

16. УРАНОВЫЙ ТОПЛИВНЫЙ ЦИКЛ

16.1 Современные ядерные топливные циклы

Помимо оружейного применения урана, важное значение имеет использование урана в энергетике и на транспорте (в основном – морском).

Ядерный топливный цикл (ядерный реакторный цикл) - совокупность технологических процессов, связанных с получением энергии на ядерных установках (в ядерных реакторах).

В зависимости от ядерного горючего возможно осуществление трех типов циклов: 1) урановый топливный цикл, в котором делящимся материалом служит уран-235, а фертильным материалом (воспроизводящим, сырьевым) – уран-238. Урановое горючее изготавливают из природного урана (0,72% ^{235}U), низкообогащенного урана (1-5% ^{235}U) или высокообогащенного урана (до 93% ^{235}U). Первые два вида топлива используют в реакторах на тепловых нейтронах, третий - в реакторах на быстрых нейтронах, работающих в конвертерном режиме. 2) Уран-плутониевый топливный цикл. Горючее для этого цикла состоит из природного или обедненного (0,2-0,3% ^{235}U) урана с добавкой ^{239}Pu в количестве, эквивалентном соответствующему обогащению по ^{235}U . Это горючее может быть использовано как в реакторах на тепловых нейтронах, так и в реакторах на быстрых нейтронах. Сырьевым материалом здесь также служит ^{238}U . 3) Уран-ториевый топливный цикл. Делящийся материал - ^{235}U или ^{233}U , сырьевой - ^{232}Th . В промышленном масштабе используется в основном урановое горючее.

Все способы производства топлива для ядерных энергетических реакторов, подготовки его к использованию и утилизации отработанного топлива вместе взятые составляют топливный цикл. Уже сам термин «топливный цикл» предполагает, что отработанное ядерное топливо может повторно использоваться на ядерных установках в свежих тепловыделяющих элементах после специальной обработки. Таким образом, ядерный топливный цикл описывает путь, по которому топливо попадает в ядерный реактор, и по которому его покидает.

В настоящее время в ядерной энергетике наибольшее распространение получил урановый цикл, который точнее называть уран-плутоний-нептуниевым ядерно-энергетическим топливным циклом, поскольку именно эти элементы (равно как некоторые другие важные трансплутониевые нуклиды) нарабатываются в реакторах на урановом топливе. Любой ядерный топливно-энергетический цикл подразделяется на два вида: **открытый**, нацеленный на захоронение отработанного топлива и радиоактивных отходов, и **закрытый**, предусматривающий достаточно полную переработку отработанного топлива и других отходов предприятий ядерной индустрии с целью выделения ценных элементов.

В данной главе мы коротко рассмотрим основные особенности конкретных типов ядерного-топливного цикла с точки зрения их технологической, экономической и экологической целесообразности, а также с учетом актуальной проблемы нераспространения ядерного оружия.

Ядерный топливный цикл (*Nuclear fuel cycle*) - комплекс мероприятий для обеспечения функционирования ядерных реакторов, осуществляемых в системе предприятий, связанных между собой потоком ядерного материала и включающих урановые рудники, заводы по переработке урановой руды, конверсии урана, изотопному обогащению и изготовлению топлива, ядерные реакторы, заводы по переработке отработанного горючего, хранилища отработанного топлива, заводы по переработке отработанного топлива и промежуточные хранилища и могильники радиоактивных отходов, полигоны для захоронения отходов.



Рис. 243. Основные этапы обращения с ядерным топливом

Применительно к урану, ядерный топливный цикл (ЯТЦ) – совокупность технологических операций на предприятиях атомной энергетики, включающих добычу урановой руды, изготовление уранового концентрата (в форме октооксида урана (III) U_3O_8 или диураната натрия $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7$); конверсию урана (производство гексафторида урана UF_6 и его обогащение ^{235}U); изготовление топлива (металлического урана, оксидов или нитридов урана, керамики), тепловыделяющих элементов (ТВЭЛов) и топливных сборок (ТВС) для ядерных реакторов; сжигание уранового топлива в атомных реакторах с целью производства тепловой и электроэнергии; переработку (хранение или захоронение) отработанного ядерного топлива (ОЯТ), наработку радионуклидов для науки, промышленности и медицины, перевозку (транспорт) радионуклидов, переработку радиоактивных отходов, хранение, захоронение или трансмутацию (уничтожение) радиоактивных отходов, снятие с эксплуатации ядерных реакторов, демонтаж реакторов АЭС, АПЛ и других объектов ядерной индустрии, дезактивация и рекультивация местности.

За исключением последнего этапа, ядерный топливный цикл проходит те же стадии, что и производство оружейного урана. Различие состоит в степени изотопного обогащения урана и в степени очистки. Кроме того, в топливе уран содержится в более разнообразных химических формах, чем в

оружейных компонентах. Дореакторные стадии мы рассмотрели в предыдущих главах и здесь мы на них останавливаться не будем. Исключение сделаем только для ТВЭЛов энергетических реакторов, поскольку они отличаются от ТВЭЛов оружейных реакторов.

Для атомной энергетики различают два вида ЯТЦ – открытый (разомкнутый) и закрытый (замкнутый). **Замкнутый ядерный топливный цикл** - ядерный топливный цикл, в котором отработавшее ядерное топливо, выгруженное из реактора, перерабатывается для извлечения урана и плутония для повторного изготовления ядерного топлива.

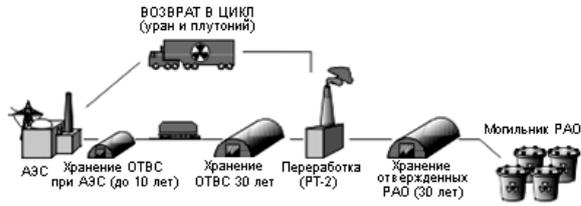


Рис. 244. Закрытый ядерный топливный цикл.

А) Блок-схема замкнутого ЯТЦ (РТ-2 – завод по переработке ТВЭЛов любых реакторов, который собираются построить в России, ОТСВ – отработанные тепловыделяющие сборки)

В замкнутом ЯТЦ на радиохимических предприятиях осуществляется переработка отработанного ядерного топлива (ОЯТ) с целью возврата в цикл невыгоревшего ^{235}U , почти всей массы ^{238}U , а также изотопов энергетического плутония, образовавшихся при работе ядерного реактора (Рис. 211). Из ядерного топлива выделяют ценные компоненты, которые используют для изготовления нового ядерного горючего. При этом активность отходов, подлежащих окончательному захоронению, минимизируется. Замкнутый ЯТЦ второго типа предполагает утилизацию энергетического и оружейного плутония посредством развития производства смешанного уран-плутониевого топлива (МОКС-топлива) из диоксидов урана и плутония (UO_2 , PuO_2) для реакторов на быстрых и тепловых нейтронах. Повышение эффективности использования ядерного топлива и возможность вовлечения в ЯТЦ плутония как ценного энергоносителя являются основными аргументами в пользу замкнутого цикла. В замкнутом топливном цикле ядерное топливо урановых реакторов рассматривается как важнейший сырьевой компонент, т.к. ОЯТ содержит значительное количество делящихся изотопов, возвращение которых в ЯТЦ после переработки расширит сырьевую базу ядерной энергетики.

После удаления топлива из реактора, топливные стержни проходят обработку на перерабатывающих заводах, где они дробятся и растворяются в кислоте. Из отработанного топлива выделяют два ценных продукта: плутоний и неиспользованный уран. 3% топлива остается в качестве высокоактивных отходов.

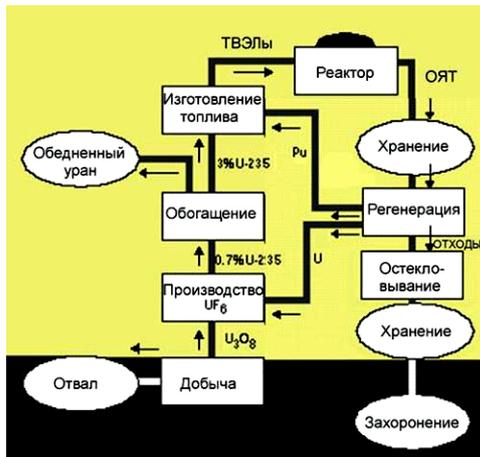


Рис.245. Замкнутый урановый топливный цикл.

После остекловывания эти высокорadioактивные материалы подлежат длительному захоронению. 96% урана, который используется в реакторе, остается в исчерпанном топливе (в реакторе расходуется не более 1% ^{235}U). Оставшаяся часть топлива преобразуется в теплоту и радиоактивные продукты распада, а некоторая часть в плутоний и другие актиниды. Следовательно, переработка отработанного ядерного топлива может иметь некоторые экономические выгоды при восстановлении неиспользованного урана и плутония, который был произведен в

реакторе.

Это уменьшает объем высокорadioактивных и опасных отходов, которые необходимо надлежащим образом хранить, что также имеет определенную экономическую целесообразность. В отработанном ядерном топливе содержится примерно 1% плутония. Это очень хорошее ядерное топливо, которое не нуждается ни в каком процессе обогащения, оно может быть смешано с обедненным ураном (так называемое смешанное оксидное топливо или МОХ-топливо) и поставляться в виде свежих топливных сборок для загрузки в реакторы. Его можно использовать для загрузки в будущие реакторы-размножители.



Рис. 246. Разомкнутый (открытый) ядерный топливный цикл

Восстановленный уран может возвращаться на дополнительное обогащение, или поставляться в виде свежего топлива для действующих реакторов. Закрытый топливный цикл эффективной системой максимального использования урана без его дополнительной добычи на рудниках (в энергетических единицах экономия составляет, примерно, 30%).

Однако, подобные схемы переработки отработанного ядерного топлива не получили широкого распространения в значительной степени из-за довольно низких цен на уран.

В разомкнутом (открытом) ЯТЦ отработанное ядерное топливо считается высокоактивными радиоактивными отходами и вместе с остаточными делящимися изотопами исключается из дальнейшего использования (Рис. 247 и 248) – поступает на хранение или захоронение. Поэтому разомкнутый ЯТЦ характеризуется низкой эффективностью использования природного урана (до 1%).

Незамкнутый ядерный топливный цикл (Once-through fuel cycle) - ядерный топливный цикл, в котором отработавшее ядерное топливо, выгруженное из реактора, не перерабатывается и рассматривается как радиоактивные отходы.

В некоторых странах проблема переработки отработанного ядерного топлива связана не столько с энергетическими проблемами, сколько с необходимостью решения важных военных задач, хотя возможность наработки оружейных нуклидов для «хорошей» атомной бомбы весьма проблематична. ²³⁹Pu (наряду с другими изотопами плутония) образуется в ядерных реакторах из урана. Параллельно получается большое количество высокорadioактивных продуктов деления урана и нептуний. Задача переработки уранового горючего, в котором накопился плутоний и продукты деления, сводится к отделению плутония и регенерации урана.



Рис. 247. Схема этапов в замкнутом ЯТЦ

Расширенное воспроизводство ядерного топлива (Nuclear fuel breeding) - производство ядерного топлива с коэффициентом конверсии, большим 1. В этом случае, делящегося материала нарабатывается больше, чем "сгорает" в реакторе.

В течение последних 20 лет в России осуществлялась (на заводе РТ-1) радиохимическая переработка отработанного ядерного топлива АЭС с реакторами типа ВВЭР-440, исследовательских реакторов и реакторов судовых энергетических установок гражданского и военно-морского атомных флотов. Однако переработка ОЯТ реакторов типа РБМК и ВВЭР-1000 (т.е. основных реакторов энергетики России) не проводилась, т.к. считается экономически нецелесообразной, хотя технически это возможно. В целом для российской ядерной энергетики характерно наличие разомкнутого ЯТЦ. Строится завод РТ-2, на котором предполагается переработка отработанных ТВЭЛов любых

энергетических реакторов России, проводятся работы по переводу реакторов АЭС на уран-плутониевое топливо. Продолжается разработка реактора-наработчика топлива на быстрых нейтронах на базе реактора типа БН в целях замыкания ядерного топливного цикла (включая эффективное сжигание оружейного плутония).

Разные страны придерживаются разных национальных программ, предусматривающих либо переработку ОЯТ, либо захоронение, либо «отложенное решение», то есть длительное хранение отработанных ТВЭЛов. Безопасность и относительная простота «сухого» хранения позволяют держать «открытыми» оба варианта обращения с ОЯТ.

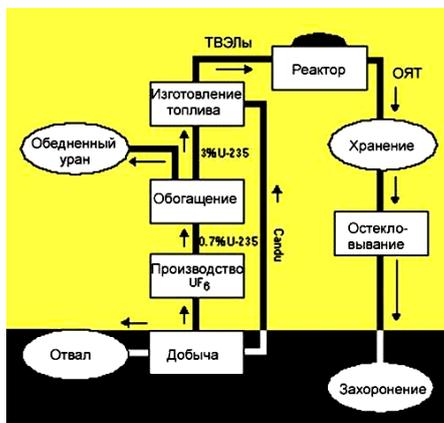


Рис. 248. Открытый урановый топливный цикл (включая реактор Канду, работающий на природном уране).

Из 34 стран в настоящее время лишь 5 государств (Индия, Япония, Англия, Россия, Франция) перерабатывают ОЯТ на своих предприятиях. Большинство стран, включая Канаду, Финляндию, ФРГ, Италию, Нидерланды, Швецию, Швейцарию, Испанию, США и КНР, предпочитают либо хранить ОЯТ, пока не будет найден эффективных метод переработки, либо передают ОЯТ на переработку другим странам. Во Франции последовательно реализуется концепция замкнутого ЯТЦ реакторов PWR. Ядерная энергетика Франции ежегодно нарабатывает 1100 тонн ОЯТ. Большая его часть перерабатывается. Регенерированный уран и плутоний используется в реакторах PWR, их объемы постепенно увеличиваются. Поскольку в результате радиохимической переработки отработанного ядерного топлива образуется большой объем РАО, то большинство стран ориентируются на долговременное (до 50 лет) хранение ОЯТ, что дает возможность подготовиться к окончательному захоронению, но не исключает возможности его переработки в дальнейшем. Так, в Швеции принято решение о закрытии ядерной энергетике к 2010 и последовательной реализации концепции открытого ЯТЦ. Ядерная энергетика Швеции ежегодно нарабатывает 250 тонн ОЯТ. ОЯТ накапливаются в бетонном бассейне на глубине 30 м в центральном хранилище для всех АЭС. В Германии реализуется вариант замкнутого ЯТЦ на основе реакторов LWR. ОЯТ немецких АЭС перерабатывается на мощностях COGEMA (Франция) и BNFL (Великобритания). Выделенный при переработке плутоний в виде МОКС-топлива (т.е. уран-плутониевого топлива) загружается в немецкие реакторы.

Франция, Германия, Великобритания, Россия и Япония развивают технологии закрытого топливного цикла для окисных топлив, а в Европе 35 реакторов способны частично использовать МОХ-топливо (от 20 до 50%), содержащего до 7% пригодного для реакторов плутония.

В настоящее время лишь Великобритания (компания BNFL – с 1964), Франция (компания COGEMA – с 1966, BNFL и COGEMA) и Россия перерабатывают ОЯТ других государств. Зарубежные компании расширяют производственные мощности. BNFL имеет заказы на переработку 3700 тонн ОЯТ с АЭС в Великобритании и 6000 тонн ОЯТ из других стран. COGEMA должна переработать 8 тыс. тонн французского и 16 тыс. тонн чужого ОЯТ. В Японии вводится в эксплуатацию завод по переработке ОЯТ производительностью 1200 тонн в год. В течение 20 лет в Россию планируется ввести из-за рубежа 20 тыс. тонн ОЯТ.

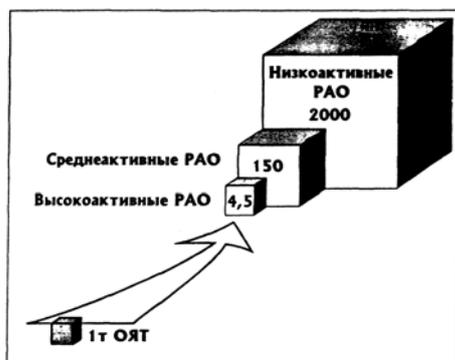


Рис. 249. Увеличение объема РАО в ходе переработки ОЯТ (в м³)

Наиболее последовательно замкнутый ЯТЦ осуществляет Франция. Согласно французской точки зрения, переработка ОЯТ в сочетании с возвратом в топливный цикл плутония и вводом реакторов на быстрых нейтронах обеспечат сохранение запасов природного урана. Распределение урана по всему миру гарантирует геополитическую стабильность, является фактором устойчивого развития, однако не решает проблему долгосрочного обеспечения энергетическими ресурсами. Дело в том, что в современных легководных реакторах сжигается только 1% содержащегося в топливе природного урана, а остальные 99% либо отправляются на промежуточное хранение, либо утилизируются как отходы. Если не исправить эту ситуацию, то в условиях растущих потребностей в электроэнергии, запасы дешёвого урана иссякнут. Облученное ядерное топливо - это не отходы, в нем содержится огромное количество ценных энергетических продуктов. Переработка ОЯТ важна также и с точки зрения утилизации радиоактивных отходов, поскольку позволяет снизить их радиотоксичность.

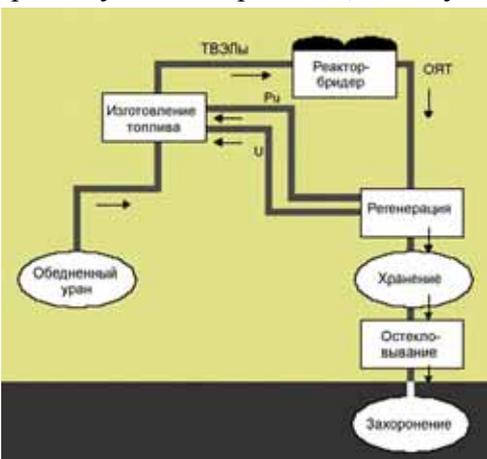


Рис. 250. Ядерный топливный цикл на быстром реакторе – бридере.

Эта точка зрения подтверждается деятельностью французских радиохимических заводов. Так, за последние 15 лет на перерабатывающем предприятии на мысе Аг (Франция) было переработано 15 тыс. тонн ОЯТ. Уже сегодня осуществим возврат в топливный цикл легководных реакторов плутония, причем не только в форме МОКС - топлива. Использование новых достаточно экономичных технологий позволяет постепенно увеличить количество

сжигаемого плутония и в течение 20-30 лет стабилизировать его запасы. Кроме того, следуя этой стратегии, можно подготовиться переходу к эксплуатации «быстрых» реакторов.

Любой ядерный топливный цикл – дорогостоящее и опасное производство. Выбор оптимального варианта ЯТЦ – серьезная проблема для страны и мира в целом. Поэтому сравнительному анализу перспектив открытого и закрытого вариантов ЯТЦ уделяют большое внимание. Варианты сравнивали по экономическим и экологическим критериям, а также по критерию нераспространения ядерного оружия. Если ЯТЦ разделить на два этапа: 1) дореакторная часть и 2) послереакторная часть, то по первому этапу особых разногласий нет, а по второму – имеется большой разброс мнений.

К плюсам замкнутого ЯТЦ относят возврат в энергетику делящихся материалов - урана и плутония, что обеспечит энергетику топливом на тысячелетие при любом росте потребностей. Кроме того, объёмы радиоактивных отходов, предназначенных для вечного захоронения, будут гораздо меньше после переработки ОЯТ, чем объёмы отработавших тепловыделяющих сборок без их переработки. Но схема открытого варианта ЯТЦ значительно короче и проще. Отсутствует основной источник загрязнения окружающей среды радионуклидами - радиохимический завод, т. е. отсутствует наиболее радиационно опасное производство. Радиоактивные вещества постоянно находятся в твёрдом состоянии в герметичной упаковке, не происходит их «размазывание» по огромным площадям в виде растворов, газов при «штатных» и нештатных выбросах и т.д. Исчезают все проблемы, связанные со строительством и выводом из эксплуатации радиохимического завода: финансовые и материальные затраты на строительство и эксплуатацию завода, в том числе на зарплату, электро-, тепло-, водоснабжение, на огромное количество защитного оборудования и техники, химических реагентов, агрессивных, ядовитых, горючих и взрывоопасных веществ (кислот, щелочей, органических жидкостей) и т.д. Исчезает необходимость закачивания под землю трития, устраняются проблемы с утилизацией йода, жидких и газообразных отходов, выбросов и т.д. Сроки контролируемого хранения ОЯТ (50–60 лет) оказываются такими же, как и суммарные сроки контролируемого хранения отверждённых высокоактивных отходов в первом варианте. Правда, потребуется сооружение дополнительного хранилища для контролируемого хранения отработанного топлива. И, наконец, «вечное» захоронение отработанного топлива не означает полное и вечное исключение из оборота ядерных материалов. Ибо «могильник» - это искусственное компактное месторождение урана и плутония, к «разработке» которого всегда можно вернуться при необходимости - когда появятся новые принципы подхода к использованию ядерных материалов, новые технологии по переработке ОЯТ, снизится активность осколочных радионуклидов и т.д.

Завершающая часть ядерного топливного цикла (Nuclear fuel cycle back-end) - деятельность, включающая транспортировку, хранение, переработку отработавшего ядерного топлива, обращение с радиоактивными отходами и их захоронение.

К недостаткам открытого цикла относят большую стоимость долговременных хранилищ и полигонов для захоронения, трудности обеспечения долговременной изоляции ТВС от биосферы (существует опасность освобождения радионуклидов в случае разрушения ТВЭЛов при хранении), необходимость постоянной вооруженной охраны захоронений (возможность хищения делящихся нуклидов из захоронений террористами также представляется реальной).

Табл. 60. иллюстрирует особенности подходов разных стран к проблеме переработки отработанного ядерного топлива.

Табл. 60. Обращение с отработанным ядерным топливом в странах мира (2000)

| Страна | Принцип хранения и переработки | Тип хранилища |
|----------------|---|--|
| Аргентина | Хранение не менее 10 лет. затем переработка и захоронение остеклованных отходов в глубокие геологические формации | - |
| Бельгия | Хранение в бассейнах выдержки. Переработка и захоронение остеклованных отходов после 50—75-летнего хранения | - |
| Бразилия | Хранение, затем переработка и захоронение остеклованных отходов в глубокие геологические формации | - |
| Великобритания | Хранение в бассейнах выдержки при АЭС, последующая переработка. В проекте – строительство центрального хранилища ОЯТ усовершенствованных газоохлаждаемых реакторов. Захоронение остеклованных высокоактивных отходов после 50-летней выдержки в глубокие геологические формации | 3 модульных сухих хранилища на 83 т ОЯТ реакторов. Теплоотвод осуществляется естественной конвекцией |
| Индия | Хранение в бассейнах выдержки, последующая переработка. Остеклованные высокоактивные отходы | - |

| | | |
|--------------------|--|--|
| | захораниваются в глубокие геологические формации | |
| Испания | Хранение в бассейнах выдержки на АЭС 10-20 лет, затем в сухом хранилище 10-20 лет. В проекте - прямое захоронение в геологические формации | - |
| Италия | Переработка в других странах с возвратом высокоактивных отходов для захоронения в геологические формации после 50-летнего хранения. В проекте—сухое хранилище с компактным размещением ТВС и демонстрационная установка | Модульный бетонный контейнер при АЭС на 12 ТВС реактора с водой под давлением |
| Канада | Хранение в бассейнах выдержки и сухих бетонных контейнерах около 50 лет. затем подготовка к захоронению в геологические формации. Химическая переработка — в случае экономической целесообразности | 4 бетонных контейнера для «сухого» хранения 370 т урана |
| Корея (Респ Корея) | Промежуточное хранение, затем 50-летнее хранение в централизованном сухом хранилище .В настоящее время отработанные ТВС находятся в хранилище с тесной решеткой | - |
| Нидерланды | Хранение в бассейнах выдержки переработка в других странах с возвратом остеклованных отходов для захоронения в геологические формации после 50-100 лет выдержки | Проектируется сухое хранилище на 5 тыс т всех видов РАО, в т.ч. ОЯТ |
| Россия | Хранение до 3 лет при реакторах, до 10 лет в отдельно стоящем хранилище на территории АЭС. затем частичная переработка | Хранилище ОЯТ реакторов типа ВВЭР-1000 объемом боте 6 тыс. т ОЯТ (Горно-химический комбинат) |
| США | Хранение в бассейнах выдержки, сухих хранилищах или контейнерах не менее 5 лет. в проекте — захоронение в геологические формации | 4 контейнера при АЭС, 3 сухих хранилища при АЭС |
| Тайвань | Промежуточное хранение при АЭС. затем 50-летнее хранение в центральном хранилище в сухих защитных контейнерах. В настоящее время отработанные ТВС помещаются в хранилище с тесной решеткой | - |
| Финляндия | Хранение в бассейнах выдержки на АЭС не менее 5 лет, затем возврат зарубежным поставщикам или передача другим странам для переработки и возможного захоронения Не исключено захоронение в геологические формации на территории страны. | - |
| Франция | Хранение не более года, затем переработка Остеклованные отходы выдерживаются не менее 20 лет, затем захораниваются в глубокие геологические формации | Хранилище на 150-200 т урана и бассейн –хранилище |
| ФРГ | Хранение в бассейнах выдержки и сухих контейнерах при АЭС 5-10 лет, затем переработка и захоронение остеклованных отходов в геологические формации | 3 хранилища, возможно, в будущем хранение ОЯТ в сухих контейнерах. |
| Швейцария | Передача в другие страны на переработку, затем возврат высокоактивных отходов для захоронения В настоящее время отработанные ТВС находятся в хранилище с тесной решеткой | Испытывается сухое хранилище |
| Швеция | Хранение полгода на площадке АЭС. Затем в центральном хранилище вне АЭС 40 лет с последующим захоронением в геологические формации | Центральное хранилище на 3 тыс т урана (в проекте – увеличение объема до 9 тыс т урана) близ АЭС |
| Япония | Передача в другие страны на переработку (до создания собственных заводов). В проекте — создание центрального промежуточного хранилища, захоронение высокоактивных отходов в геологические формации после 30-60 лет хранения | Испытывается сухое хранилище, совершенствуется сухое хранилище-контейнер |

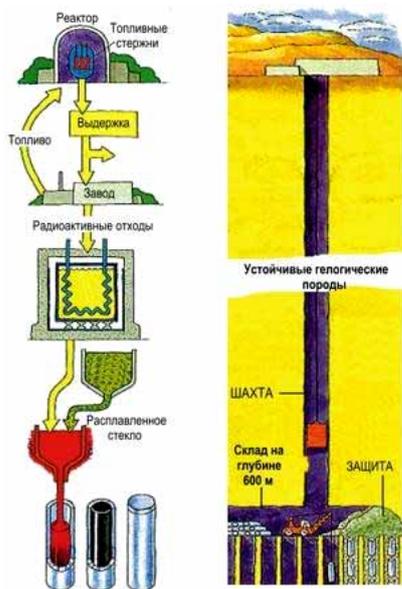
Табл. 61. Современные и прогнозируемые мощности по переработке ОЯТ (тТМ/год).

| Страна | Тип реактора | Годы | | | | | | |
|----------------|--------------|------|------|------|------|------|------|------|
| | | 1998 | 1999 | 2000 | 2005 | 2010 | 2015 | 2020 |
| Китай | LWR | | | | 25 | 25 | 25 | 25 |
| Франция | LWR | 1600 | 1600 | 1600 | 1600 | 1600 | 1600 | 1600 |
| Индия | PHWR | 60 | 160 | 160 | 460 | 460 | 460 | 460 |
| | Исс.реактор | 50 | 50 | 50 | 50 | 50 | 50 | 50 |
| Япония | LWR | 100 | 100 | 100 | 620 | 900 | 900 | 900 |
| Россия | LWR,FBR | 400 | 400 | 400 | 400 | 400 | 400 | 400 |
| | FBR | 10 | 10 | 10 | 10 | | | |
| | GGR/магнокс | 1500 | 1500 | 1500 | 1500 | 1500 | | |
| Великобритания | LWR/AGR | 1200 | 1200 | 1200 | 1200 | 1200 | 1200 | 1200 |

На данном этапе экономически оба варианта обращения с ОЯТ - переработка с последующим вечным хранением радиоактивных отходов или вечное хранение ОЯТ без переработки - примерно равноценны. Поэтому при выборе варианта ЯТЦ на первый план выходят вопросы экологической, энергетической, социальной, медицинской целесообразности осуществления замкнутого или открытого ЯТЦ.

Какому топливному циклу будет отдано предпочтение в конкретной стране, зависит от критериев, которые будут использоваться при оценке вариантов решения проблемы локализации уже накопленных и будущих отходов (включая ОЯТ). Этих критериев пять: степень риска для здоровья людей и окружающей среды; стоимость переработки ОЯТ, строительства хранилищ и т. п.; соответствие законодательству страны по ввозу ОЯТ из-за рубежа; соответствие целям нераспространения ядерного оружия и ядерных материалов; информированность населения.

Рис. 251. Хранение и захоронение ядерных отходов.



Химическая переработка ОЯТ проектируется исходя из условий безопасности. Сопоставляя степени риска при внутренней аварии и внешнем воздействии на предприятиях ЯТЦ, специалисты оценивают химическую регенерацию ОЯТ как сопряженную с наибольшим риском из всех стадий цикла. Современный уровень химической технологии регенерации ОЯТ не отвечает требованиям экологической безопасности и отработанные ТВЭЛы целесообразно целиком закладывать на длительное хранение. Кроме того, переработка ОЯТ связана с образованием значительного количества радиоактивных отходов.

В России до 2020 ядерная энергетика будет развиваться в основном в разомкнутом (открытом) топливном цикле, поскольку, учитывая значительные запасы уранового сырья России, нецелесообразно с экономической точки зрения расширять переработку отработанного топлива. Сейчас идет подготовка технической и производственной базы для перехода к замкнутому ядерному топливному циклу. Постепенный переход на закрытый вариант ЯТЦ диктуется не только внутренней потребностью России, но и необходимостью переработки ОЯТ зарубежных АЭС. Общий объем планируемого ввоза на переработку и хранение отработанного ядерного топлива (ОЯТ) с зарубежных объектов использования атомной энергетики составит 20000 тонн. Совокупную мощность предприятий России по переработке ОЯТ к 2010 можно оценить в 1900 т/год 400 т/год (РТ-1) и 1500 т/год (при пуске завода РТ-2).

Отработавшее ядерное топливо, перерабатываемое на предприятиях топливного цикла России, представляет собой:

- ТВС, отработавшие свой ресурс в энергетических реакторах типа ВВЭР-440, БН-350, БН-600 или в транспортных ядерных установках;
- ТВЭЛы промышленных реакторов, содержащие уран, обогащенный на 90% изотопом ^{235}U ;
- ядерное топливо промышленных реакторов в виде ТВЭЛов (блоков) на основе металлического урана природного обогащения, предназначенное для наработки плутония.

Единственный в России завод по переработке отработанного ядерного топлива РТ-1 действует на территории комплекса, ранее производившего оружейный плутоний (Челябинск-65). Завод РТ-1 перерабатывает в год 200 т ТВС (проектная мощностью 400 т тяжелого металла в год). Он является компонентом замкнутого ЯТЦ. Имеющаяся здесь технология обеспечивает переработку ОЯТ российских

АЭС с реакторами типа ВВЭР-440, БН-600, БН-350 (но не ВВЭР-1000!), а также отработанное топливо ядерных транспортных установок атомного флота и исследовательских реакторов. Регенерированный уран используют для производства топлива реакторов типа РБМК, а плутоний (к 1995 его количество составило 30 т) складывается.

16.2 Энергетические атомные реакторы

В настоящее время основной промышленный способ утилизации ядерной энергии в мирных целях основан на цепной самоподдерживающейся реакции деления некоторых изотопов урана или плутония под действием нейтронов. На практике перевод ядерной энергии в тепловую проводят на устройствах, называемых ядерными реакторами.

Ядерный (атомный) реактор - устройство, в активной зоне которого осуществляется контролируемая самоподдерживающаяся цепная реакция деления ядер некоторых тяжелых элементов под действием нейтронов. Эта реакция представляет собой самоподдерживающийся процесс деления ядер изотопов урана (или делящихся изотопов других элементов) под действием элементарных частиц - нейтронов, которые благодаря отсутствию электрического заряда легко проникают в атомные ядра.

Основными элементами атомного энергетического реактора являются активная зона, отражатель нейтронов, окружающий активную зону, стержни-поглотители нейтронов, обеспечивающие управление реактором (поддержание энергии на нужном уровне и обеспечение равномерности ее распределения по объему реактора) и аварийную защиту, биологическая защита реактора. Реактор заключен в герметичный металлический корпус (здесь же находится теплообменник). Активная зона реактора содержит в себе ядерное горючее (в реакторах на тепловых нейтронах активная зона содержит также замедлитель нейтронов и некоторые другие компоненты). В ней протекает управляемая цепная ядерная реакция и выделяется энергия деления (в основном – в виде тепловой). Выделенная энергия отводится с помощью теплоносителя. При необходимости, тепловая энергия превращается в электрическую либо с помощью тепловых преобразователей, смонтированных непосредственно в реактор, или с помощью специального теплоносителя, уносящего тепло к внешнему электрогенератору.

Основные типы энергетических ядерных реакторов:

- электрические ядерные реакторы АЭС (используются для выработки тепловой энергии, преобразующейся с помощью турбогенераторов в электрическую)
- электроэнергетические (термоэлектрические или термоэмиссионные) ядерные реакторы (с безмашинным преобразованием тепловой энергии в электрическую);
- высокотемпературные теплоэнергетические ядерные реакторы (производят высокопотенциальную тепловую энергию, непосредственно используемую в химической или металлургической промышленности для осуществления различных химических реакций, опреснения морской воды или получения энергоносителей, например, водорода);
- теплоэнергетические ядерные реакторы (производят тепловую энергию на атомных станциях теплоснабжения, предназначены для промышленной и бытовой теплофикации)

К энергетическим реакторам относятся также судовые, или транспортные ядерные реакторы; реакторы ядерных ракетных двигателей; двухцелевые электроэнергетические реакторы - размножители, вырабатывающие тепловую энергию и ядерные материалы, которые могут быть использованы для производства нового ядерного топлива; термоэмиссионные реакторы-преобразователи космических ядерно-энергетических установок (в том числе – генерирующих лазерное излучение).

В большинстве энергетических реакторов в качестве теплоносителя используется вода, либо под давлением, либо кипящая. Упомянем основные из них:

Реактор с водой под давлением. В таких реакторах замедлителем и теплоносителем служит вода. Нагретая вода перекачивается под давлением в теплообменник, где тепло передается воде второго контура, в котором вырабатывается пар, вращающий турбину.

Кипящий реактор. В таком реакторе кипение воды происходит непосредственно в активной зоне реактора и образующийся пар поступает в турбину. В большинстве кипящих реакторов вода используется и как замедлитель, но иногда применяется графитовый замедлитель.

Реактор с жидкометаллическим охлаждением. В таком реакторе для переноса теплоты, выделяющейся в процессе деления в реакторе, используется жидкий металл, циркулирующий по трубам. Почти во всех реакторах этого типа теплоносителем служит натрий. Пар, образующийся на другой стороне труб первого контура, подается на обычную турбину. В реакторе с жидкометаллическим охлаждением могут использоваться нейтроны со сравнительно высокой энергией (реактор на быстрых нейтронах) либо нейтроны, замедленные в графите или оксиде бериллия. В качестве реакторов-размножителей более предпочтительны реакторы на быстрых нейтронах с жидкометаллическим охлаждением, поскольку в этом случае отсутствуют потери нейтронов, связанные с замедлением.

Газоохлаждаемый реактор. В таком реакторе теплота, выделяющаяся в процессе деления, переносится в парогенератор газом – CO₂ или гелием. Замедлителем нейтронов служит графит. Газоохлаждаемый реактор может работать при гораздо более высоких температурах, нежели реактор с жидким теплоносителем, а потому пригоден для системы промышленного теплоснабжения и для электростанций с высоким КПД. Газоохлаждаемые реакторы отличаются повышенной безопасностью в работе, в частности отсутствием риска расплавления реактора.

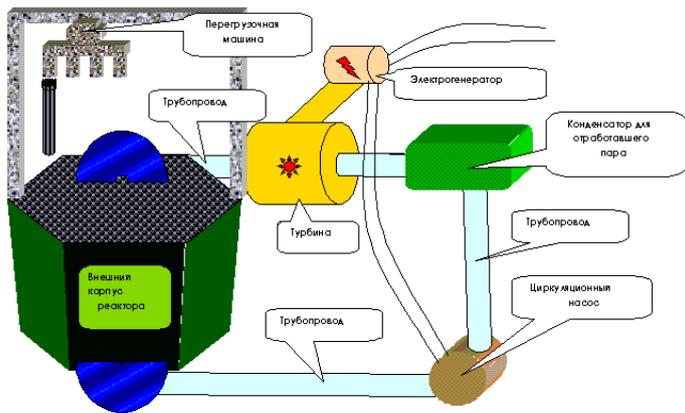
Гомогенные реакторы. В активной зоне гомогенных реакторов используется однородная жидкость, содержащая делящийся изотоп урана. Жидкость обычно представляет собой расплавленное соединение урана. Она закачивается в большой сферический сосуд, работающий под давлением, где в критической массе происходит цепная реакция деления. Затем жидкость подается в парогенератор. Гомогенные реакторы не получили распространения из-за конструктивных и технологических трудностей.

16.2.1 Уран-графитовый реактор канального типа

Это - бескорпусной реактор с графитовым замедлителем, теплоноситель - 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).

РБМК - тепловой одноконтурный энергетический реактор с кипением теплоносителя в каналах и прямой подачей насыщенного пара в турбины. В роли теплоносителя выступает "легкая" вода, а замедлителем является графит.

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).

Рис. 252 Схема АЭС с одноконтурным канальным реактором типа РБМК.

В одноконтурном канальном энергетическом уран-графитовом реакторе вода при прохождении через активную зону нагревается до температуры кипения. В верхней части активной зоны образуется пар (именно кипение воды в активной зоне реактора принципиально

отличает РБМК от ВВЭР). 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 деаэратор, 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. Этот цилиндр пронизывают 1693 топливных канала, представляющих собой трубки из сплава циркония диаметром 88 мм и толщиной 4 мм. В топливном канале устанавливается тепловыделяющая сборка (ТВС). Активная зона реактора - вертикальный цилиндр диаметром 11,8 метров и высотой 7 метров. По периферии активной зоны, а также сверху и снизу расположен боковой отражатель - сплошная графитовая кладка толщиной 0,65 метра. Собственно активная зона собрана из графитовых шестигранных колонн (всего их 2488), составленных из блоков сечением 250х250 мм. По центру каждого блока сквозные отверстия диаметром 114 мм для размещения технологических каналов и стержней управления защитой.

Рис. 253. Реакторный зал установки РБМК-1000.

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.

Схема реактора РБМК-1000 представлена на **Рис. 254**. Система теплосъема реактора одноконтурная - вырабатываемый пар под давлением 65 атм и при температуре 280^0 подается на турбины. Активная зона имеет высоту 7 м, диаметр около 12 м, в ней находится 1690 рабочих каналов, содержащих примерно 200 т урана. Тепловая мощность реактора - 3200 МВт, электрическая - 1000 МВт. Одним из преимуществ РБМК пред ВВЭР, является возможность перегрузки выгоревшего топлива без остановки реактора. Загрузка топлива в реактор осуществляется с помощью разгрузочно-загрузочной машины.

Характерная особенность канальных реакторов - возможность регулирования и контроля расхода теплоносителя по каждому каналу. Это позволяет получать на выходе всех каналов примерно одинаковые теплотехнические параметры и иметь минимально необходимый расход теплоносителя через реактор.

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. 254 Разрез реактора РБМК-100

Основные характеристики реактора РБМК-1000 приведены в **Табл. 62**.

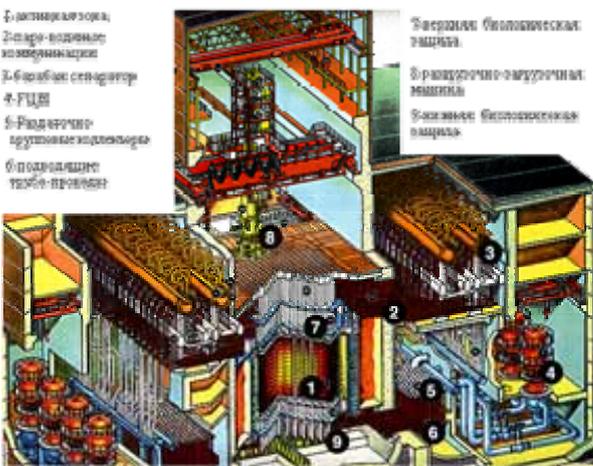


Табл. 62. Основные характеристики реактора РБМК-1000

| 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 |

Первоначально проект РБМК был разработан на электрическую мощность 1000 МВт и тепловую 3200 МВт. Путем интенсификации теплообмена удалось увеличить предельно допустимую мощность канала в 1,5 раза до 4500 кВт при одновременном повышении допустимого паросодержания до нескольких десятков процентов. Необходимая интенсификация теплообмена достигнута благодаря разработке ТВС, в конструкции которой предусмотрены интенсификаторы теплообмена. При увеличении допустимой мощности канала до 4500 кВт тепловая мощность реактора РБМК повышена до 4800 МВт, чему соответствует электрическая мощность 1500 МВт. Такой реактор РБМК-1500 работает на Игналинской АЭС (Литва).

16.2.2 Легко-водный реактор

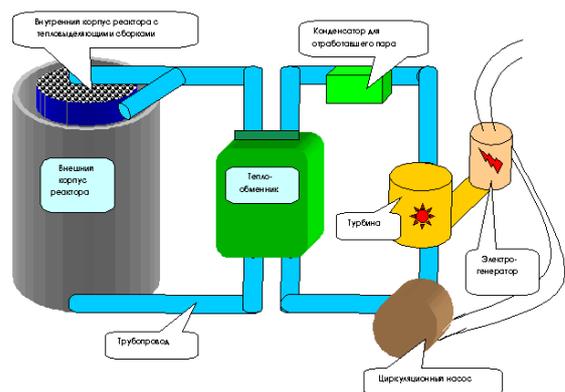
Это - корпусной реактор, использующий в качестве замедлителя и теплоносителя обычную воду. В России это реакторы типа ВВЭР-1000 (водо-водяной энергетический реактор).

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. Ядерные реакторы этого типа установлены на Кольской, Калининской, Балаклавской АЭС (Россия), Запорожской, Ровенской, Хмельницкой, Южно-Украинской АЭС (Украина), также на АЭС Болгарии, Чехии, Финляндии.

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.

Рис. 255. Блок-схема реактора ВВЭР



двухконтурная схема теплоотвода (**Рис. 255**). В первом контуре циркулирует вода под давлением 160 атм при температуре на выходе из реактора 325⁰С. В парогенераторах тепло передается воде второго контура, которая превращается в пар, подаваемый под давлением 60 атм на турбины.

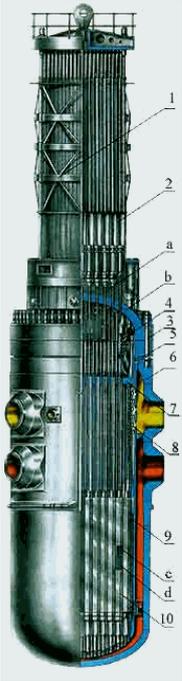
Первый контур, реакторный, полностью изолирован от второго, что уменьшает радиоактивные выбросы в атмосферу. Циркуляционные насосы прокачивают воду через реактор и теплообменник (питание циркуляционных насосов происходит от турбины). Вода реакторного контура находится под повышенным давлением, поэтому, несмотря на ее высокую температуру (293⁰ - на выходе, 267⁰ - на входе в реактор), её закипания не происходит. Вода второго контура находится под обычным давлением, так что в теплообменнике она превращается в пар. В теплообменнике-парогенераторе теплоноситель, циркулирующий по первому контуру, отдает тепло воде второго контура. Пар, генерируемый в парогенераторе, по главным паропроводам второго контура поступает на турбины и, отдавая часть своей энергии на вращение турбины, после чего поступает в конденсатор. Конденсатор, охлаждаемый водой циркуляционного контура (так сказать, третий контур), обеспечивает сбор и конденсацию отработанного пара.

Конденсат, пройдя систему подогревателей, подается снова в теплообменник. Диаметр активной зоны 3,12 м, высота 3,5 м, загрузка природного урана 66 т, обогащение ^{235}U до 3-4%.

В корпусном кипящем реакторе активная зона размещена в высокопрочном, толстостенном стальном баке (Рис. 256). Реактор состоит из корпуса с крышкой и уплотняющими элементами; корзины, в которой размещаются тепловыделяющие сборки (ТВС) с тепловыделяющими элементами (ТВЭЛами); теплового экрана; органов системы управления; тепловой и биологической защиты.

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. 256. 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 — выгорodka; 10 — топливные сборки. а — теплоизоляция реактора; б — крышка реактора; с — 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 находится 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 61 ТВС установлены органы регулирования реактора, каждый из 18 поглощающих элементов).

В Табл. 63 приведены основные технические характеристики ядерного реактора ВВЭР-1000.

Табл. 63 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 ³ /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 |

16.2.3 Реактор на быстрых нейтронах

Fast breeder reactor (ядерный реактор-размножитель на быстрых нейтронах, FBR) - ядерный реактор, в котором основное число делений вызвано быстрыми нейтронами. Не имеет замедлителя. В качестве теплоносителя используется жидкий металл (натрий). В России действует энергетический быстрый реактор БН-600 на Белоярской АЭС.

БН - ядерный реактор, на быстрых нейтронах. Корпусной реактор-размножитель. Теплоносителем первого и второго контуров обычно является натрий. Теплоноситель третьего контура - вода и пар. В быстрых реакторах замедлитель отсутствует.

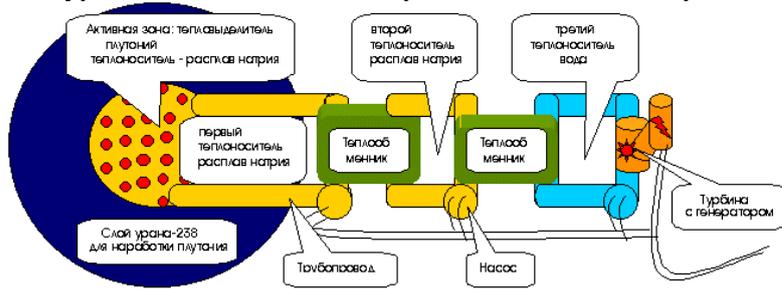


Рис. 257 Блок-схема реактора на быстрых нейтронах

К достоинствам быстрых реакторов можно отнести большую степень выгорания топлива (т.е. большой срок кампании), а к недостаткам – дороговизну, из-за невозможности использования

простейшего теплоносителя – воды, конструкционной сложности, высоких капитальных затрат и высокой стоимости высокообогащенного топлива.

Внедрение реакторов на быстрых нейтронах (быстрых реакторов-размножителей или реакторов-бридеров) в энергетику могло бы почти в 100 раз увеличить эффективность использования урана. Этот тип реакторов может работать на плутониевом топливе, произведенном в обычных реакторах, и эксплуатироваться в замкнутом цикле с собственным заводом по переработке отходов. Каждый такой реактор, загруженный первоначально естественным ураном, очень быстро достигает стадии, когда каждая тонна руды выдает в 60 раз больше энергии, чем в обычном реакторе.

Переход к серийному сооружению АЭС с БН осложнен многими неотработанными в промышленном масштабе технологическими процессами и нерешѐнными вопросами оптимальной организации ядерного топливного цикла, который должен базироваться на плутонии и может быть только замкнутым с очень коротким (до 1 года) временем внешнего цикла (химическая переработка отработавшего топлива и дистанционно управляемое изготовление свежего топлива). Удельные капиталовложения в АЭС с БН в 1,5 - 2 раза превышают удельные капиталовложения в АЭС с реакторами на тепловых нейтронах. Сдерживающее влияние на развитие БН оказывает также пока благополучное положение в мире с ресурсами относительно дешевого урана. В настоящее время реакторы на быстрых нейтронах широкого распространения не получили, в основном из-за сложности конструкции и проблемы получения устойчивых конструкционных материалов.

Быстрые реакторы (БР) позволяют осуществлять: непрерывное производство энергии безопасным и экологически приемлемым способом; трансмутацию радиационно опасных отходов ядерной энергетики, в том числе экологически наиболее опасных долгоживущих актинидов; БР являются также наиболее эффективными потребителями плутония, в том числе экс-оружейного. Надежность БР, высокий КПД, определяющий меньшее тепловое загрязнение; высокий уровень внутренне присущей ядерной безопасности, низкий уровень радиационного воздействия на персонал и окружающую среду подтверждаются многолетним безаварийным опытом эксплуатации быстрых реакторов с натриевым теплоносителем.

БН-600 - реактор на быстрых нейтронах с электрической мощностью 600 МВт. Корпусной реактор - размножитель с интегральной компоновкой оборудования. Тепловая схема блока трехконтурная (Рис.): в первом и втором контурах теплоносителем является натрий, в третьем - вода и пар. Отвод тепла от активной зоны осуществляется тремя независимыми петлями циркуляции, каждая из которых состоит из главного циркуляционного насоса 1 контура, двух промежуточных теплообменников, главного циркуляционного насоса 2 контура с буферной емкостью на входе и с баком аварийного сброса давления, парогенератора, конденсационной турбины со стандартной тепловой схемой и генератора. Использование натриевого теплоносителя обусловило применение ряда таких специальных систем, как: электрообогрев оборудования и трубопроводов, электромагнитных насосов, фильтр-ловушек очистки натрия, диагностики протечек воды в натрий, локализации продуктов взаимодействия натрия с водой при межконтурных неплотностях парогенератора, пожаротушения натрия, отмывки оборудования и ТВС от натрия, очистки инертного защитного газа аргона.

Ядерный реактор БН-600 выполнен с «интегральной» компоновкой оборудования, при которой активная зона и оборудование первого контура (главные циркуляционные насосы и промежуточные теплообменники) размещены в корпусе реактора. Корпус реактора - бак цилиндрической формы с эллиптическим днищем и конической верхней крышкой, выполненной с одиннадцатью горловинами - для поворотной пробки, насосов первого контура, промежуточных теплообменников, элеваторов системы перегрузки тепловыделяющих сборок. Цилиндрическая часть корпуса соединена с днищем путем сварки

через переходное опорное кольцо, на котором установлен опорный пояс, являющийся основой несущей конструкции внутри корпуса реактора; он образует системой радиальных ребер три сливные камеры для натрия, выходящего из теплообменников. На опорном поясе смонтировано все внутрикорпусное оборудование: напорная камера с ТВС активной зоны, зоны воспроизводства и внутреннего хранилища ТВС, первичная радиационная защита, промежуточные теплообменники, главные циркуляционные насосы первого контура. Реактор размещен в бетонной шахте диаметром 15 м. В центре верхней части реактора смонтировано поворотное устройство, состоящее из большой и малой поворотных пробок, эксцентричных друг относительно друга, на малой поворотной пробке смонтирована колонна системы управления защитой, несущая исполнительные механизмы систем управления и защиты, перегрузки ТВС, контроля активной зоны. Корпус реактора заключен в страховочный кожух, исключающий возможность вытекания натрия из реактора даже при разрывах его корпуса.

Активная зона и зона воспроизводства собираются из шестигранных ТВС кассетного типа с размерами «под ключ» 96 мм. Тепловыделяющая сборка состоит из ТВЭлов, кожуха, головки для захвата ТВС при перегрузках и хвостовика, с помощью которого ТВС устанавливается в гнездо напорного коллектора и поддерживается вертикально. ТВЭлы соединены между собой элементами крепления и ограждены чехлом, связывающим в единое целое все части ТВС. ТВЭлы заполнены по длине активной зоны втулками из обогащенной окиси урана (или смеси окиси урана) и окиси плутония, а выше и ниже активной зоны расположены торцевые экраны из брикетов окиси "отвального" урана. ТВЭлы зоны воспроизводства заполнены брикетами из "отвального" урана. Газовые полости над уровнем натрия в реакторе заполнены аргоном.

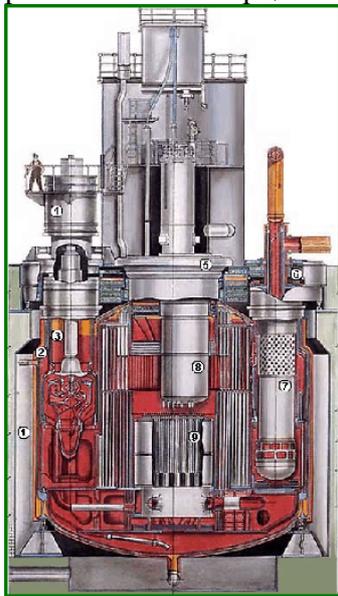
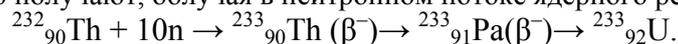


Рис. 258. Конструкция реактора БН-600: 1-Шахта; 2-Корпус; 3-Главный циркуляционный насос 1 контура; 4-Электродвигатель насоса; 5-Большая поворотная пробка; 6-Радиационная защита; 7-Теплообменник "натрий-натрий"; 8-Центральная поворотная колонна с механизмами СУЗ; 9-Активная зона.

Активная зона БН окружена в радиальном и осевом направлениях зонами воспроизводства (бланкетом), заполненными воспроизводящим материалом — обедненным ураном, содержащим 99,7 - 99,8 % ^{238}U (Рис.). Главная же особенность использования уран-плутониевого топлива в БН состоит в том, что в его активной зоне процесс деления ядер быстрыми нейтронами сопровождается большим выходом (на 20 - 27 %) вторичных нейтронов, чем в реакторах на тепловых нейтронах. Это создает основную предпосылку для получения высокого значения коэффициента воспроизводства и обеспечивает расширенное воспроизводство ядерного топлива в реакторах-размножителях.

Замечание. В данном обзоре мы рассматриваем базовый цикл современной ядерной энергетики – уран-плутониевый. Возможны и другие циклы, в которых также участвует уран, но не ^{235}U и ^{238}U , а уран-233 – активный элемент торий-уранового топливного цикла. Его получают, облучая в нейтронном потоке ядерного реактора природный торий-232:



^{233}U , как изотоп нечетный, делится тепловыми нейтронами. И самое главное, в реакторах с ^{233}U может происходить (и происходит) расширенное воспроизводство ядерного горючего, причём это осуществляется в обычном реакторе на тепловых нейтронах. Расчеты показывают, что при выгорании в ториевом реакторе килограмма ^{233}U в нем же должно накопиться 1,1 кг нового ^{233}U (в результате захвата нейтронов ядрами тория). Уран-ториевый цикл в реакторах на тепловых нейтронах – главный конкурент уран-плутониевого цикла воспроизводства ядерного горючего в реакторах на быстрых нейтронах. Однако на пути внедрения уран-ториевого цикла в энергетику существует несколько труднопреодолимых препятствий. Мы их подробно рассмотрим в учебном пособии «ТОРИЙ».

16.3 ТВЭЛы энергетических реакторов

Ядерное горючее – вещество, в котором протекают ядерные реакции деления с выделением полезной энергии.

Топливом ядерных энергетических реакторов является либо естественный уран, в котором концентрация урана-235 составляет 0,7 % либо обогащенный уран, т.е. уран, в котором концентрация изотопов урана-235 достигает нескольких процентов. Ядерное топливо бывает металлическим, керамическим, дисперсионным, керметным и др. Ядерное горючее для гетерогенных атомных реакторов изготавливается в виде порошка, сфер или таблеток.

Ядерное топливо должно удовлетворять следующим требованиям: обогащение по ^{235}U должно обеспечить поддержание самопроизвольной цепной реакции на протяжении расчётной кампании с учётом поглощения неделяющимися ядрами активной зоны (^{238}U , теплоносителя, поглотителя, конструкционного материала) с максимальной глубиной выгорания; оболочки тепловыделяющих элементов должны обладать минимально возможными поглощающими нейтроны свойствами; оболочки тепловыделяющих элементов должны обладать высокой температуростойкостью и выдерживать высокие внутренние и внешние давления,

обеспечивая при этом герметичность; конструкция сборки ТВЭЛов в составе активной зоны должна обеспечивать эффективный отвод тепла теплоносителю; композиция таблетки ядерного делящегося материала должна обеспечивать высокую температуростойкость, прочность, теплопроводность, устойчивость к фазовым изменениям при температуре и радиационном преобразовании в процессе деления составляющих её ядер ^{235}U . При любых режимах эксплуатации, включая аварийные, должно быть обеспечено нераспространение радиоактивных продуктов, возникающих при делении ядер ^{235}U в пределах тепловыделяющих элементов.

Изготовление реакторного топлива включает выпуск тепловыделяющих элементов (ТВЭЛов), состоящих из топливного сердечника в виде спеченных таблеток, помещенных в цилиндрическую оболочку. Зазор между сердечником и оболочкой заполняется гелием или смесью гелия и аргона. ТВЭЛы собираются в кассеты, называемые тепловыделяющими сборками (ТВС). В зависимости от типа ядерных реакторов и их назначения топливные таблетки могут быть изготовлены из металлического урана, его керамических соединений (оксиды, карбиды, нитриды) и твердых дисперсий (гетерогенной смеси делящегося материала с инертным разбавителем). В настоящее время в большинстве энергетических ядерных реакторов мира в качестве топлива используется обогащенный диоксид урана с оболочкой из циркониевых сплавов.

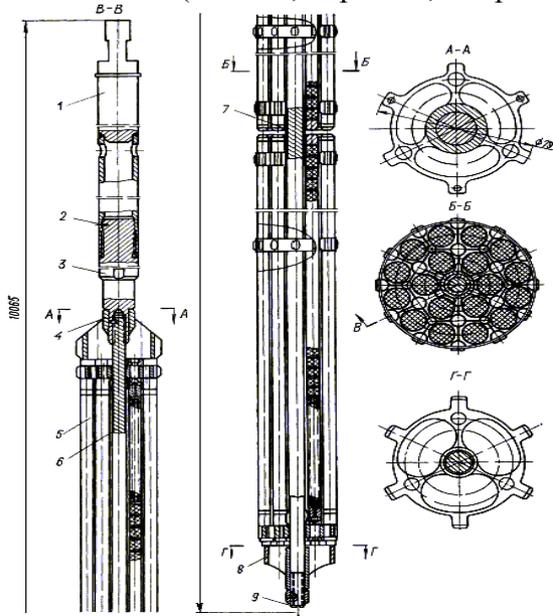


Рис. 259. Тепловыделяющая кассета РБМК-1000: 1 - подвеска, 2 - штифт, 3 - переходник, 4 - хвостовик, 5 - ТВЭЛ, 6 - несущий стержень, 7 - втулка, 8 - наконечник, 9 - гайки.

Сырье для получения ядерного топлива различается в зависимости от типа ядерного реактора, для которого предназначено топливо. В большинстве реакторов применяется обогащенный уран, а исходным соединением для его обогащения является гексафторид урана. Менее распространены реакторы типа «Magnox», топливом которых служит металлический уран с природным соотношением изотопов. На АЭС с энергетическими блоками «CANDU» в качестве

горючего используется диоксид урана, также с природным соотношением изотопов.

Замечание. С целью улучшения управления реактором и продления кампании реактора, топливо для реакторов «Magnox» и «CANDU» в настоящее время всё же слегка обогащается.

В качестве топлива в реакторах РБМК используется диоксид урана ^{235}U . В природном уране содержится 0,8 % изотопа ^{235}U . Для уменьшения размеров реактора содержание ^{235}U в топливе предварительно повышается до 2,0 или 2,4 %. Загрузка реактора ураном – 200 тонн. Среднее выгорание топлива 22,3 МВтсут/кг. ТВЭЛ - циркониевая трубка высотой 3,5 м и толщиной стенки 0,9 мм с заключенными в нее таблетками диоксида урана высотой 15 мм и диаметром 9 мм. Две соединенные последовательно тепловыделяющие сборки, содержащие по 18 ТВЭЛов каждая, образуют топливную кассету длиной 7 м. Топливная кассета устанавливается в технологический канал. Вода подается в каналы снизу, омывает ТВЭЛы и нагревается, причем часть ее при этом превращается в пар. Образующаяся пароводяная смесь отводится из верхней части канала.

Топливом для реактора РБМК-1000 служат таблетки из диоксида урана с добавками оксида эрбия (диаметр 11,48, высота 12 – 15 мм, материал оболочки – сплав $\text{Zr}+1\%\text{Nb}$). Введение в таблетки керамического ядерного топлива для реакторов РБМК 0.2 - 0.6 масс. % оксида эрбия в качестве выгорающего поглотителя нейтронов позволяет улучшить экономические показатели работы реактора, повысить его безопасность за счет уменьшения реактивности топлива на начальных стадиях выгорания. Между цилиндрической и торцевой поверхностью топливной таблетки имеется фаска, предназначенная для уменьшения сколообразования в процессе снаряжения и эксплуатации ТВЭЛа. На торцевой поверхности топливной таблетки сформирована лунка, предназначенная для аккумуляции продуктов деления ядерного топлива и для компенсации объемных изменений таблетки в процессе работы реактора (стабилизация структуры таблетки в течение всего цикла работы). В реакторе типа ВВЭР в качестве ядерного топлива используется спеченный диоксид урана с начальным обогащением ^{235}U от 2.4 до 4.4 % (масс). Масса загрузки UO_2 в одном ТВЭЛе 1565 г. Гарантированный срок работы – 4 года. Полная загрузка реактора топливом – 75 тонн. ТВС ВВЭР-1000 представляет собой пучок ТВЭЛов, размещенных по треугольной решетке с шагом 12,76 мм (пучок заключен в чехол из циркониевого сплава). Некоторые характеристики ТВС приведены в **Табл. 64**. В свою очередь, ТВС также собраны в треугольную решетку с шагом 147 мм (ВВЭР-440) и 241 мм (ВВЭР-1000).

Табл. 64. Характеристики ТВЭЛ ВВЭР-1000

Размер оболочки ТВЭЛов, мм 9.1x0.65
 Диаметр топливной таблетки, мм 7.53

| | | |
|--|--------------------|-------|
| Диаметр осевого отверстия в топливной таблетке, мм | | 1.4 |
| Обогащение топлива, % | в двухлетнем цикле | 3.3 |
| | в трёхлетнем цикле | 4,4 |
| Масса загрузки UO_2 в одном ТВЭЛе, кг | | 1.565 |

Высота ТВС с пучком регулирующих стержней 4665 мм. ТВС содержит 317 ТВЭлов, 12 направляющих каналов для стержней регулирования, один канал для датчика замера энерговыделения и полу центральную трубку. В центре шестигранной головки ТВС находится цилиндрическая втулка, в которой крепятся 12 направляющих каналов для поглощающих элементов и канал для датчика замера энерговыделений. Масса топлива в кассете 455,5 кг. Втулка соединяется с шестью углами головки ТВС ребрами, в которых располагаются подпружинные штыри, служащие для зажатия сборки в реакторе, компенсации температурных расширений и технологических допусков. По граням головки расположены окна для выхода теплоносителя из ТВС. В отличие от мировых аналогов, базирующихся на прямоугольной форме, ТВС ВВЭР-1000 имеет гексагональное сечение и поле распределения твэлов. Такая схема обеспечивает высокую равномерность потока теплоносителя и более благоприятное водно-урановое соотношение в активной зоне. Гексагональная форма гарантирует сохранность ТВС при транспортно-технологических операциях в производстве и на АЭС.

**Рис. 260.** Разрез ТВС реактора ВВЭР.

Со времени пуска в эксплуатацию АЭС с ВВЭР конструкции ТВС претерпели значительные изменения. На первоначальном этапе проектирования и эксплуатации ТВС были с защитной оболочкой, т. е. чехловые (типа ВВЭР-440), затем появились сборки с перфорированным чехлом. В настоящее время преимущество отдано бесчехловым ТВС, что улучшило перемешивание теплоносителя в активной зоне, уменьшило зазор между соседними ТВС и позволило разместить в одном и том же объеме корпуса большее количество ТВС, увеличив мощность реактора; снизить неравномерность энерговыделения за счет плотной упаковки твэлов. Одновременно было уменьшено гидравлическое сопротивление ТВС; повышена надежность охлаждения в аварийных режимах, связанных с течью теплоносителя за счет поперечной растечки воды из системы аварийного охлаждения, увеличено количество регулируемых стержней на одну ТВС с целью повышения прочностных свойств силового каркаса сборки и снижения количества приводов системы управления защитой, а также снижено количество дорогостоящего материала (циркония), применяемого в ТВС.

Компенсация выгорания и медленных изменений реактивности производится варьированием концентрации борной кислоты в теплоносителе. В 42 периферийных ТВС установлены стержни с выгорающим поглотителем (B_4C , 1% по массе естественного бора в циркониевой матрице, оболочка поглощающего элемента - нержавеющей сталь). Они предназначены для выравнивания поля энерговыделения и снижения размножающих свойств у периферийных ТВС, с обогащением топлива 4,4 % в начале кампании. Общее количество ТВС в активной зоне ВВЭР-1000 шт., из них с регулирующими, стержнями 109 шт. В топливных таблетках для реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 в качестве выгорающего поглотителя используется гадолиний (содержание оксида гадолия варьируется в интервале 3 – 8% масс). Существующая технология позволяет добиться однородного распределения гадолия по топливной таблетке и образованием твердого раствора оксида гадолия в оксиде урана.

Активная зона и зона воспроизводства реактора на быстрых нейтронах БН-600 собираются из шестигранных ТВС кассетного типа с размерами "под ключ" 96 мм. Тепловыделяющая сборка состоит из ТВЭЛов, кожуха, головки для захвата ТВС при перегрузках и хвостовика, с помощью которого ТВС устанавливается в гнездо напорного коллектора и поддерживается вертикально. ТВЭЛы соединены между собой элементами крепления и ограждены чехлом, связывающим в единое целое все части ТВС. ТВЭЛы заполнены по длине активной зоны втулками из обогащенного оксидом урана, а выше и ниже активной зоны расположены торцевые экраны из брикетов оксида "отвального" урана. ТВЭЛы зоны воспроизводства заполнены брикетами из "отвального" урана.

В реакторах на быстрых нейтронах при подборе конструкционных и технологических материалов избегают применения веществ с низким массовым числом, которые могут замедлить нейтроны. Сечение поглощения быстрых нейтронов мало и захват нейтронов в таком реакторе представляет меньшую опасность по сравнению с тепловыми реакторами. Возможности для выбора материалов шире. Но для реактора на быстрых нейтронах необходимо обогащенное топливо, содержащее не менее 15-25% делящегося вещества. В

связи с небольшими размерами активной зоны реакторов на быстрых нейтронах возрастают требования к теплоотводу.

В реакторах на быстрых нейтронах обычно используют высокообогащённое по ^{235}U топливо в виде диоксида или (чаще) нитрида урана. В последнее время предложено использовать топливо на основе смеси оксидов плутония и урана (МОКС-топливо). В новом поколении реакторов на быстрых нейтронах используют не только оксиды плутония и урана (МОКС-топливо), но и нитридное топливо (UN-PuN). Смешанное уран-плутониевое нитридное топливо является наиболее перспективным для быстрых реакторов. В основу процесса синтеза порошков нитридов урана из слитков металла положены следующие операции: перевод металла в порошок через ряд циклов гидрирования и дегидрирования; азотирование порошка урана и оставшегося гидрида газообразным азотом до получения UN_x . Полученные порошки нитрида урана (UN_x) содержат от 6,2 до 8,3 мас.% азота. Площадь удельной поверхности находится в пределах 0,40-0,67 м²/г, а насыпная плотность образцов - в пределах 2,5 - 3,9 г/см³.

В настоящее время технология ядерного топлива развивается в сторону повышения его безопасности, надёжности – за счёт создания дополнительных барьеров на пути распространения радиоактивных продуктов деления, а также обеспечения сохранности этих барьеров в любых режимах работы. Одно из перспективных направлений совершенствования легководных реакторов связано с внедрением керметного (т.е. керамическо-металлического) микро топлива. Оно представляет собой сферы их обогащённого керамического UO_2 , покрытого герметичной оболочкой из циркониевого сплава (Рис. 229). При этом гомогенно перемешанные в силумине микротвэлы диаметром 0,4–0,6 мм располагаются таким образом, что исключается касание любых двух соседних микротвэлов. Конструктивно устройство оболочки тепловыделяющего элемента не изменяется, но керметно-топливной композицией заполняет весь объём оболочки ТВЭЛ без зазоров и пустот.

Силумин – лёгкие литейные сплавы алюминия (основа) с кремнием (3 – 13%, иногда до 26%) и некоторыми другими элементами (Cu, Mn, Mg, Zn, Ti, Be).

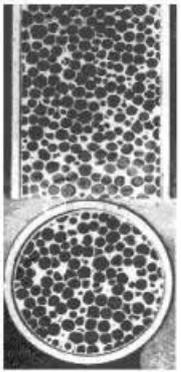


Рис. 261. Гранулированное микро топливо.

Такая конструкция обеспечивает наибольшую теплопроводность от топлива теплоносителю, снижая максимальную температуру внутри ТВЭЛ до 600°С, повышая тем самым безопасность реактора. Улучшаются условия эксплуатации реактора ВВЭР. Создаётся дополнительный барьер безопасности на пути распространения продуктов деления (герметичная и прочная оболочка микротвэла), что улучшает сохранность оболочек микротвэлов, предотвращая выход продуктов деления при разгерметизации оболочки тепловыделяющего элемента (выход радиоактивных осколков деления снижается на 2 – 3 порядка). Максимальная глубина выгорания повышается вдвое – до 120 МВт-сут/кг UO_2 . Уменьшается в два раза аккумуляция тепла в ядерном топливе, снижается расход воды на аварийное охлаждение.

Обладая рядом достоинств, легководные реакторы с керметным топливом имеют один серьёзный недостаток: пониженное содержание урана-238 в топливе приводит к ослаблению температурных обратных связей, реализуемых через резонансный захват. Более того, в определенных ситуациях возможно возникновение положительной обратной связи по температуре теплоносителя. Имеется два пути преодоления неблагоприятного эффекта: увеличение уран-водного отношения, например, за счет увеличения диаметра ТВЭЛов, либо использование в той или иной форме выгорающих поглотителей. Неблагоприятный эффект может быть уменьшен за счет перемещения поглотителя (например, ^{10}B) из теплоносителя в топливо.

Типичное топливо для легководного реактора содержит UO_2 , обогащённый по ^{235}U до 6,3%, кермет (в виде силумина) и ^{10}B (0,25 или 0,75%). В реакторе коэффициент реактивности сдвинут в благоприятном направлении ценой увеличения концентрации бора в топливе с соответствующим ухудшением показателей использования топлива.

Современное ядерное топливо, в виде шариков, изготовленных из диоксида урана слегка обогащённого ^{235}U , вполне безопасно, но оно плохо проводит тепло при высоких температурах, ограничивая тем самым допустимую мощность реактора и способствуя повреждению топливных элементов. Это требует их замены прежде, чем всё ядерное горючее будет использовано для выработки электроэнергии. Из-за плохой теплопроводности материала температура в центре топливного шарика намного выше, чем по краям, откуда система охлаждения реактора отводит тепло. Для улучшения характеристик топлива смешивают оксид урана с оксидом бериллия. Такое топливо обладает на 50% более высокой теплопроводностью. Это уменьшает разницу между температурой в центре шарика с ядерным топливом и температурой снаружи топливных сборок, что снижает риск расплавления и повреждения ядра реактора и позволяет дольше держать топливо в работе, т. е. - полнее его использовать.

Таблетки керамического ядерного топлива для тяжеловодных реакторов типа CANDU изготавливаются из природного урана (в виде оксида урана). В английских газовых реакторах также используется природный уран, но в виде металла. В некоторых реакторах используется топливо с таблетками

из UO_2 с добавкой 0,25% алюмосиликата, что повышает устойчивость ТВЭЛа к разрушению по механизму РСИ-эффекта (взаимодействие топливной таблетки с металлической оболочкой ТВЭЛа приводит к разрушению последнего).

В настоящее время разрабатываются ТВЭЛы на базе МОКС-топлива. Мы ими займёмся не здесь, а в обзоре ПЛУТОНИЙ.

16.4 Отработанное ядерное топливо энергетических реакторов

Начальная стадия послереакторного этапа ЯТЦ одинакова для открытого и закрытого циклов ЯТЦ. Она включает в себя извлечение ТВЭЛов с отработанным ядерным топливом из реактора, хранение его в пристанционном бассейне («мокрое» хранение в бассейнах выдержки под водой) в течение нескольких лет и затем транспортировка к заводу переработки. В открытом варианте ЯТЦ отработанное топливо помещают в специально оборудованные хранилища («сухое» хранение в среде инертного газа или воздуха в контейнерах или камерах), где выдерживают нескольких десятилетий, затем перерабатывают в форму, предотвращающую хищение радионуклидов и подготавливают к окончательному захоронению.

Замечание. Насколько можно судить сейчас ТВЭЛы и ТВС нигде в мире не захоранивают.

В закрытом варианте ЯТЦ отработавшее топливо поступает на радиохимический завод, где перерабатывается с целью извлечения делящихся ядерных материалов.

Отработанное ядерное топливо (ОЯТ) - особый вид радиоактивных материалов – сырьё для радиохимической промышленности.

Облученные тепловыделяющие элементы, извлеченные из реактора после их отработки, обладают значительной накопленной активностью. Различают два вида ОЯТ: 1) ОЯТ промышленных реакторов, которое имеет химическую форму как самого топлива, так и его оболочки, удобную для растворения и последующей переработки и 2) ТВЭЛы энергетических реакторов. ОЯТ промышленных реакторов перерабатывают в обязательном порядке, тогда как ОЯТ перерабатывают далеко не всегда. Энергетическое ОЯТ относят к высокоактивным отходам, если не подвергают дальнейшей переработке, или к ценному энергетическому сырью, если подвергают переработке. В некоторых странах (США, Швеция, Канада, Испания, Финляндия) ОЯТ полностью относят к радиоактивным отходам (РАО). В Англии, Франции, Японии – к энергетическому сырью. В России часть ОЯТ считается радиоактивными отходами, часть поступает на переработку на радиохимические заводы.

Из-за того, что далеко не все страны придерживаются тактики замкнутого ядерного цикла, ОЯТ в мире постоянно увеличивается. Практика стран, придерживающихся замкнутого уранового топливного цикла показала, что частичное замыкание ЯТЦ легководных реакторов убыточно даже при возможном в последующие десятилетия удорожании урана в 3-4 раза. Тем не менее эти страны замыкают ЯТЦ легководных реакторов, покрывая затраты за счет увеличения тарифов на электроэнергию (надбавка к тарифам АЭС во Франции, связанная с затратами на переработку ОЯТ легководных реакторов составляет 0.3 цент/кВт·ч). Наоборот, США и некоторые другие страны отказываются от переработки ОЯТ, имея в виду будущее окончательное захоронение ОЯТ, предпочитая его длительную выдержку, что оказывается дешевле (надбавка к тарифам АЭС, введенная в США актом 1982 г., составляет 0.1 цент/кВт·ч). Тем не менее, ожидается, что к двадцатым годам переработка ОЯТ в мире увеличится.

Извлеченное из активной зоны энергетического реактора ТВС с отработанным ядерным топливом хранят в бассейне выдержки на АЭС в течение 5-10 лет для снижения в них тепловыделения и распада короткоживущих радионуклидов. В 1 кг отработавшего ядерного топлива АЭС в первый день после его выгрузки из реактора содержится от 26 до 180 тыс. Ки радиоактивности. Через год активность 1 кг ОЯТ снижается до 1 тыс. Ки, через 30 лет—до 0,26 тыс. Ки. Через год после выемки, в результате распада короткоживущих радионуклидов активность ОЯТ сокращается в 11 - 12 раз, а через 30 лет - в 140 - 220 раз и дальше медленно уменьшается в течение сотен лет.

Если в реактор первоначально загружался природный уран, то в отработавшем топливе остается 0,2 - 0,3% ^{235}U . Повторное обогащение такого урана экономически нецелесообразно, поэтому он остается в виде так называемого отвалного урана. Отвалный уран в дальнейшем может быть использован как воспроизводящий материал в реакторах на быстрых нейтронах. При использовании для загрузки ядерных реакторов низкообогащенного урана ОЯТ содержит 1% ^{235}U . Такой уран может быть дообогащен до первоначального содержания его в ядерном топливе, и возвращен в ЯТЦ. Восстановление реактивности ядерного топлива может быть осуществлено добавлением в него других делящихся нуклидов - ^{239}Pu или ^{233}U , т.е. вторичного ядерного топлива. Если к обедненному урану добавляется ^{239}Pu в количестве, эквивалентном обогащению топлива ^{235}U , то реализуется уран-плутониевый топливный цикл. Смешанное уран-плутониевое топливо используется как в реакторах на тепловых, так и на быстрых нейтронах. Уран-плутониевое топливо обеспечивает максимально полное использование урановых ресурсов и расширенное воспроизводство делящегося материала.

Для технологии регенерации ядерного топлива чрезвычайно важны характеристики выгружаемого из реактора топлива: химический и радиохимический состав, содержание делящихся материалов, уровень активности. Эти характеристики ядерного топлива определяются мощностью реактора, глубиной выгорания топлива в реакторе, продолжительностью кампании, коэффициентом воспроизводства вторичных делящихся материалов, времени выдержки топлива после выгрузки его из реактора, типом реактора.

Выгорание ядерного топлива - деление ядер урана или плутония с освобождением энергии и образованием осколочных нуклидов. Накопление большого количества продуктов деления приводит к нарушениям работы режима работы реактора. Так, среди осколочных продуктов имеются нуклиды с большим сечением захвата нейтронов (например, ^{135}Xe , ^{149}Sm), которые называют «нейтронными ядами». Накопление этих продуктов приводит к резкому уменьшению плотности потока нейтронов в активной зоне реактора и к прерыванию цепной ядерной реакции. Нарушения режима работы реактора могут наступить из-за накопления в ТВЭЛх газообразных продуктов деления. При высокой температуре внутри реактора накопление их приводит к резкому повышению давления внутри ТВЭЛов, к набуханию и разрушению оболочек ТВЭЛов. Вследствие этого реактор не может работать на одной загрузке до полного выгорания топлива. После определенного периода времени, называемого **кампанией реактора** первоначально загруженное ядерное топливо выгружают из реактора и заменяют свежим. В современных энергетических реакторах на тепловых нейтронах кампания топлива составляет 2-4 года, в реакторах на быстрых нейтронах - меньше года. Отработанное топливо направляется на переработку в целях выделения содержащихся в нем делящихся материалов и очистки от продуктов деления. Очищенные делящиеся материалы можно использовать для изготовления новых ТВЭЛов.

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}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}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 = $2,44 \cdot 10^{-3}$ МВт/г.

КПД современных энергетических реакторов составляет 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}U . В реальных условиях уранового топливного цикла это значение ниже, так как существенный вклад в выработку энергии вносит образующийся при работе ядерного реактора ^{239}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}Pu . Таким образом, плутоний становится полноценным ядерным топливом даже при загрузке в реактор чистого уранового топлива. Вклад плутония в вырабатываемую на АЭС энергию составляет $\approx 50\%$. С учетом деления ^{239}Pu можно считать, что для реактора мощностью 1000 МВт (эл.) необходимо загрузить 670 кг/год ^{235}U , что при 3%-ном обогащении соответствует 22 т U. При продолжительности кампании, равной трем годам, загрузка составляет 66 т U. Чтобы при этом обеспечить 3%-ную глубину выгорания, начальное обогащение ^{235}U должно быть выше 3%, т.е. 3,5-4,5%. Загруженные 70 т урана нужно постепенно, в течение трех лет, заменять свежим топливом. Поэтому из легководного реактора мощностью 1000 МВт (эл) выгружается и поступает на переработку 20-30 т U в год. Тепловая энергия реактора составляет 3300 МВт (тепл). $365 = 1,2 \cdot 106/30 = 40$ ГВт.сут/т. 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.

Коэффициент воспроизводства - количество вторичного делящегося материала, образующегося в процессе работы, и представляет собой отношение числа образовавшихся делящихся ядер к числу выгоревших из первоначально загруженного топлива. Если коэффициент воспроизводства больше единицы, то в реакторе осуществляется расширенное воспроизводство топлива. Такие реакторы называют реакторами-размножителями. Наибольший коэффициент воспроизводства имеют реакторы на быстрых нейтронах (Для реакторов БН-600 КВ=1,4). Из реакторов на тепловых нейтронах, наибольший коэффициент воспроизводства имеют тяжеловодные реакторы, а также газоохлаждаемые реакторы с графитовым замедлителем (0,7-0,8). Легководные водо-водяные реакторы имеют наименьший коэффициент воспроизводства (0,5-0,6). Указанные значения коэффициента воспроизводства делящихся материалов соответствует их количеству в выгружаемом топливе, т.е. рассчитаны с учетом выгорания вторичного ядерного топлива параллельно с его образованием.

Выгруженное из реакторов отработавшее ядерное топливо передается на переработку только после определенной **выдержки**. Это связано с тем, что среди продуктов деления имеется большое количество

короткоживущих радионуклидов, которые определяют большую долю активности выгружаемого из реактора топлива. Поэтому свежевыгруженное топливо выдерживают в специальных хранилищах в течение времени, достаточного для распада основного количества короткоживущих радионуклидов. Это значительно облегчает организацию биологической защиты, снижает радиационное воздействие на химические реагенты и растворители в процессе переработки обработавшего ядерного топлива и уменьшает набор элементов, от которых должны быть очищены основные продукты. Так, после двух-трехлетней выдержки активность облученного топлива определяют долгоживущие продукты деления: Zr, Nb, Sr, Ce и другие РЗЭ, Ru и α-активные трансурановые элементы. 96% ОЯТ – это уран-235 и уран-238, 1% - плутоний, 2-3% - радиоактивные осколки деления.

Табл. 65. Характеристика ядерного топлива энергетических реакторов.

| Характеристика топлива | Реакторы на тепловых нейтронах | | | | Реакторы на быстрых нейтронах |
|--|--------------------------------|--------------------|------------------------|-----------------------------------|---|
| | Легководные ВВЭР | Тяжеловодные SGHWR | Газоохлаждаемые HTGR | РБМК | |
| Вид топлива | UO ₂ | UO ₂ | (U, ThO ₂) | U _{мет.} UO ₂ | UO ₂ , (U, PuO) ₂ |
| Исходное топливо % ²³⁵ U | 1,5 – 4,5 | 1,8 – 2,2 | до 93 | 1,6 – 2,4 | 20 – 30% PuO ₂ |
| Отработавшее топливо, % ²³⁵ U | 0,7 – 1,3 | 0,8 | 50 | 0,3 – 0,4 | - |
| Глубина выгорания, МВт.сут/т | 12000-40000 | 19000-21000 | 100000-130000 | 18000-30000 | 60000 - 120000 |

Табл. 66. 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.

Состав исходного и отработанного топлива для реактора на тепловых нейтронах приведен в **Табл. 65**, а составы ОЯТ быстрых и медленных реакторов – в **Табл. 66**. Основные радионуклиды, определяющие радиационную опасность, собраны в **Табл. 67**.

Табл. 67. Радионуклиды, определяющие активность и токсичность отработанного топлива.

| Временной интервал, год | Определяющие радионуклиды |
|----------------------------------|--|
| До 100 | Fe-55, Co-58, Ni-59, Sr-90, Ru-106, Sb-125, Cs-134,137, Ce-144, Pm-147, Eu-154,155 |
| 100-1000 | Sm-151, Co-60, Cs-137, Ni-59,63 |
| 1000-10000 | Pu-239,240, Am-241 |
| 10 ⁴ -10 ⁵ | Np-237, Pu-239,240, Am-243, C-14, Ni-59, Zr-93, Nb-94 |
| >10 ⁵ | I-129, Tc-99, Pu-239 |

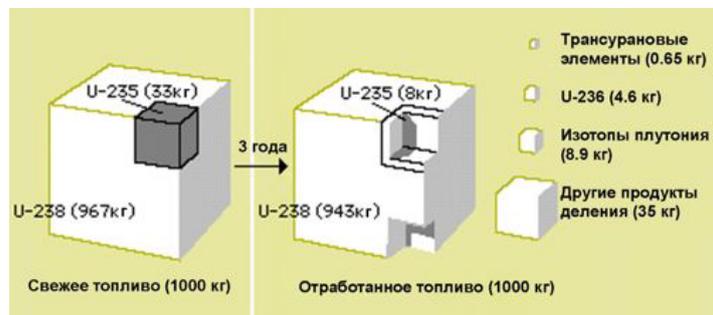


Рис. 262. Изменение изотопного состава ядерного топлива, после сжигания в реакторе АЭС

Табл. 68 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. 69. Содержание некоторых осколочных элементов в топливе водо-водяного реактора, при различных временах выдержки, грамм/1 тонна топлива (выгорание 33 ГВт.сут.т)

| Элемент | 90 сут | 150 сут | 1 год | 10 лет |
|---------|--------|---------|-------|--------|
| Tc | 835 | 835 | 835 | 835 |
| Ru | 2280 | 2260 | 2220 | 2140 |
| Rh | 384 | 389 | 392 | 392 |
| Pd | 1280 | 1290 | 1330 | 1410 |
| Ag | 60 | 60 | 60 | 60 |
| Ce | 2920 | 2880 | 2760 | 2660 |
| Pr | 1190 | 1200 | 1200 | 1200 |
| Nd | 3870 | 3910 | 4000 | 4150 |
| Pm | 112 | 107 | 96 | 8,7 |
| Sm | 803 | 808 | 824 | 904 |
| Eu | 182 | 182 | 180 | 164 |
| Gd | 102 | 103 | 105 | 123 |

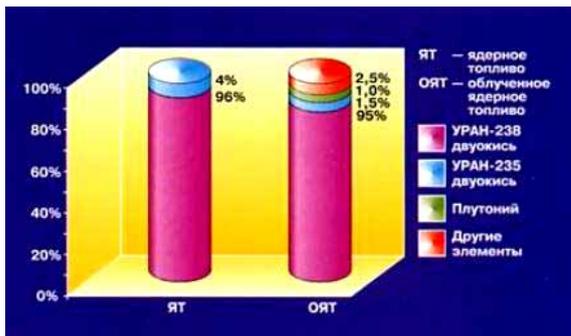


Рис. 263. Изотопный состав свежего и отработанного топлива.

Примечание. Суммарная активность продуктов деления, содержащихся в 1 т ОЯТ ВВЭР-1000 после трех лет выдержки в бассейне выдержки (БВ), составляет 790000 Ки. По своему составу, отработанное топливо быстрых реакторов довольно существенно отличается от состава тепловых реакторов.

Табл. 70. Радиационные характеристики необлученных ТВС БН-600 с различными видами топлива.

| Топливо | Интенсивность излучения, с ⁻¹ | |
|-----------------|--|------------------|
| | нейтронного | Гамма-излучение |
| UO ₂ | $4,8 \cdot 10^2$ | $2,9 \cdot 10^9$ |
| Смешанное: | | |

| | | |
|-------------------------|------------------|---------------------|
| оружейный плутоний | $6,7 \cdot 10^5$ | $1,1 \cdot 10^{12}$ |
| энергетический плутоний | $3,6 \cdot 10^6$ | $7,6 \cdot 10^{12}$ |



Рис. 264. Динамика изменения радиоактивности отработанного ядерного топлива, после извлечения его из реактора (малые времена).

При хранении ОЯТ в пристанционном хранилище, его активность монотонно уменьшается (примерно на порядок за 10 лет). Когда активность упадет до норм, определяющих безопасность транспортировки ОЯТ по железной дороге, его извлекают их хранилища и перемещают либо в долговременное хранилище, либо на завод по переработке топлива.

16.5 Радиохимическая переработка отработанного ядерного топлива

Переработку облученного ядерного топлива проводят с целью извлечения из него делящихся радионуклидов (прежде всего ^{233}U , ^{235}U и ^{239}Pu), очистки урана от нейтрон поглощающих примесей, выделения нептуния и некоторых других трансурановых элементов, получения изотопов для промышленных, научных или медицинских целей. Под переработкой ядерного топлива понимают переработку ТВЭЛов энергетических, научных или транспортных реакторов, так и переработку бланкетов реакторов-размножителей. Радиохимическая переработка ОЯТ – основная стадия закрытого варианта ЯТЦ, и обязательная стадия наработки оружейного плутония.

Напомним, что в России перерабатывается облученный уран реакторов-бридеров и ТВЭЛы реакторов ВВЭР-440, БН и некоторых судовых двигателей; ТВЭЛы основных типов энергетических реакторов ВВЭР-1000, РБМК (любых типов) не перерабатываются и в настоящее время накапливаются в специальных хранилищах.

Переработка делящегося материала, облученного нейтронами в ядерном реакторе топлива осуществляется для решения таких задач, как

- получение урана и плутония для производства нового топлива;
- получение делящихся материалов (урана и плутония) для производства ядерных боеприпасов;
- получение разнообразных радиоизотопов, находящих применение в медицине, промышленности и науке;
- получение доходов от других стран, которые либо заинтересованы в первом и втором, либо не хотят хранить у себя большие объемы ОЯТ;
- решение экологических проблем, связанных с захоронением РАО.

В настоящее время количество ОЯТ постоянно увеличивается и его регенерация - основная задача радиохимической технологии переработки отработавших ТВЭЛов. В процессе переработки проводится выделение урана и плутония и очистка их от радиоактивных продуктов деления, в том числе от нейтронопоглощающих нуклидов (нейтронных ядов), которые при повторном использовании делящихся материалов могут препятствовать развитию в реакторе цепной ядерной реакции. Как уже упоминалось, для случая деления урана-235 тепловыми нейтронами кривая распределения продуктов деления по массам представляет собой «двугорбую» кривую: максимальные выходы приходятся на изотопы с массами 95 и 140, некоторые из которых – сильные нейтронные яды и их необходимо удалить из топлива.

Среди радиоактивных продуктов деления содержится большое количество ценных радионуклидов, которые можно использовать в области малой ядерной энергетики (радиоизотопные источники тепла для термогенераторов электроэнергии), а также для изготовления источников ионизирующего излучения. Применение находят трансурановые элементы, получающиеся в результате побочных реакций ядер урана с нейтронами. Радиохимическая технология переработки ОЯТ должна обеспечивать извлечение всех нуклидов, полезных с практической точки зрения или представляющих научный интерес.

16.5.1 Стадии переработки

Процесс химической переработки отработавшего топлива связан с решением проблемы изоляции от биосферы большого количества радионуклидов образующихся в результате деления ядер урана. Эта проблема - одна из наиболее серьезных и трудно решаемых проблем развития ядерной энергетики.

Первая стадия радиохимического производства включает подготовку топлива, т.е. в 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 соответствующую 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 α -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-окиси урана;
- переработку растворов, содержащих другие радионуклиды, и их выделение.

В основе технологии выделения урана и плутония, их разделения и очистки от продуктов деления лежит процесс экстракции урана и плутония трибутилфосфатом. Он осуществляется на многоступенчатых экстракторах непрерывного действия. В результате уран и плутоний очищаются от продуктов деления в миллионы раз. Переработка ОЯТ связана с образованием небольшого объема твердых и газообразных РАО активностью около 0,22 Ки/год (предельно допустимый выброс 0,9 Ки/год) и большим количеством жидких радиоактивных отходов.

ТВЭЛы энергетических реакторов изготавливают из термостойких UO_2 или PuO_2 , из смешанных уран-плутониевых оксидов (UO_2 - PuO_2). Для реакторов-размножителей на быстрых нейтронах перспективно топливо на основе карбидов UC, PuC, (U, Pu)C и нитридов UN, PuN, (U, Pu)N, имеющее большую чем оксиды теплопроводность. Оболочки ТВЭЛ изготавливают также из термостойких, механически прочных и коррозионно-стойких материалов с высокой теплопроводностью - циркония и его сплавов, нержавеющей стали. Оболочки из циркония позволяют повысить температуру активной зоны реактора до 540°, а из нержавеющей стали - до 800° и выше. Однако большое количество железа в конструкционных материалах приводит к необходимости увеличивать количество делящихся материалов в сердечниках ТВЭЛов, т.е. использовать более высокообогащенное ядерное топливо, так как железо, а также примеси кобальта и никеля имеют большое сечение захвата тепловых нейтронов. Все конструкционные материалы отличаются химической стойкостью, и растворение их представляет серьезную проблему. 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.

Перечисленные особенности ТВЭЛов обусловили необходимость разработки новых методов вскрытия или растворения оболочек, а также осветления растворов ядерного топлива перед экстракционной переработкой.

Глубина выгорания топлива реакторов 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.

Отработанное 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 отдельной 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%.

16.5.2 Подготовка отработавшего ядерного топлива к экстракции

На перерабатывающем заводе сборки ТВЭЛов с помощью погрузочно-разгрузочных механизмов перегружаются из контейнеров в заводской буферный бассейн-хранилище. Здесь сборки хранят до тех пор, пока их не направляют на переработку. После выдержки в бассейне в течение срока, выбранного на данном заводе, ТВС выгружают из хранилища и направляют в отделение подготовки топлива к экстракции на операции вскрытия отработавших твэлов.

Отделение материала оболочки ТВЭЛов от топливной оболочки - одна из наиболее сложных задач процесса регенерации ядерного топлива. Существующие методы можно разделить на две группы: методы вскрытия с разделением материалов оболочки и сердечника ТВЭЛов и методы вскрытия без отделения материалов оболочки от материала сердечника. Первая группа предусматривает снятие оболочки ТВЭЛов и удаление конструкционных материалов до растворения ядерного топлива. Водно-химические методы заключаются в растворении материалов оболочки в растворителях, не затрагивающих материалы сердечника. Использование этих методов характерно для переработки ТВЭЛов из металлического урана в оболочках из алюминия или магния и его сплавов. Алюминий легко растворяется в едком натре или азотной кислоте, а магний - в разбавленных растворах серной кислоты при нагревании. После растворения оболочки сердечник растворяют в азотной кислоте.

Однако ТВЭЛы современных энергетических реакторов имеют оболочки из коррозионноустойчивых, труднорастворимых материалов: циркония, сплавов циркония с оловом (циркалой) или с ниобием, нержавеющей стали. Селективное растворение этих материалов возможно только в сильно агрессивных средах. Цирконий растворяют в плавиковой кислоте, в смесях её со щавелевой или азотной кислотами или растворе NH_4F . Оболочку из нержавеющей стали - в кипящей 4-6 М H_2SO_4 . Основным недостатком химического способа снятия оболочек - образование большого количества сильно засолённых жидких радиоактивных отходов.

Чтобы уменьшить объем отходов от разрушения оболочек и получить эти отходы сразу в твёрдом состоянии, более пригодном для длительного хранения, разрабатывают процессы разрушения оболочек под воздействием неводных реагентов при повышенной температуре (пирохимические методы). Оболочку из циркония снимают безводным хлористым водородом в псевдооживленном слое Al_2O_3 при 350-800°C. Цирконий превращается при этом в летучий ZrCl_4 и отделяется от материала сердечника сублимацией, в затем гидролизует, образуя твердую двуокись циркония. Пирометаллургические методы основаны на прямом оплавлении оболочек или растворения их в расплавах других металлов. Эти методы используют различие в температурах плавления материалов оболочки и сердечника или различие их растворимости в других расплавленных металлах или солях.

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.

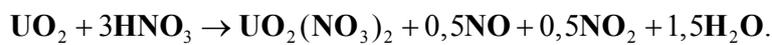
Вскрытие ТВЭЛов может проводиться без отделения материалов оболочки от материала сердечника. При реализации водно-химических методов оболочку и сердечник растворяют в одном и том же растворителе с получением общего раствора. Совместное растворение целесообразно при переработке топлива с высоким содержанием 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.

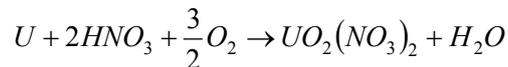
В отработанных ТВЭЛах энергетических реакторов высокой и средней глубины выгорания накапливается большое количество газообразных радиоактивных продуктов, которые представляют серьезную биологическую опасность: тритий, иод и криптон. В процессе растворения ядерного топлива они в основном выделяются и 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, I, 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.

Выбор метода перевода 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°C. 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.

Лучше растворение проводить в присутствии кислорода. В этом случае 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 количества образующихся продуктов деления достигают килограммов на 1 т U, часть труднорастворимых осколочных элементов полностью в раствор не переходит и образует нерастворимые взвеси. К таким элементам относятся, прежде всего, рутений и молибден. В нерастворенном виде остается 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.

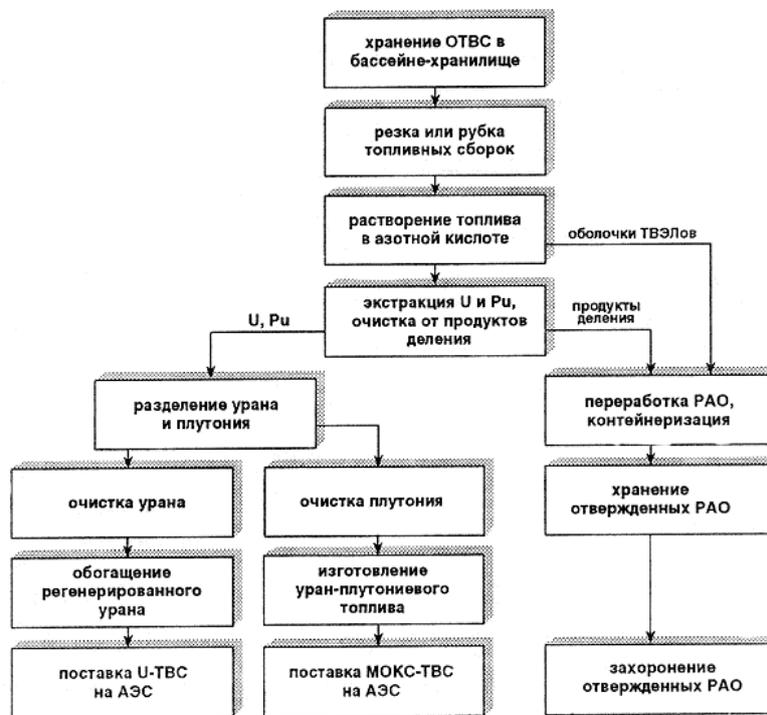


Рис. 265. Общая схема переработки облучённого в реакторе уранового топлива.

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 пленки, стабилизирующие капли эмульсии и уменьшающие скорость расслаивания фаз. При значительном накоплении взвесей в зоне расслаивания образуется объемный 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 твердые 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.

16.5.3 Процессы экстракции

Для переработки облучённого топлива из нескольких имеющихся методов разделения была выбрана экстракция органическими растворителями. Широко использовались два метода экстракции – пурекс- и редокс-процессы, а также различные их варианты. Урановое горючее растворяется в азотной кислоте с образованием раствора, содержащего уран, плутоний и продукты деления. Методы экстракции основаны на различиях в растворимости этих компонентов в органической жидкости, практически не растворимой в воде.

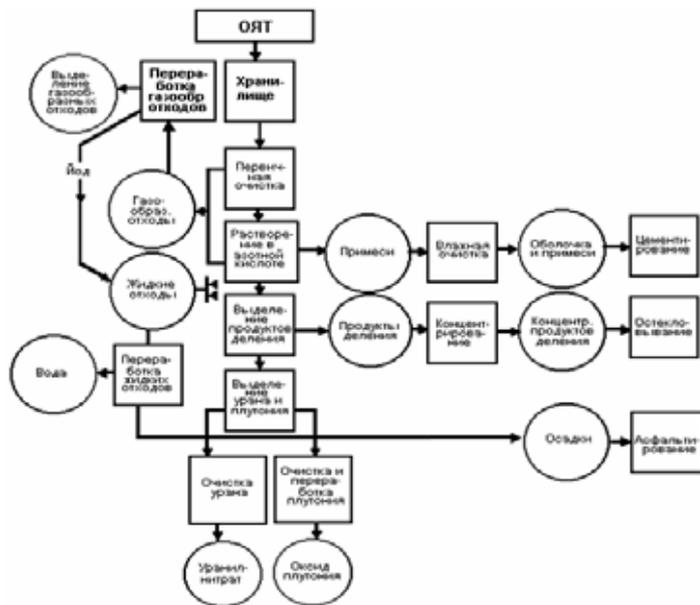


Рис. 266. Общая схема ПУРЕКС – процесса.

В технологической схеме, которая получила название **пюрекс**-процесса (Рис.), раствор, после растворения ТВЭЛ в азотной кислоте, содержащий UVI, PuIV, продукты деления (ПД), экстрагируют раствором ТБФ в керосине. При этом U(VI), Pu(IV), и частично ПД переходят в органическую фазу, а основная часть ПД остается в водной фазе. Затем плутоний восстанавливают гидразином (NH₂OH) до Pu³⁺, а уран – до U⁴⁺. Вновь проводят экстракцию ТБФ в керосине. Уран и четырехвалентные ПД переходят в органическую фазу, трехвалентный плутоний экстрагируется плохо и остается в водном растворе. U⁴⁺ реэкстрагируют водой.

Пьюрекс-процесс (от англ. *Plutonium-Uranium Recovery by EXtraction (PUREX)* - регенерация урана и плутония посредством экстракции) — технологический процесс переработки облучённого ядерного топлива.

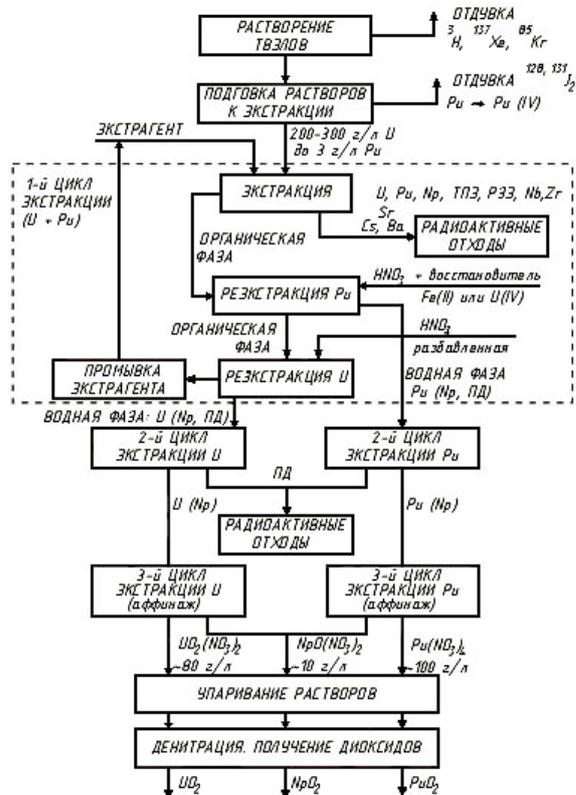


Рис. 267. Химия пьюрекс-процесса.

В этом процессе исходный раствор нитратов урана, плутония и продуктов деления подвергается действию экстрагентов для отделения урана и плутония от основной массы продуктов деления. Органическим растворителем является трибутилфосфат (ТБФ), разбавленный керосином; экстракция ведется при различных типах контактирования потоков. ТБФ, содержащий уран и плутоний, контактирует с разбавленной азотной кислотой в колонне восстановительной реэкстракции, в результате чего плутоний восстанавливается до трехвалентного состояния. При этом плутоний полностью переходит из органической фазы в водную. Дальнейшая очистка плутония достигается за счет окисления его снова до четырехвалентного состояния и реэкстракции ТБФ

После растворения ТВЭЛов в азотной исходный раствор, в зависимости от глубины, содержит 250-300 г/л U, до 3 г/л Pu и до 100 мг/л Np. Исходный раствор фильтруют и направляют на стадию подготовки к экстракции, где из раствора отдувают молекулярный йод (I₂), а Pu – переводят, в основном, в состояние Pu⁴⁺ для обеспечения разделения элементов в процессе экстракции. В течение первой экстракции (30% раствор ТБФ в керосине) в органическую фазу извлекаются U, Pu, Np, актиниды Am, Cm и ряд осколочных элементов (PЗЭ, Ru, Zr, Nb и др.). Для повышения коэффициента очистки урана и плутония от примесей органическую фазу промывают растворами азотной кислоты и нитрата аммония: при этом U и Pu остаются в органической фазе, а значительная часть осколочных элементов переходит в рафинат. В процессе реэкстракции происходит разделение U и Pu. Аппарат для разделения состоит из двух зон: зоны разделения и зоны отмывания плутония от захваченного урана. В качестве восстановителя при реэкстракции используют

соли железа (II) или урана (IV). Полученный реэкстракт Pu^{3+} содержит значительное количество урана. Отмывка реэкстракта проводится во второй зоне аппарата потоком свежего экстрагента (расход его составляет до 20% от общего объема органической фазы). В результате остаточная концентрация U в плутониевом реэкстракте обычно не превышает 10-20 мг/л.

Задачей второго (а в некоторых схемах и третьего) цикла экстракции является дальнейшая очистка U от продуктов деления и от остаточного плутония (до 10 мг Pu на 1 кг U). Режим второго цикла экстракции – промывки – реэкстракции плутония аналогичен режиму первого цикла. В ходе реэкстракции U дополнительно очищается от осколочных элементов, Np, и следов плутония. В зависимости от конкретной схемы переработки, возможна реэкстракция сначала урана, а потом осколочных элементов, и наоборот. Раствор уранилнитрата после второго цикла экстракции, содержащий 80 г/л урана, направляют на упаривание и денитрацию с целью последующего получения диоксида урана.

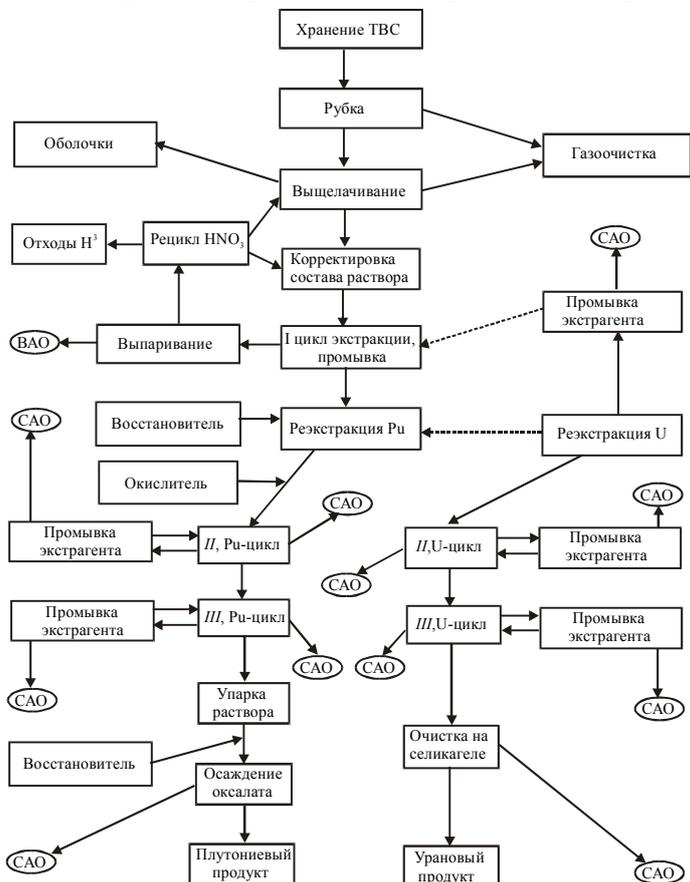
После отделения плутония от основной массы урана в первом цикле экстракции, дальнейшая очистка его осуществляется на стадии аффинажа. В результате аффинажной очистки получают концентрированный раствор плутония (до 100 г/л), из которого в дальнейшем получают чистый оксид плутония (IV). Раствор упаривают и подвергают денитрации.

Нептуний при данных схемах переработки концентрируется в двух потоках (с ураном и плутонием) и в дальнейшем отделяется на стадии аффинажа.

| Средние значения коэффициентов очистки урана, плутония и нептуния | | | | | |
|---|-------------------|---------------------|-------------------|-------------------|--|
| Операции | Ru+Rh | Zr+Nb | PЗЭ | Cs | Коэфф. очистки по суммарной γ -активности |
| U | 9·10 ⁷ | 6,5·10 ⁶ | 2·10 ⁸ | 5·10 ⁸ | 7,5·10 ⁷ |
| Pu | 108 | 6,2·10 ⁶ | 1010 | 5·1010 | 108 |
| Np | - | - | - | - | 109 |

При глубине выгорания топлива до 30 МВт·сут/кг и сроках охлаждения 2-3 года, активность исходного водного раствора, поступающего на первый цикл экстракции, составляет 100-250 Ки/л. За один цикл экстракции органическая фаза получает дозу облучения $\sim 10^3$ Гр, при этом в ней появляется заметное количество продуктов радиолитического распада (до 150 мг/л ДБФ и др.). Чтобы эффективность экстракционной переработки не ухудшалась, органическую фазу промывают раствором щелочи или соды (20% раствор Na_2CO_3).

В редокс-процессе непрерывной экстракции после растворения ТВЭЛ в азотной кислоте плутоний окисляют бихроматом калия до шестивалентного состояния, затем извлекают его вместе с ураном экстракцией гексоном из раствора алюминия в HNO_3 при недостатке азотной кислоты против стехиометрического по отношению к алюминию, что предотвращает окисление гексона азотной кислотой. Уран и плутоний переходят в органическую фазу, а ПД остаются в водной фазе. Органическую фазу очищают от продуктов деления промыванием раствором нитрата алюминия. Затем уран и плутоний реэкстрагируют разбавленной HNO_3 . Далее плутоний восстанавливают до 3^+ , оставляя уран в степени окисления 6^+ и разделяют их экстракцией урана гексоном. U(VI) переходит в органическую фазу, а Pu(III) – в водную. Затем уран реэкстрагируют разбавленной азотной кислотой, а плутоний подвергают дополнительной очистке. Этот процесс подобен пурекс-процессу в том отношении, что выполняются одинаковые функции и берутся те же исходные вещества, но экстрагент и высаливатель другие. Экстрагентом служит гексон (метил-мзобутилкетон), а высаливателем – нитрат алюминия. Восстановление и окисление плутония осуществляют соответственно с помощью $Fe(SO_3NH_2)_2$ и $K_2Cr_2O_7$.



Экстрагентом служит гексон (метил-мзобутилкетон), а высаливателем – нитрат алюминия. Восстановление и окисление плутония осуществляют соответственно с помощью $Fe(SO_3NH_2)_2$ и $K_2Cr_2O_7$.

Рис. 268. Типовая водно-экстракционная схема переработки отработанного топлива АЭС. (CAO – среднеактивные отходы ВАО - высокоактивные отходы).

По третьему методу - ТТА-процессу - плутоний экстрагируется из исходного водного раствора раствором теноилтрифторацетона (ТТА) в бензоле, что обеспечивает отделение от урана и практически от всех продуктов деления, за исключением циркония. ТТА представляет собой хелатное соединение. Следы продуктов деления отмывают из органической фазы разбавленной азотной кислотой. Затем плутоний реэкстрагируют из органической фазы путем промывки восстановителем. Поскольку плутоний (III) не экстрагируется в заметной степени ТТА, он переходит в водную фазу. Цирконий не реэкстрагируется с плутонием и удаляется из экстрагента при промывке смесью щавелевой и азотной кислот. Преимущество - не применяются высаливатели, содержащие ионы тех или иных металлов, поэтому упрощается удаление отходов. Недостаток - экстракция идёт медленно и трудно осуществить непрерывный процесс.

В настоящее время на заводах технологическая схема переработки отработанного ядерного топлива энергетических реакторов на тепловых нейтронах составляет экстракционная технология с легким (синтин) или тяжелым (четырёххлористый углерод) разбавителем.

Синтин – синтетическое жидкое топливо, состоящее в основном из ненасыщенных углеводородов

Схема предусматривает совместную экстракцию U(VI) и Pu(IV, VI) из 1-4М HNO₃ трибутилфосфатом в инертном разбавителе для сброса основной массы продуктов деления, которые остаются в водном растворе. После промывки экстракта U и Pu разделяют селективной реэкстракцией Pu(III) разбавленной азотной кислотой в присутствии восстановителя (восстановительная реэкстракция). При этом плутоний переходит в водную фазу. Оставшийся в органической фазе уран реэкстрагируют разбавленным раствором азотной кислоты. Дальнейшую очистку проводят отдельно в урановой и плутониевых ветвях с помощью повторных циклов экстракции или с привлечением сорбционных процессов.

Практически все экстракционные технологические схемы переработки отработавшего ядерного топлива предусматривают применение в качестве экстрагента для извлечения целевых компонентов трибутилфосфата. Экстракционная система с трибутилфосфатом (ТБФ) может быть применена для переработки любых видов ТВЭЛов.

Трибутилфосфат – три-н-бутиловый эфир ортофосфорной кислоты (C₄H₉O)₃PO.

ТБФ хорошо отвечает технологическим требованиям: малая растворимость в воде, отличная от воды плотность, высокая точка кипения, устойчивость к радиации и химическим реагентам, лёгкая регенерируемость. Но он дорог и при переработке высокоактивных видов топлива, под действием излучения, разлагается с образованием дибутилфосфорной кислоты, затем монобутилфосфорной кислоты и фосфорной кислоты. Дибутилфосфорная кислота образует с цирконием комплексы, частично реэкстрагирующиеся из органической фазы вместе с ураном и плутонием, что приводит к их загрязнению. Монобутилфосфорная кислота и фосфорная кислота взаимодействуют с цирконием с образованием труднорастворимых соединений, выпадающих в осадок на границе раздела фаз. В результате взаимодействия плутония с продуктами разложения ТБФ образуются трудно реэкстрагируемые из органической фазы соединения, что ведет к потерям плутония. Эти недостатки преодолевают путем сокращения времени контакта фаз: используют пульсационные колонны или центробежные экстракторы, вводят эффективные системы очистки экстрагента и разбавителя от продуктов их радиолиза, вводят агенты, образующие комплексы с цирконием, например фторид ионы, оптимизируют процесс экстракции подбором концентрации азотной кислоты, соотношением потоков органической и водной фаз, степени насыщения экстрагента ураном и т.п.

ТБФ используют с различными разбавителями в различных концентрациях. Концентрация ТБФ в растворе экстрагента определяется степенью обогащения перерабатываемого ядерного топлива. Для природного и низкообогащенного урана принята 30%-ная концентрация. В случае переработки высокообогащенного по ²³⁵U топлива или топлива с высоким содержанием плутония концентрацию ТБФ снижают до 2,5-5%, чтобы избежать образования опасных концентраций делящихся нуклидов в экстракте. В качестве разбавителя используют керосин, очищенные углеводороды или четырёххлористый углерод.

Процесс экстракционной очистки состоит из трех основных стадий: экстракции, промывок и реэкстракции. Коэффициенты очистки урана и плутония, потери ценных компонентов с водным раствором, образование межфазных осадков и их эмульгирование существенно зависят от степени насыщения экстрагента и кислотности питающего и промывочного растворов. Повышение степени насыщения экстрагента ураном способствует повышению коэффициентов очистки урана и плутония от осколочных элементов, оказывая на них вытесняющее действие.

Максимально возможная степень насыщения 30%-ого раствора ТБФ (1,1 моль/л ТБФ) составляет 0,55 моль/л U+Pu, или около 130 г U+Pu/л, так как эти металлы экстрагируются в форме соединений, имеющих формулу MO₂(NO₃)₂(ТБФ)₂, где М-U(VI) и Pu(VI), а также M(NO₃)₄(ТБФ)₂, где М - Pu(IV). Содержание U и Pu в экстракте 1 цикла составляет около 85 г U и Pu/л, что соответствует степени насыщения экстрагента, равной 65%.

Повышение насыщения ТБФ ураном и плутонием значительно снижают экстрагируемость большинства продуктов деления, и в особенности церия, рутения и циркония. Увеличение кислотности

водной фазы от 2 М до 3-4 М HNO_3 повышает растворимость в ней продуктов взаимодействия циркония с НТБФ и $\text{H}_2\text{TБФ}$, а скорость их образования снижается. С помощью этих мер можно ограничить процесс образования межфазных осадков, главная часть которых - твердый продукт, содержащий цирконий и дибутилфосфат в отношении 1:2. Повышению коэффициента очистки от циркония, ниобия и рутения способствует также поведение сильноокислотных промывок органической фазы. Улучшение очистки от продуктов деления достигается также повышением температуры на отдельных стадиях процесса.

Разделение урана и плутония во всех технологических схемах осуществляют селективной восстановительной реэкстракцией плутония после операции их совместной экстракции. Для этой цели плутоний переводят из экстрагируемого четырехвалентного состояния в неэкстрагируемое трехвалентное с помощью противоточной промывки экстракта, содержащего уран и плутоний, водным раствором разбавленной азотной кислоты, в которой добавлен восстановитель. В качестве восстановителя плутония опробовано большое количество реагентов: гидразин, гидроксилламин, ион железа (II), добавляемый в виде сульфата, нитрата или ацетата, нитрат урана (IV), азотная кислота, аскорбиновая кислота, водород. Концентрация сульфата железа (II) лежит в пределах 0,02-0,04М, что несколько превышает стехиометрическую величину.

Избыток восстановителя необходим для полноты восстановления плутония и зависит от концентрации плутония в растворе, концентрации нитрат-иона, общей кислотности и времени пребывания раствора в аппарате. Сульфат железа (II) достаточно стабилен в азотнокислых растворах. С помощью этого восстановителя в противоточном экстракторе удается получить коэффициенты очистки плутония от урана и урана от плутония, равные соответственно 10^6 и 10^4 .

Использование сульфат-иона нельзя считать полностью удовлетворительным, так как этот реактив, разлагаясь, образует серную кислоту, присутствие которой в среднеактивных отходах заставляет решать проблему антикоррозионной защиты аппаратов. Наличие железа в среднеактивных отходах также является недостатком применения этого восстановителя. Осложняется и процесс очистки растворителя. Основным преимуществом U(IV) по сравнению с сульфатом железа (II) является получение бессолевых сбросов. Однако коэффициенты разделения урана и плутония здесь ниже.

Традиционный способ очистки экстрагента от продуктов радиолиза и их соединений с продуктами деления заключается в промывке его водными растворами карбоната натрия, гидроокисью натрия или их смесью. Например, экстрагент промывают в 4-ступенчатом смесителе-отстойнике при 60°C 0,1М раствором Na_2CO_3 и 0,1М раствором NaOH . Химические методы сводятся к образованию воднорастворимых солей дибутил-, монобутилфосфорной и фосфорной кислот с натрием. Недостатком метода является образование значительного количества содесодержащих среднеактивных отходов, которые могут содержать и α -активные изотопы. Завод производительностью 1500 т/год ежегодно от операции промывки трибутилфосфата производит 150 т нитрата натрия (главную часть среднеактивных отходов). Остаточное количество плутония в трибутилфосфате после реэкстракции щелочными растворами может полимеризоваться, выпасть в осадок, который может представлять опасность из-за достижения критической массы. Лучшие результаты дает промывка отработанного экстрагента водным раствором гидрата гидразина в области концентрации 0,1-1М при температуре от 20 до 75°.

16.5.4 Выделение и очистка целевых продуктов

Уран и плутоний, разделенные после первого цикла экстракции, подвергают дальнейшей очистке от продуктов деления, нептуния и друг от друга до уровня, отвечающего техническим условиям ЯТЦ и затем превращают в товарную форму.

Наилучших результатов по дальнейшей очистке урана достигают комбинированием разных методов, например экстракции и ионного обмена. Однако в промышленном масштабе экономичнее и технически проще использовать повторение циклов экстракции с одним и тем же растворителем - трибутилфосфатом. Число циклов экстракции и глубина очистки урана определяются типом и выгоранием ядерного топлива, поступающего на переработку, и задачей отделения нептуния. Для удовлетворения технических условий по содержанию примесных α -излучателей в уране общий коэффициент очистки от нептуния должен быть ≥ 500 . Схема очистки в урановой ветви включает или цикл экстракции 30%-ным раствором ТБФ в инертном разбавителе и сорбцию на силикагеле, или два цикла экстракции ТБФ.

Экстракцию в урановой ветви ведут с межцикловым упариванием, так как при этом на 30% сокращается объем растворов в экстракционной колонне и достигается более высокое насыщение экстрагента ураном (95 гU/л), что способствует очистке от рутения, циркония и ниобия. Упаривание реэкстракта урана при низкой концентрации азотной кислоты ($\leq 0,3\text{M}$) создает условия для образования неэкстрагируемых гидролизных форм циркония.

После первого цикла уран реэкстрагируется в водный раствор и проводится второй цикл очистки при более высоком насыщении экстрагента ураном (до 92-96%) и низкой кислотности. В этих условиях

повышается очистка от нептуния, а также америция и юрия, которые попадают преимущественно в водные сбросные растворы. Для улучшения очистки от плутония и нептуния добавляют азотную кислоту (предпочтительно в виде газообразной двуокиси азота) или другой восстановитель. Проведение двух циклов экстракционной очистки урана раствором трибутилфосфата в четыреххлористом углероде ветви обеспечивает отделение нептуния от урана на 99%; плутония от урана на 97-98%; коэффициент очистки урана от циркония составляет $2 \cdot 10^3$, от рутения $5 \cdot 10^3$, от редкоземельных элементов более 10^4 , от технеция 2.

Окончательную очистку урана от продуктов деления, главным образом от циркония, проводят с помощью сорбции в колонне с силикагелем. Для этого органическую фазу после второго цикла очистки урана подают в сорбционную колонну, в верхней части которой собираются все нерастворимые примеси, так как колонна работает одновременно и как фильтр. Обычно на пути органического раствора ставят несколько попеременно действующих колонн с силикагелем, с тем чтобы, не прерывая процесса, проводить отмывку колонн от сорбированных β - и γ -активных веществ. Десорбирующим раствором служит щавелевая кислота, хорошо смывающая цирконий и ниобий. Уран после сорбционной очистки рекстрагируют в водный раствор, который анализируют на чистоту, содержание урана и степень обогащения по ^{235}U .

Завершающая стадия аффинажа урана предназначена для перевода его в оксиды урана - либо осаждением в виде перекиси уранила, оксалата уранила, уранилкарбоната аммония или ураната аммония с последующим их прокаливанием, либо прямым термическим разложением гексагидрата уранилнитрата. Свойства диоксида урана зависят от методов ее получения, а такие свойства, как структура, отношение O/U, удельная поверхность и активность порошков, являются решающими при использовании UO_2 для изготовления ТВЭЛов. Денитрацию растворов уранилнитрата проводят в две стадии: упаривание раствора уранилнитрата с получением гексагидрата уранилнитрата и термическая обработка при $300-500^\circ$ упаренного на 70-100% продукта до триоксида урана.

Плутоний после отделения от основной массы урана подвергают дальнейшей очистке от продуктов деления, урана и других актиноидов до собственного фона по γ -и β -активности. В качестве конечного продукта на заводах стремятся получать диоксид плутония, а в дальнейшем в комплексе с химической переработкой осуществлять и производство ТВЭЛов, что позволяет избежать дорогостоящих перевозок плутония, требующих особых предосторожностей особенно при перевозке растворов нитрата плутония. Все стадии технологического процесса очистки и концентрирования плутония требуют особой надежности систем обеспечения ядерной безопасности, а также защиты персонала и предотвращения возможности загрязнения окружающей среды ввиду токсичности плутония и высокого уровня α -излучения. При разработке оборудования учитывают все факторы, которые могут вызвать возникновение критичности: массу делящегося материала, гомогенность, геометрию, отражение нейтронов, замедление и поглощение нейтронов, а также концентрацию делящегося вещества в данном процессе и др. Минимальная критическая масса водного раствора нитрата плутония равна 510 г (при наличии водяного отражателя). Ядерная безопасность при осуществлении операций в плутониевой ветви обеспечивается специальной геометрией аппаратов (их диаметр и объем) и ограничением концентрации плутония в растворе, которая постоянно контролируется в определенных точках непрерывного процесса.

Технология окончательной очистки и концентрирования плутония основывается на проведении последовательных циклов экстракции или ионного обмена и дополнительной аффинажной операции осаждения плутония с последующим термическим превращением его в двуокись. Завершающая стадия плутониевой ветви - денитрация растворов плутония, осуществляемая осаждением оксалатов или термической денитрацией.

Первый цикл экстракции в плутониевой ветви проводят с использованием в качестве экстрагента 30%-ного ТБФ в инертном разбавителе, керосине или н-додекане. Плутоний в рекстракте после отделения от урана находится в трехвалентном состоянии, поэтому перед проведением следующего цикла экстракции его окисляют либо нитритом натрия, либо газообразными оксидами азота, пропуская их противотоком в насадочной абсорбционной колонне, либо электрохимически. Применение нитрита натрия приводит к образованию солесодержащих среднеактивных отходов, а применение окислов азота требует тщательной очистки как раствора плутония от нитрозных газов, которые в дальнейших операциях приводят к потерям плутония, так и отходящих газов при самой реакции окисления. Непрерывный процесс анодного окисления лишен этих недостатков.

Водный раствор окисленного плутония поступает на экстракционный цикл, осуществляемый в трех экстракционных блоках: в первом идет экстракция плутония трибутилфосфатом и промывка, во втором - восстановительная рекстракция плутония, в третьем - промывка плутониевого водного раствора трибутилфосфатом. В качестве восстановителя используют нитрат U(IV) , нитрат гидразина или нитрат гидроксиламина. Очистку плутония от нептуния можно улучшить добавлением азотистой кислоты.

Водный раствор плутония после первого цикла очистки в плутониевой ветви снова окисляют и подают на следующий цикл экстракции, который проводят идентично предыдущему. Технологическая схема

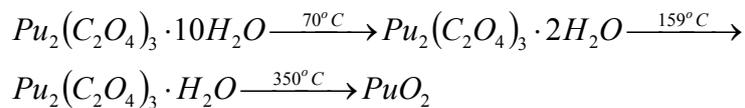
включает операцию упаривания водного раствора нитрата плутония для его концентрирования. Упаривание слабокислых растворов плутония обуславливает его необратимую полимеризацию и отложение продуктов на стенках выпарного аппарата, что приводит к частым остановкам процесса. Операция упаривания раствора плутония требует предосторожности с точки зрения ядерной безопасности и коррозии аппаратуры. После двух циклов экстракции с использованием 30%-ного раствора ТБФ в CCl_4 в плутониевой ветви достигается очистка от циркония 2000 раз, от рутения 10000 раз, от РЗЭ в 50000 раз. Для получения достаточной очистки плутония при переработке глубоковыгоревшего топлива добавляют еще один, третий экстракционный цикл в ветви плутония (экстрагент - третичные амины).

Эффективным методом концентрирования плутония является ионный обмен, т. к. кроме концентрирования плутония он обеспечивает дополнительную очистку продукта. Используют сильноосновные аниониты (Дауэкс-1, А-17). Однако радиационная стойкость ионообменных смол позволяет использовать их лишь в условиях, когда интегральная доза облучения не превышает 100 Мрад.

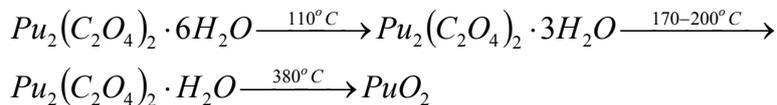
Двуокись плутония можно получать осаждением пероксида $Pu(III)$ или оксалата $Pu(III)$ и $Pu(IV)$ с последующим прокаливанием этих соединений. Оксалатное осаждение - наиболее распространенный способ денитрации плутония. Для типового перерабатывающего завода мощностью 1500 т/год установка отверждения плутония должна быть рассчитана на получение 15 т плутония в год. Удельная поверхность порошка PuO_2 сильно зависит от удельной поверхности осадка оксалата плутония, поэтому при осаждении оксалата контролируют кислотность исходного раствора, концентрацию щавелевой кислоты и скорость ее добавления, скорость перемешивания, валентность плутония, продолжительность и температуру процесса осаждения. Осаждение оксалата $Pu(IV)$ осуществляется добавлением в раствор $Pu(NO_3)_4$ щавелевой кислоты при температуре 50-60°. Кислотность раствора и валентности плутония корректируют добавлением азотной кислоты, воды и перекиси водорода к исходному раствору. Образовавшийся оксалат плутония промывают и фильтруют на вращающихся вакуумных фильтрах. Маточные растворы, в которых содержится плутоний, концентрируют и возвращают в цикл в аппарат корректировки. Суспензию оксалата плутония $[Pu(C_2O_4)_2 \cdot H_2O]$ с фильтра направляют на сушку и прокаливание. Прокаливание осуществляют при температуре 300-400° в шнековой печи, имеющей ядернобезопасные размеры.

Термическое разложение оксалатов плутония происходит по схемам:

Для $Pu(III)$



Для $Pu(IV)$



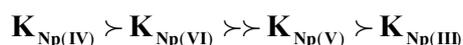
На физические характеристики порошка PuO_2 влияют условия прокаливания: толщина слоя осадка в реакторе, время, температура и атмосфера прокаливания. Повышение температуры прокаливания способствует увеличению удельной поверхности порошка и снижению его химической активности. Оптимальной температурой прокаливания считают 750°, при этом удельная поверхность возрастает до 25-35 м²/г.

Диоксид плутония поступает в установку кондиционирования, где её подвергают прокаливанию, дроблению, просеиванию, комплектованию партий и упаковке.

Для изготовления смешанного уран-плутониевого топлива целесообразен метод химического соосаждения урана и плутония, позволяющий достичь полной гомогенности топлива. Такой процесс не требует разделения урана и плутония при переработке отработавшего топлива. В этом случае смешанные растворы получают при частичном разделении урана и плутония вытеснительной реэкстракцией. Таким способом можно получать $(U, Pu)O_2$ для легководных ядерных реакторов на тепловых нейтронах с содержанием PuO_2 3%, а также для реакторов на быстрых нейтронах с содержанием PuO_2 20%.

Значение, которое имеет ^{237}Np как исходный материал для получения ^{238}Pu , широко используемого в космической технике, в малой энергетике и в медицине, обуславливает необходимость извлечения нептуния при переработке выгоревшего ядерного топлива, в котором содержится 230-430 г/т ^{237}Np . В окислительно-восстановительных циклах процесса нептуний ведет себя иначе, чем уран и плутоний, из-за существенного различия стойкости этих элементов в одинаковых окислительных состояниях.

В исходном растворе топлива нептуний присутствует в четырех-, пяти- и шестивалентном состоянии. Экстрагируемость трибутилфосфатом для различных валентных форм имеет следующую последовательность:



В первом цикле совместной очистке урана и плутония от продуктов деления нептуний распределяется так, что основная часть его попадает в поток с ураном и затем, в урановой ветви, - в водный рафинат. В условиях экстракционной технологии, где возможно применение только быстропротекающих реакций и нежелательно введение новых реагентов, процессы окисления и восстановления нептуния должны быть проведены без значительного нарушения основного процесса разделения и очистки урана и плутония. Окислительно-восстановительный агент, оптимально отвечающий этим требованиям, - азотистая кислота. При ее использовании окислительное состояние нептуния и его поведение в экстракционных циклах определяют два фактора – отношение $\text{NO}_2^-/\text{NO}_3^-$.

Существуют два варианта извлечения нептуния в процессе переработки.

Первый вариант - нептуний полностью экстрагируется в первом цикле совместно с ураном и плутонием и затем отделяется в рафинаты в циклах экстракционной очистки урана и (или) плутония. В этом варианте используют **рефлекс-процесс**, т.е. закичивание нептуния в целях его накопления и концентрирования в экстракционном цикле с последующим его выводом. Прежде всего, нептуний переводят в экстрагируемое ТБФ шестивалентное состояние добавлением азотистой кислоты в экстракционно-промывной блок (колонну) первого цикла и повышением концентрации азотной кислоты до 3-4М. Азотистая кислота служит автокатализатором окисления Np(V) азотистой кислотой при достаточно высокой концентрации последней. Нептуний, вместе с ураном и плутонием, переходит в органическую фазу. Затем в эту фазу добавляют гидразин, переводящий нептуний из шести в пятивалентное состояние и проводят реэкстракцию. Нептуний переходит в водную фазу. Очищенный раствор нептуния поступает на осаждение оксалата, которое проводят при 50° из 1-4М HNO_3 в присутствии аскорбиновой кислоты и гидразина, стабилизирующих нептуний в четырехвалентном состоянии. Высушенный на воздухе оксалат нептуния прокачивают, постепенно повышая температуру от 150 до 550° . Конечный продукт - двуокись нептуния. Конечным продуктом технологической схемы выделения нептуния может являться также очищенный, сконцентрированный упариванием раствор нитрата нептуния.

Второй вариант - нептуний в первом цикле выводят полностью в высокоактивный рафинат, из которого его затем извлекают экстракционным методом. В ходе процесса добавляют в питающий и промывные растворы избыток нитрита натрия, стабилизирующего Np в пятивалентном состоянии. В результате до 95% Np остается в водных высокоактивных отходах.

16.5.5 Альтернативные варианты переработки ОЯТ

Дискуссия о целесообразности регенерации отработавшего топлива носит не только научно-технический и экономический, но и политический характер, так как развертывание строительства заводов регенерации представляет потенциальную угрозу распространения ядерного оружия. Центральная проблема - обеспечение полной безопасности производства, т.е. обеспечение гарантий контролируемого использования плутония и экологической безопасности. Поэтому сейчас создаются эффективные системы контроля технологического процесса химической переработки ядерного топлива, обеспечивающие возможность определения количества делящихся материалов на любой стадии процесса. Обеспечению гарантий нераспространения ядерного оружия служат так же предложения так называемых альтернативных технологических процессов, например **CIVEX-процесс**, в котором плутоний ни на одной из стадий процесса не отделяется полностью от урана и продуктов деления, что значительно затрудняет возможность его использования во взрывных устройствах.

Civex - *воспроизводство ядерного топлива без выделения плутония.*

Для повышения экологичности переработки ОЯТ разрабатываются неводные технологические процессы, в основе которых лежат различия летучести компонентов перерабатываемой системы (дистилляционные процессы), фракционная кристаллизация из расплавов, экстракция расплавами солей, сорбция при высокой температуре на неорганических сорбентах, зонная плавка и т.д. Наиболее детально изучена газофторидная схема, основанная на фракционной отгонке летучих фторидов шести валентных урана и плутония и образовании нелетучих фторидов четырехвалентного плутония и основной массы продуктов деления. Преимущества неводных процессов заключаются в их компактности, в отсутствии сильных разбавлений и образовании больших объемов жидких радиоактивных отходов, в меньшем влиянии процессов радиационного разложения. Образующиеся отходы находятся в твердой фазе и занимают значительно меньший объем.

В настоящее время прорабатывается вариант организации АЭС, при котором на станции строятся не одинаковые блоки (например, три однотипных блока на тепловых нейтронах), а разнотипные (например, два тепловых и один быстрый реактор). Сначала обогащенное по ^{235}U топливо сжигается на тепловом реакторе (с образованием плутония), затем ОЯТ топливо перемещается в быстрый реактор, в котором за счет возникшего плутония перерабатывается ^{238}U . После окончания цикла использования, ОЯТ подается на радиохимический завод, который расположен прямо на территории АЭС. Завод не занимается полной переработкой топлива -

он ограничивается выделением из ОЯТ только урана и плутония (путем отгонки шестифтористых фторидов этих элементов). Выделенные уран и плутоний поступают на изготовление нового смешанного топлива, а оставшееся ОЯТ идёт или на завод по выделению полезных радионуклидов, или на захоронение.

Развитие радиохимической промышленности, воспроизводство и рециклирование ядерного топлива, сокращение времени пребывания его во внешнем топливном цикле будут способствовать развитию крупномасштабной ядерной энергетики.

16.6 Переработка и захоронение отходов

Надежное, безопасное и эффективное обращение с радиоактивными отходами (РАО) на конечной стадии топливного цикла - необходимый компонент ядерной индустрии. При обращении с РАО учитывают два критерия:

- РАО не должно оказывать вредного воздействия на человека и окружающую среду
- ответственность за обеспечение безопасности РАО лежит на современных получателях выгод от использования ядерной энергии и не должна перекладываться на следующие поколения.

Строго говоря, радиоактивными считаются любые отходы, содержащие радионуклиды, хотя повсюду содержатся радиоактивные вещества. На практике радиоактивными отходами считаются только те отходы, в которых содержатся радионуклиды или которые загрязнены радионуклидами при концентрациях (или уровне радиоактивности), превышающих определенную величину, заданную Санитарными правилами страны.

Отходы среднего и низкого уровня активности нарабатываются в процессе эксплуатации АЭС. Радиоактивные продукты ядерного деления могут загрязнять воду, использующуюся как теплоноситель, или оборудование электростанции. Жидкие отходы возникают в результате дезактивации оборудования и зданий, а также из потоков прачечных и душевых. Отходящие газы, например, ксенон и криптон, в также различные газообразные продукты собираются на фильтрующих элементах, которые затем обрабатываются как твердые отходы.

Для сокращения объема жидкие отходы подвергают выпариванию, после чего концентрат собирается на дне испарителя. Для снижения содержания радиоактивных элементов в жидких отходах применяют ионнообменные смолы. Ионнообменные смолы с накопившимися радиоактивными элементами затем обрабатываются как твердые отходы. В твердые РАО АЭС также входят ткани, бумага, стекло и металл, используемые в процессе обслуживания электростанции. На типовой крупной АЭС мощностью 1000 МВт

образуется различное количество отходов в зависимости от местных условий при средней величине 100 - 600 м³. Типовая крупная АЭС производит 30 тонн отработавшего топлива в год, которое, если его подвергнуть переработке, даст три кубических метра отходов высокого уровня радиоактивности в остеклованной форме.

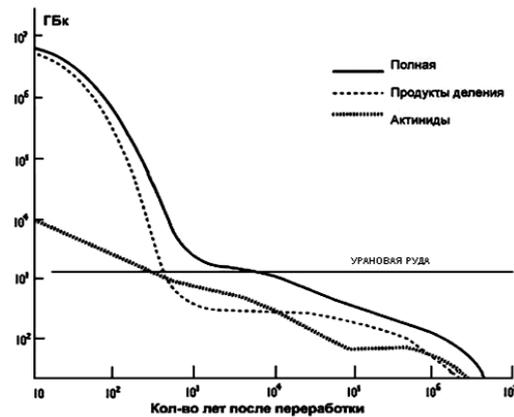


Рис. 269. Динамика изменения активности переработанного ОЯТ.

Радиоактивные отходы обладают принципиальным преимуществом по сравнению с традиционными промышленными отходами: радиоактивные элементы распадаются и самоуничтожаются, тогда как стабильные токсичные вещества существуют вечно. В качестве примера на Рис. 269 представлена динамика изменения во времени радиоактивности отработанного ядерного топлива, подвергнутого радиохимической переработке. Видно, что активность как продуктов деления, так и оставшихся в топливе актинидов падает во времени, но не по простой экспоненциальной зависимости (накопление дочерних радиоактивных элементов). Через 10 тыс лет активность упадёт до радиоактивности обычных урановых руд, т.е. будет соблюден принцип эквивалентности: в земную кору будет возвращена так же активность, что была извлечена из нее при добыче урановой руды.

Типовой последовательностью операций по обращению с отходами является сбор, разделение, определение характеристик, обработка, кондиционирование, перевозка, хранение и захоронение (Рис. 270). Отходы делятся на три категории: 1) Материалы типа А с коротким периодом полураспада (менее 30 лет) и слабой радиоактивностью. 2) “Мусор” типа В, который тоже имеет малый период полураспада и обладает малой радиоактивностью. 3) Отходы категории С наиболее опасные – в них содержится 95% общей радиоактивности.

Вопрос о хранении РАО первого типа практически решён – их излучение сравнивается с естественным фоном через три столетия, в течение которых, требуется серьезное наблюдение. Отходы типов В и С образуются непосредственно при выработке электроэнергии на АЭС. Когда заложенный в реактор оксид урана через три - четыре года извлекают как отработанное топливо, в нем содержится еще 95,5% урана и

только 3,5% продуктов распада; кроме того, уран-238, поглощая нейтроны, превращается в плутоний (1%) или другой элемент семейства актинидов с большей, чем у урана атомной массой. Обычно заключенное в упаковку отработанное топливо хранится в траншеях, ожидая окончательного складирования. Сортируют топливо на специальном заводе, который после сложных химических и механических операций выдает уран, плутоний и бетонные или стеклянные блоки. Они начинены отходами класса С, размолотыми в порошок, утрамбованными и смешанными с компонентами стекла на молекулярном уровне. Блоки хранятся на заводе в вентилируемых колодцах. Отходы класса В – топливо и отбросы повторной переработки – помещают в металлические футляры, а потом замуровывают в бетон. Прессованием под давлением уменьшают объем отходов в 4 раза. Отходы класса В и С хранят в толще геологических слоев - надежно укрывая от внешних повреждений (эрозия, землетрясения, климатические изменения), и антропогенных.

Обычно радиоактивные отходы должны обрабатываться и кондиционироваться, чтобы придать им форму, приемлемую для безопасной погрузки, хранения и захоронения. Методы обработки включают в себя уплотнение и сжигание твердых отходов, выпаривание и химическое осаждение жидких отходов.

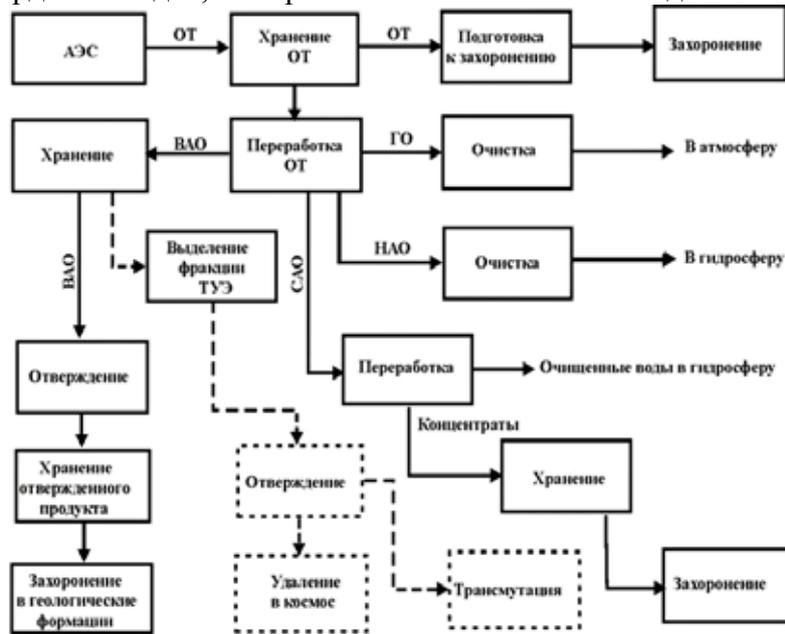


Рис. 270. Основные этапы обращения с РАО, возникшими при переработке ОЯТ: ОТ – отработавшее топливо, ГО-газообразные отходы, ТУЭ – трансурановые элементы, пунктир – теоретически рассматриваемые варианты.

Кондиционирование обычно состоит из включения обработанных отходов в матрицы, которые отверждаются в блоки, обычно в пределах внешних контейнеров, обеспечивающих хорошую механическую прочность, стойкость к огню, низкую растворимость и хорошее коррозионную стойкость. Матрицами являются бетон, битумы, полимеры и стекло. Только включение радиоактивных отходов в твердые матрицы при условии получения монолитной структуры обеспечивает надежную защиту окружающей среды. Наиболее распространенными методами отверждения жидких радиоактивных отходов низкой и средней активности являются цементирование и битумирование, высокой активности – остекловывание и включение в керамические формы. Кроме того, в качестве матриц могут использоваться стеклокерамика, стеклоцемент, металл, бетон, асфальт, полимеры.

Идея, заложенная в основу иммобилизации различных радиоактивных отходов в керамику, основана на использовании устойчивых в земной коре минералов, основная масса которых достаточно хорошо изучена. При получении керамической формы используется прессование при высокой температуре



кальциатов отходов, при котором происходит синтез кристаллических соединений. Ионы радионуклидов включаются в кристаллическую решетку в виде твердых растворов и термодинамически стабильны в условиях захоронения. При иммобилизации отходов в однофазные керамики в качестве матриц применяют радиологически инертные материалы: кремнезем, глинозем, α-кварц, муллит, рутил, поллуцит, цеолит, полевой шпат, апатит, сфен и др.

Рис. 271. Схема захоронения ОЯТ и высокорadioактивных РАО.

В концепцию окончательного захоронения РАО заложены два принципа (Рис. 240):

- Связывание радиоэлементов в соответствующих матрицах и окружение их постоянными барьерами для удержания (контейнеры и транспортная тара)
- Контроль за любой возможной утечкой остаточной радиоактивности в окружающую среду. Это достигается путем тщательного выбора геологической вмещающей среды и благодаря надлежащим образом спроектированным установкам для захоронения. Барьеры захоронения предназначены для сведения к минимуму уровня радиоактивности, достигающего биосферы.

Основной комплексного подхода к локализации отходов является концепция создания многобарьерной системы их изоляции.

Включенные в матрицу отходы герметически упаковывают в металлические контейнеры и помещают в скважины, пробуренные в геологической породе, т.е. матрица и геологическая формация являются основными компонентами системы. Дополнительными барьерами против загрязнения среды радионуклидами служат металлический контейнер (как правило, из нержавеющей стали) и его защитное покрытие из коррозионно-стойких материалов (стали, титановые или никелевые сплавы), а также материал засыпки или наполнителя, располагаемый между контейнером с отходами и основной породой хранилища. Материал засыпки, в качестве которой часто используют глину (например, бентонит) и ее смеси с другими материалами, служит сорбирующей средой и способствует передаче тепла и нагрузки. Сохранность многобарьерной системы изоляции рассчитана на 1000 лет. В ходе эксплуатации хранилища, непрерывно проводится радиометрический мониторинг с целью оценки безопасности приповерхностного захоронения твердых и отвержденных радиоактивных отходов.

Оценки возможной опасности для биосферы Земли показали, что время полной изоляции ВАО, содержащих актиниды, должно приближаться к миллиону лет. Поэтому захоронение отходов сопряжено не только с преодолением технических трудностей долговременной изоляции ВАО в условиях непрерывного рассеяния тепла, генерируемого радиоактивным распадом, с учетом возможных климатических и геологических изменений, но и с долгосрочной социальной ответственностью перед будущими поколениями.

Захоронение отходов в осадочные наслоения и скальные пласты под дном океана осуществимо в двух вариантах: путем подводного бурения полостей для размещения контейнеров на определенных расстояниях, необходимых для рассеяния тепла, с последующим запечатыванием поверхности породы над скважиной или путем организации свободного падения контейнера обтекаемой формы от поверхности воды, когда развиваемая скорость обеспечивает проникновение в дно на глубину до 50 м. Более дешевым способом могло бы стать захоронение на дно океана, реализуемое простым погружением герметических контейнеров с отвержденными отходами, стойкими к выщелачиванию. Однако такой метод не применим на практике из-за неизученности процессов в глубинах океана.

16.7 Альтернативные варианты переработки отработанного ядерного топлива и высокоактивных отходов

Как уже неоднократно упоминалось, накопление продуктов деления в ядерном топливе не позволяет полностью использовать делящиеся ^{235}U и ^{239}Pu из-за «отравления» топлива так называемыми «нейтронными ядами», т.е. продуктами деления, сильно поглощающими нейтроны и прекращающими процесс деления ядер. Одновременно ухудшаются физико-химические свойства ядерного топлива (происходит «распухание»), резко уменьшается прочность оболочки содержащих топливо тепловыделяющих элементов из-за радиационного повреждения кристаллической решетки оболочечных сплавов. В отработанном ядерном топливе ОЯТ реакторов типа ВВЭР обычно содержится 3–5% продуктов деления (ПД) и 1% образовавшегося плутония. Дальнейшее использование оставшихся в топливе делящихся материалов (ДМ) – ^{235}U и ^{239}Pu требует переработки (регенерации) отработанного ядерного топлива для удаления продуктов деления и придания топливу необходимых исходных физико-химических свойств.

Исторически необходимость в химической переработке облученного в ядерных реакторах урана естественного изотопного состава возникла ради извлечения из урана образовавшегося ^{239}Pu и производства компонентов ядерного оружия. Для этого были использованы технологические процессы, основанные на кислотном растворении урана с последующим выделением и очисткой от ПД делящихся материалов, из которых самыми удобной оказалась экстракция урана и плутония органическими экстрагентами из азотнокислых растворов. Сейчас водно-экстракционные процессы доведены высокого совершенства, позволяя перерабатывать ОЯТ любых реакторов. Однако с увеличением масштабов переработки ОЯТ АЭС становится очевидным недостаток водно-экстракционной технологии – образование большого количества радиоактивных водных и органических солейсодержащих растворов, из которых высокоактивные отходы (ВАО) хранятся и накапливаются, а низкоактивные закачиваются в подземные горизонты. Экологическая безопасность потребовала дополнительную сложную переработку жидких ВАО, включая их обезвреживание, перевод в малорастворимые соединения, удобные для хранения твердые формы радиоактивных отходов.

Одновременно с разработкой процессов выделения плутония из облученного урана с использованием растворов развивалось производство гексафторида урана естественного изотопного состава для газодиффузионного способа обогащения урана изотопом ^{235}U . Для этого были разработаны промышленные аппараты-реакторы для получения UF_6 фторированием тетрафторида и оксидов урана, конденсаторы для выделения UF_6 из потока газов конденсацией и многое другое оборудование для обращения с UF_6 . Были также разработаны химические процессы высокотемпературного (пирогидролизного) превращения UF_6 в диоксид – основной вид ныне используемого топлива. Гексафториды урана и плутония (а также нептуния, молибдена, вольфрама и некоторых других) обладают исключительными физическими и химическими свойствами – низкими температурами плавления (под давлением) и кипения или возгонки (сублимации) из твердого состояния, способностью образовывать фторокомплексы со фторидами щелочных и щелочноземельных элементов. Была обнаружена также термическая и радиационная неустойчивость гексафторида плутония.

В отличие от урана и плутония большинство продуктов деления (щелочные и щелочноземельные, лантаниды, элементы IV и V групп) образуют «нелетучие» фториды с высокими температурами плавления и кипения, за исключением высших фторидов элементов VI, VII, VIII групп (молибдена, йода, теллура, технеция). В Табл. 71 приведены температуры плавления и кипения (возгонки) фторидов урана, плутония и основных ПД (по их содержанию и активности в ОЯТ), которые дают представление о поведении этих фторидов в газифторидных процессах.

Табл. 71. Температуры плавления и кипения основных фторидов элементов, участвующих в газифторидном процессе переработки ОЯТ.

| №№ | Фторид | Температура, °С | | №№ | Фторид | Температура, °С | |
|----|----------------------------------|---------------------------|--------------------|----|----------------------------------|-----------------|--------------------|
| | | плавления | кипения (возгонки) | | | плавления | кипения (возгонки) |
| 1 | UF_4 UF_6 | 1009(960) 64,0 (тр.т.) | 1418 56 (возг) | 13 | TcF_5 TcF_6 | 49,0 37,4 | 207 55,3 |
| 2 | PuF_4 PuF_6 | 1037 51,6 (тр.т)* | 1427 62,2 | 14 | RuF_5 RuF_6 | 101 54,0 | 272 45,9 |
| 3 | NpF_4 NpF_6 | 827 55,1 (тр.т)* | 1477 55,2 | 15 | RhF_2 RhF_6 | 940 | 1730 |
| 4 | AmF_3 | 1393 | | 16 | PdF_2 PdF_6 | 952 | 1730 |
| 5 | CmF_3 | 1406 | | 17 | InF_3 | 1170 | 1380 |
| 6 | KrF_2 | разл 20° | | 18 | SbF_3 SbF_5 | 290 8,3 | 319 142,7 |
| 7 | RbF | 775 | 1390 | 19 | TeF_4 TeF_6 | 129,6 -37,0 | 374 -38,9 |
| 8 | SrF_2 | 1300 | 2460 | 20 | InF_5 InF_6 | 9,4 4,5 | 100,5 5–6 |
| 9 | YF_3 | 1152 | 1502 | 21 | XeF_6 | 26 | |
| 10 | ZrF_4 | 910 | 906 | 22 | CsF | 684 | 1254 |
| 11 | NbF_5 | 79 | 229 | 23 | BaF_2 | 1280 | 2260 |
| 12 | MoF_6 | 17,5 | 35,0 | 24 | Все P3Э | ?1000о | ~2300 |

* тр. т. – тройная точка.

Уже на стадии фторирования ОЯТ при повышенных температурах возможно отделение «легколетучих» фторидов (UF_6 , PuF_6 , TeF_6 , MoF_6 и др.), образующих газовую фазу, от основной массы твердых «вредных» фторидов ПД с высокими температурами кипения.

Развитие промышленного производства гексафторида урана, освоение приемов обращения с газообразным, твердым и жидким UF_6 , различие физико-химических свойств фторидов ДМ и ПД привели к идее создания неводной газифторидной технологии переработки как облученного урана для выделения плутония, так и для переработки ОЯТ энергетических реакторов. Так зародилась принципиально неводная технология регенерации ОЯТ, получившая название «технология возгонки фторидов» или «газофторидная». Вследствие того, что в газифторидной технологии применяются неорганические, устойчивые к радиолитическому воздействию материалы и среды она первоначально разрабатывалась для переработки высокоактивного, с большим выгоранием и малым временем выдержки ОЯТ реакторов на быстрых нейтронах для ускорения оборачиваемости топлива и сокращения времени удвоения плутония, а затем – для ОЯТ энергетических реакторов на тепловых нейтронах.

После переработки ОЯТ из UO_2 , имевшего выгорание ~10% т.а., время выдержки 3 и 6 месяцев, коэффициент очистки UF_6 от ПД - 10^6 - 10^9 (для различных ПД), выход урана в очищенный UF_6 превышал

99%. Коэффициент очистки плутония от ПД - 10^3-10^4 , что позволяет использовать его для изготовления МОКС-топлива и существенно затрудняет возможность его хищения.

Радиоактивными отходами газофторидной переработки ОЯТ являются твердые порошки – «шлаки» (остатки фторирования ОЯТ), представляющие собой концентрат фторидов ПД и трансплутониевых элементов с удельной активностью в 5–8 раз большей, чем у исходного ОЯТ, сорбент NaF с ПД, химический поглотитель известковый или активированный оксид алюминия, служившие для очистки газовых сбросов от остатков фтора и ПД и сами газовые сбросы – кислород, азот, содержащие газообразные ПД (Xe, Kr). Количество твердых радиоактивных отходов (ТРО) составляет 0,1–0,3 т на 1 т ОЯТ. Твёрдофазные радиоактивные отходы газофторидной технологии могут многие десятилетия храниться без дополнительной переработки или после их совместной переплавки. «Шлаки» могут представлять интерес для будущих поколений как «руда» для извлечения редких и трансплутониевых элементов.

Очищенные от ПД гексафториды урана и плутония способом пирогидролита могут быть снова превращены в диоксиды – основной вид топлива. Процесс пирогидролита заключается в проведении при повышенной температуре реакции UF_6 и PuF_6 или их смеси с водяным паром в присутствии восстановителя – водорода с образованием отдельных диоксидов или МОКС-топлива. Существуют производства по переводу обогащенного UF_6 пирогидролитом в диоксид урана керамического сорта для изготовления таблеточного ЯТ. Получение UO_2 из UF_6 возможно из смеси UF_6+PuF_6 уже на стадии изготовления регенерированного топлива как в виде пресс-порошков, так и в виде гранул. На **Рис.** представлены внешний вид и микрошлифы частиц UO_2 , полученных таким способом, набор фракций которых служит исходным материалом для изготовления ТВЭЛов методом виброуплотнения. Получаемый продукт свободен от примесей, округлая форма частиц обеспечивает его высокую текучесть, ускоренное виброуплотнение и более плотную укладку топлива в трубчатой оболочке ТВЭЛов.

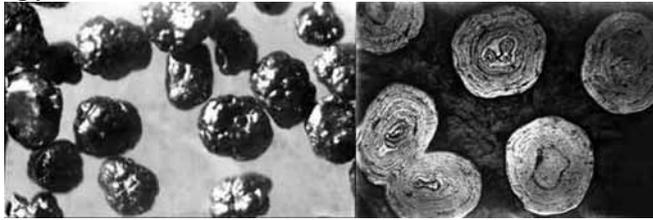
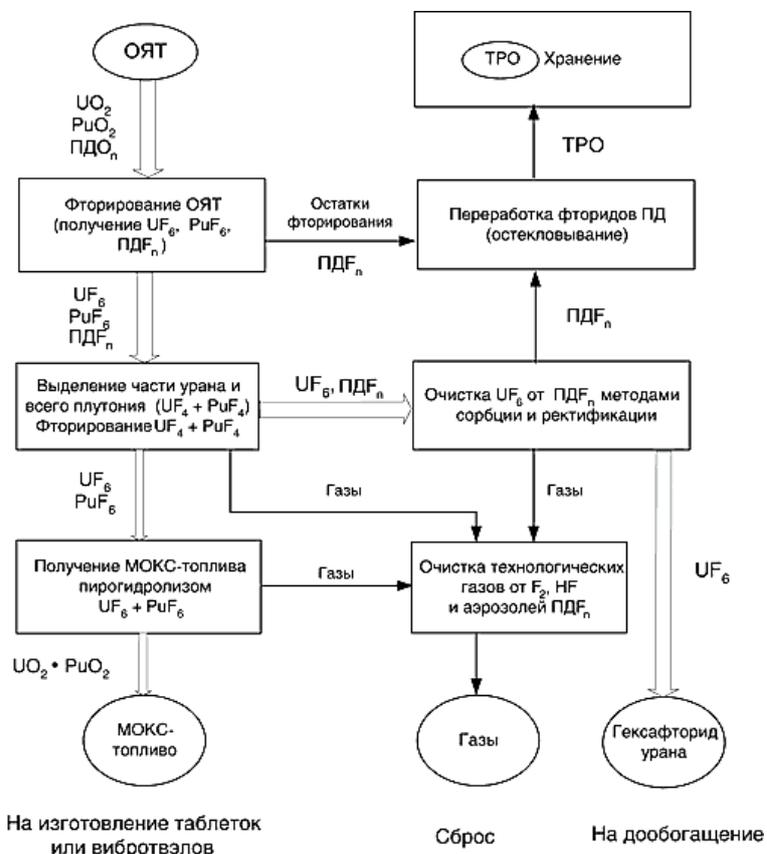


Рис. 272. Диоксид урана а) гранулы синтезированные пирогидролитом гексафторида урана; б) шлифы частиц гранулированного UO_2 , полученного пирогидролитом UF_6 в кипящем слое.

При фторировании ОЯТ основная масса продуктов деления в виде твёрдых фторидов ПД, а также фториды америция и кюрия остаются в «шлаках». Выходящие с операции фторирования газы содержат избыточный фтор, кислород, азот, газообразные гексафториды урана, плутония, нептуния, молибдена, теллура, технеция, фториды йода и частично находящиеся в газообразном состоянии и в виде аэрозолей фториды циркония, ниобия, рутения и др. Газы охлаждают, из них выделяют конденсацией UF_6 , PuF_6 и часть сопровождающих их фторидов ПД, а неконденсируемые газы направляют на утилизацию фтора и в систему газоочистки. Сконденсированные гексафториды урана и плутония возгоняют и выделяют из газовой фазы обогащенную по плутонию смесь твердых тетрафторидов урана и плутония, чаще всего путём терморазложения или химического восстановления гексафторидов. Выделенную смесь тетрафторидов подвергают фторированию до гексафторидов, которую после отделения от избыточного фтора конденсацией направляют на операцию получения МОКС-топлива способом пирогидролита смеси UF_6+PuF_6 . Этим способом можно получать порошок МОКС-топлива керамического качества для таблетирования или гранулят для изготовления виброуплотненных ТВЭЛов. Гексафторид урана очищают от следов PuF_6 и части PDF_n , образующих прочные фторокомплексы с фторидами щелочных металлов, на сорбенте NaF, конденсируют и подвергают двухступенчатой ректификационной очистке от оставшихся «легколетучих» фторидов ПД (MoF_6 , TeF_6 и др.), после чего в транспортных ёмкостях направляют на разделительное производство или на изготовление топлива.

В настоящее время в ядерной энергетике используют низкообогащенный уран и начинают применять реакторный плутоний. Замкнутый топливный цикл уменьшает потребности в природном уране (возврат «недогоревшего» на АЭС ^{235}U) и полностью использует плутоний, повышая экономические показатели ядерной энергетике.

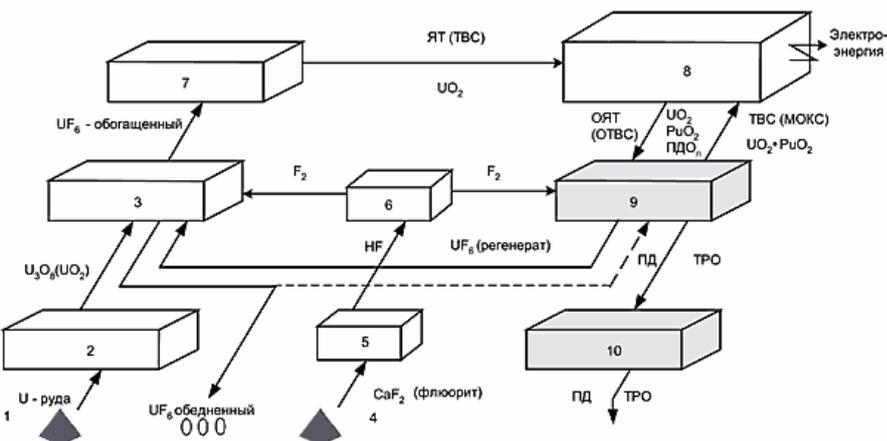


Газофторидные процессы широко применяются при производстве исходного топлива. Для унификации процессов всего замкнутого ЯТЦ остается применить газофторидные процессы и на радиохимической стадии переработки ОЯТ. Для этого надо провести фторирование ОЯТ с получением UF_6 , PuF_6 (и фторидов ПД), выделить PuF_6 с частью UF_6 (без их разделения) и изготовить из них методом пирогидролиза МОКС-топливо для возврата в реакторы БН или ВВЭР, а оставшуюся часть UF_6 дополнительно очистить от ПД и направить на дообогащение по ^{235}U . В таком замкнутом ЯТЦ, организованном на базе газофторидных процессов, участвуют четыре главных «действующих лица» – уран, кислород, фтор и появляющийся плутоний, причем в кругообороте, кроме ДМ, участвует и фтор.

Рис. 273. Схема основных процессов и операций газофторидной переработки ОЯТ. Замкнутый топливный цикл ядерной энергетики на основе газофторидных процессов.

Описанные выше операции могут лечь в основу радиохимического завода с неводной технологией переработки ОЯТ энергетических реакторов на быстрых нейтронах и ВВЭР. Из известных неводных процессов регенерации только газофторидная технология позволяет обеспечить требуемую производительность, выход и качество регенерированного топлива или ДМ при использовании простых реагентов и сорбентов, образование минимального количества твердых радиоактивных отходов, повышение ядерной безопасности радиохимического производства и резкое сокращение его негативного воздействия на окружающую среду. Кроме того, в связи с тем, что в большинстве процессов и операций в основном участвует практически только гексафторид урана (без разбавителей) в газообразном, твердом и жидком

- существующие производства и АЭС
- необходимо создавать



состоянии, применяемое оборудование и его размещение очень компактны.

Рис. 274. Газофторидные технологии в урановом топливном цикле.

1 - добыча урановой руды или подземное выщелачивание; 2 - переработка руды (раствором), получение оксидов урана; 3 - производство UF_6 из оксидов урана, обогащение по $U-235$; 4 - добыча флюорита; 5 - производство HF ; 6 - производство F_2 ; 7 - производство обогащенного UO_2 из UF_6 , изготовление таблеток UO_2 твзлов и ТВС; 8 - АЭС с реакторами ВВЭР и БН; 9 - газофторидная регенерация ОЯТ, переработка РАО, получение МОКС-топлива из $UF_6 + PuF_6$, изготовление твзлов и ТВС; 10 - хранение и захоронение ТРО.