **Рис.** представлена схема низкокислотного экстракционного разделения урана и плутония с использованием в качестве экстрагента 30%-ного (по объему) раствора ТБФ в разбавителе типа керосина. В первом цикле этой схемы уран (VI) и плутоний (IV) совместно отделяются от основной массы (99,9%) продуктов деления. Для этого исходный раствор  $[\text{HNO}_3, 1 \text{ моль/л, Pu (IV)}$  непрерывно подается в середину экстракционной колонны 1 и направляется вниз навстречу потоку экстрагента. Водный раствор попадает в противоток с существенно более лёгким органическим растворителем (ТБФ в керосине), поднимающимся снизу колонны. Таким способом создаются условия для селективной экстракции в системе из двух несмешивающихся жидкостей. В этом процессе органический растворитель экстрагирует уран и плутоний. В



то же время продукты деления и актиниды остаются в водном растворе, который вместе с азотной кислотой вытекает из колонны снизу, образуя водные отходы высокой удельной активности (ОВУА), содержащие продукты деления и актиниды. Эти отходы выпаривают для извлечения азотной кислоты, получая концентрат ОВУА.

**Рис. 76.** Схема низкокислотного экстракционного разделения урана и плутония.

Движущийся вверх органический растворитель содержит U(VI), Pu (IV) и незначительные следы продуктов деления, основная часть которых увлекается вниз раствором азотной кислоты (2 моль/л), вводимой в колонну сверху. Органический растворитель выходит из верхней части колонны 1 и направляется в колонну 2, в которой осуществляется реэкстракция урана и плутония разбавленным раствором  $\text{HNO}_3$  ( $10^{-2}$  моль/л). Реэкстракт, содержащий уран и плутоний, после концентрирования и подготовки с целью перевода Pu(III) и Pu(VI), образующихся при выпарке, в Pu (IV) с помощью  $\text{NaNO}_2$  в аппарате 3 подается на второй цикл очистки в колонну 4, в которой осуществляется совместная экстракция U(VI) и Pu(IV). В колонне 6, в нижнюю часть которой подается объединенный органический раствор из колонн 4 и 5, происходит восстановительная реэкстракция раствором  $\text{HNO}_3$  ( $6 \cdot 10^{-1}$  моль/л) Pu (IV) и Pu(VI) восстанавливаются в Pu(III) с помощью восстановителя. Им может быть нитрат четырехвалентного урана с гидрозиннитратом, гидроксиламиннитрат или сульфамат Fe(II). Водный раствор, содержащий Pu(III) и около 1% U, подается в верхнюю часть экстракционной колонны 5, в которой осуществляется очистка Pu от U(VI) экстракцией последнего свежим 30%-ным раствором ТБФ. Органический раствор, содержащий U(VI), из колонны 6 поступает в колонну 7 на реэкстракцию урана раствором  $\text{HNO}_3$  ( $10^{-2}$  моль/л). Трехвалентный плутоний слабо растворим в органических жидкостях, вследствие чего он повторно экстрагируется в водной среде, в то время как шестивалентный уран остается в органической фазе ТБФ с керосином. Небольшое количество экстрагированного урана экстрагируется снова в ТБФ с керосином, вводимом к нижней часть очередной экстракционной колонны. Реэкстракт, содержащий U(VI), после концентрирования в аппарате 8 направляется на последний цикл очистки.



**Рис. 77.** Схема извлечения урана из облученного топлива реакторов ВВЭР.

Последний урановый цикл включает в себя две операции: промывку и реэкстракцию В колонне 9 осуществляется двойная промывка органического раствора, содержащего U (VI), водой и раствором  $\text{HNO}_3$  (2,6 моль/л) от продуктов деления, микроколичеств плутония и примесей металлов. В колонне 10 происходит реэкстракция урана раствором  $\text{HNO}_3$  ( $10^{-2}$  моль/л). Водный раствор урана из колонны

10 направляется на концентрирование и очистку силикагелем, органический раствор - на регенерацию растворителя. Водный раствор, содержащий Pu (III), из нижней части колонны 5 поступает на последний плутониевый цикл в середину экстракционной колонны 11. В колонне 11 плутоний после окисления  $\text{NaNO}_2$  до Pu(IV) и корректировки концентрации  $\text{HNO}_3$  (высаливатель), экстрагируется движущимся навстречу потоком экстрагента. В верхней части колонны 11 осуществляется промывка экстракта, содержащего плутоний, от продуктов деления раствором разбавленной  $\text{HNO}_3$ . После восстановительной реэкстракции плутония в колонне 12 азотнокислым раствором (0,6 моль/л  $\text{HNO}_3$ ) сульфамата Fe (II) водный раствор,

содержащий плутоний, направляется на очистку с помощью ионообменных смол. Органический раствор из колонны 12 идет на регенерацию. Рассмотренная схема обеспечивает извлечение 99,95% урана и 99,7 % плутония с коэффициентами очистки  $10^7$ .

После очистки от продуктов деления и продуктов разложения органических веществ растворитель может быть использован повторно. Конечные продукты после концентрации и очистки представляют собой нитрат плутония  $Pu(NO_3)_4$  и уранилнитрат  $UO_2(NO_3)_2$ .

Экстракционные аппараты, могут быть представлены тремя различными конструкциями, а именно: пульсационными колоннами с перфорированными платами, смесителями-отстойниками и центробежными контакторами. Центробежные контактторы характеризуются очень коротким временем контакта водной и органической фаз, что позволяет лучше предохранить органический растворитель от радиационного разложения. Это особенно важно для топлива с небольшим временем выдержки и высоким выгоранием, каким является топливо легководных реакторов-размножителей (торий-урановый цикл). Пульсационные колонны также характеризуются относительно коротким временем контакта органического растворителя с топливом. Смесители отстойники представляют собой очень надежные, гибкие и простые системы с большими временами контакта. Они успешно применяются при переработке топлива небольшого выгорания во втором и третьем циклах очистки урана. Однако для первого цикла очистки и для циклов очистки плутония предпочтение отдается пульсационным колоннам.

Существуют и другие методики переработки ОЯТ. Например, в одной из них осуществляют выведение в отдельный поток технеция, соэкстрагируемого из исходного раствора топлива совместно с ураном, плутонием и нептунием, путем мягкого восстановления плутония и нептуния, отмывки технеция и урана экстрагентом из реэкстракта плутония и нептуния и последующего восстановления технеция с использованием того же восстановителя в присутствии гидразина. В качестве восстановителя используется ацетгидроксамовая кислота. Потребности в таких методиках возникли в связи с тем, что в последнее время увеличилась степень выгорания топлива. Как следствие, в экстракционном процессе возросла роль химического поведения отдельных осколочных элементов, в особенности технеция. Последний экстрагируется совместно с ураном, плутонием и нептунием и выводится в восстановительный раствор совместно с плутонием и нептунием. Выведение технеция в реэкстракт плутония и нептуния связано с его восстановлением гидразином до низших слабоэкстрагируемых форм. Технеций также является катализатором окисления гидразина и способен вызывать осложнения в процессе восстановления. Продукт каталитического окисления гидразина - азотистоводородная кислота ( $HN_3$ ) образуется с выходом до 0,3 молей на 1 моль окисленного гидразина и, т.к. является хорошо экстрагируемой, следует по органической линии до операции содовой регенерации, где выводится в промывной раствор. Поскольку  $HN_3$  взрывоопасна, образование её в процессе должно быть сведено к минимуму. При дальнейшей переработке реэкстрактов плутония и нептуния технеций поступает в рафинат афинажных отделений, объем которого превышает объем исходного раствора в несколько раз. Как коррозионноопасный агент, технеций нежелателен на операции упаривания рафинатов.

Эффективный способ отделения технеция в схеме "Пурекс" обеспечивает локализацию технеция в малом объеме с достаточно высокой концентрацией, причём последнее происходит в ходе самой восстановительной реэкстракции плутония и нептуния с последующей селективной реэкстракцией технеция. Выделение технеция в отдельный технологический поток позволяет ликвидировать неконтролируемые сбросы технеция в окружающую среду с низкоактивными растворами, а при выведении технеция в высокоактивный поток - предотвращает вымывание его из матрицы стекла ввиду слабой фиксации технеция в указанной матрице и способствует улучшению экологической обстановки. Одновременно повышается коэффициент очистки урана от радионуклидов, в частности от рутения, и снижается выход продукта разложения гидразина - азотистоводородной кислоты.

Способ предусматривает совместную экстракцию урана, плутония, нептуния и технеция в общепринятом режиме, слабокислотную промывку экстракта, после чего проводится мягкая восстановительная реэкстракция плутония и нептуния с помощью реагентов, не восстанавливающих технеций (УП). В качестве такого реагента используется раствор ацетатгидроксамовой кислоты (АГК). Далее экстракт урана и технеция промывается раствором АГК с добавкой небольших количеств гидразина, благодаря чему достигается селективная реэкстракция технеция с высокой степенью концентрирования. Реэкстракты плутония-нептуния и технеция промываются экстрагентом от урана с присоединением этого экстракта к основному потоку на обеих операциях. Далее следует общепринятая операция реэкстракции урана. При осуществлении такого процесса получается реэкстракт плутония и нептуния, содержащий соответственно 10 г/л плутония и 1 г/л нептуния при содержании технеция не более 3 мг/л, т. е.  $\approx 1\%$  от исходного количества. Реэкстракт технеция при этом содержит его 1 г/л, т. е. степень концентрирования его по сравнению с исходным раствором достигает 10. Кроме этого, операция реэкстракции технеция имеет и

дополнительные функции, а именно повышение очистки урана от рутения-106, который лимитирует общую очистку урана от  $\gamma$ -излучающих продуктов деления.

## 10.4 Обращение с реакторным плутонием

### 10.4.1 Изменение изотопного состава реакторного плутония при хранении

По экономическим причинам урановое топливо на АЭС работает долгое время и выгорает почти полностью. Степень облученности топливного элемента можно измерить в мегаватт-днях/тонну (МВт-день/т). В Табл. приведены типичные значения изотопного состава плутония в отработанном ядерном топливе зарубежных реакторов, работающих на природном (не обогащённом) уране: реакторы CANDU, MAGNOX при различных степенях облучённости топливного элемента.

Табл. 48. Изотопный состав плутония в ОЯТ зарубежных реакторов.

| Изотоп | Типичный | 33000 Мв/день·т | 7500 Мв/день·т | 3000 Мв/день·т |
|--------|----------|-----------------|----------------|----------------|
| Pu-238 | 2%       | 1.5%            | <0.1%          | -              |
| Pu-239 | 61%      | 56.2%           | 66.6%          | 80.0%          |
| Pu-240 | 24%      | 23.6%           | 26.6%          | 16.9%          |
| Pu-241 | 10%      | 14.3%           | 5.3%           | 2.7%           |
| Pu-242 | 3%       | 4.9%            | 1.5%           | 0.3%           |

Реакторы с 33000 МВт-день/т оперировали с ураном 3% обогащения в 1970-80-х гг. Со снижением цен на обогащенный уран (из-за освобождения армейских производственных мощностей) в настоящее время используется более насыщенное  $^{235}\text{U}$  топливо - 4-4.5%, позволяя довести выгорание до 45000 МВт-день/т и даже выше. В результате в отработанном горючем содержится еще больше паразитных изотопов  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  и  $^{242}\text{Pu}$ .

Плутоний такого состава поступает на долговременное хранение. Важный вопрос, если он будет похищен из хранилища террористами, то годится ли он для создания атомной бомбы?

Взяв за основу плутоний из типичного легководного реактора, определим его тепловую мощность - 14.5 Вт/кг, увеличивающуюся до 19.6 Вт/кг за 14 лет после полураспада  $^{241}\text{Pu}$  и после полного распада  $^{241}\text{Pu}$  - 24 Вт/кг. Уровень нейтронов - 350000 нейтронов/кг, удельная радиоактивность - 11.0 кюри/г (0.442 кюри/г ( $\alpha$ -активности). Принимая в расчёт явление изотопного разбавления критической массы (хорошо делятся только  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Pu}$ ) бомба, созданная из 8 кг такого материала выдавала бы 116 Вт тепла (электролампочку такого же размера и такой же мощности невозможно держать в руках) и  $2.8 \cdot 10^6$  нейтронов/с. С таким веществом создание атомной бомбы остаётся под вопросом. Потребовалось бы система постоянного активного охлаждения заряда для предотвращения порчи ядерного материала, взрывчатки и других компонентов. Высокий уровень нейтронного излучения неизбежно вызывает преждевременную детонацию, даже с очень эффективной имплозионной системой. Тем не менее, даже с относительно примитивной по нынешним меркам конструкцией Fat Man'a, можно произвести взрыв мощностью 0.5 кт. С оптимальной имплозионной системой выход составит несколько килотонн. При технологии усиления заряда за счет синтеза, все нежелательные свойства реакторного плутония полностью обходятся, можно изготовить мощный боеприпас (водородную бомбу) и с этим «плохим» плутонием.

После долгого периода времени, несколько десятилетий или столетий, тепловая мощность реакторного плутония значительно снижается с распадом  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ . На нейтронный фон это сказывается мало. Сейчас отработанное реакторное топливо обычно сохраняется на неопределенное время в герметичных контейнерах. Оно может представлять интерес для террористов, особенно хранящееся уже долгое время, с сократившимся тепловыделением и радиацией. Сорокалетнее хранение приведёт к распаду 30%  $^{238}\text{Pu}$ , 88%  $^{241}\text{Pu}$ , 1.5%  $^{238}\text{Pu}$ , 67.3%  $^{239}\text{Pu}$ , 26.4%  $^{240}\text{Pu}$ , 1.3%  $^{241}\text{Pu}$  и 3.3%  $^{242}\text{Pu}$ . Произойдёт снижение мощности до 11.7 Вт/кг и меньший её рост в дальнейшем (максимум до 13.8 Вт/кг). Хранение реакторного плутония 150 лет изменит состав таким образом: 0.66%  $^{238}\text{Pu}$ , 69.06%  $^{239}\text{Pu}$ , 26.86%  $^{240}\text{Pu}$ , 0.01%  $^{241}\text{Pu}$ , 3.41%  $^{242}\text{Pu}$ , с сохранением стабильного тепловыделения на уровне 7.5 Вт/кг.

### 10.4.2 Обогащение плутония

Применение технологий обогащения урана для удаления нежелательных изотопов плутония и обогащение его по изотопу  $^{239}\text{Pu}$  технически возможно. Оно усложнено присутствием множества изотопов, отличающихся друг от друга всего одной атомной единицей массы ( $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  отличаются на 3) - значительно снизится и без того небольшой коэффициент сепарации. Может потребоваться двухпроходное разделение - сначала удаляются тяжелые изотопы -  $^{240}\text{Pu}$  и выше, а затем (в зависимости от начального содержания), отделяется  $^{238}\text{Pu}$ . Токсичность, нейтронное излучение и самонагрев плутония во входном и выходном потоках, в обогащенном продукте - все эти факторы ещё больше усложняют технологию разделения плутония по сравнению с ураном. Есть и облегчающий процесс обогащения момент - масса

сырья, которая должна быть переработана, более чем на два порядка меньше, чем при разделении природного урана. Это происходит и из-за высокого изначального содержания  $^{239}\text{Pu}$  (60-70% сравнивая с 0.72% у урана) и из-за меньшей критической массы плутония (6 против 15 кг). Даже со всеми указанными выше сложностями, завод по обогащению плутония будет много меньше уранового. Не трудно производить оружейный плутоний из реакторного на электромагнитных сепараторах, которые, благодаря очень высокому коэффициенту разделения требуют всего одну стадию очистки.

Электромагнитный сепаратор, способный нарабатывать 0.5 урановых бомбы в год (аналогичный планировался Ираком до войны 1991), способен на производство 100 плутониевых бомб из реакторного плутония. Газовая диффузия и центрифугирование тоже жизнеспособные кандидаты. Свойства гексафторида плутония сходны с гексафторидом урана и требуют лишь незначительных изменений в центрифугах или диффузионных мембранах. Если подать на вход 60%  $^{239}\text{Pu}$  /25%  $^{240}\text{Pu}$  плутоний, задаться выходом 94%  $^{239}\text{Pu}$  и терять в шлаке половину поступающего с сырьем  $^{239}\text{Pu}$ , то потребуется мощность всего в 2 МПП-кг (напомним, что производительность выражается в единицах массы переработанного вещества (МПП) за единицу времени, например МПП-кг/год/год) для производства 1 кг оружейного плутония. Это менее 1 % от ресурсов, нужных для производства 1 кг 90%  $^{235}\text{U}$  из природного урана. Технология AVLIS (испарение с использованием лазера) создает возможность недорогого разделения и может использоваться с реакторным плутонием в качестве исходного материала.

Таким образом, хранение реакторного плутония должно проводиться под постоянной вооружённой охраной. И в течение весьма продолжительного времени – несколько столетий. Занятие весьма дорогое, и не гарантирующее, что самопроизвольно улучшивший свой изотопный состав при хранении плутоний не попадёт в руки опытного и активного террориста.

Поэтому длительное хранение такого материала – не решение проблемы плутония. Его надо или денатурировать, замуровать в стекло и захоронить (американский вариант), или превратить в смешанное уран-плутониевое топливо и сжечь в реакторе (франко-российский вариант).