

В.А. Карелин, А.Н. Страшко

ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА



МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ
Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
**«НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ
ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ»**

В.А. Карелин, А.Н. Страшко

ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

*Рекомендовано в качестве учебного пособия
Редакционно-издательским советом
Томского политехнического университета*

Издательство
Томского политехнического университета
2018



УДК 621.039.59(075.8)

ББК 35.36я73

К22

Карелин В.А.

К22 Технология переработки облученного ядерного топлива : учебное пособие / В.А. Карелин, А.Н. Страшко ; Томский политехнический университет. – Томск : Изд-во Томского политехнического университета, 2018. – 89 с.

ISBN 978-5-4387-0822-3

В пособии изложены основы процессов предварительной подготовки облученного ядерного топлива (ОЯТ) к экстракционной переработке. Приведено описание процессов транспортировки и хранения ОЯТ. Рассмотрены способы подготовки ОЯТ к экстракции. Изучены особенности процессов растворения ОЯТ без материала оболочки, совместного растворения топливных материалов и оболочек твэлов, а также конструкции аппаратов для растворения ядерного топлива.

Предназначено для студентов, обучающихся по направлению 240501 «Химическая технология материалов современной энергетики».

УДК 621.039.59(075.8)

ББК 35.36я73

Рецензенты

Доктор технических наук, профессор СТИ НИЯУ МИФИ

В.Л. Софронов

Кандидат технических наук начальник конструкторского отдела

ООО «Корпорация ядерных контейнеров»

А.П. Евтушенко

ISBN 978-5-4387-0822-3

© ФГАОУ ВО НИ ТПУ, 2018

© Карелин В.А., Страшко А.Н., 2018

© Оформление. Издательство Томского
политехнического университета, 2018



ВВЕДЕНИЕ

Радиохимическая переработка облученного ядерного топлива (ОЯТ) АЭС является относительно молодой развивающейся отраслью промышленности, зависящей от развития ядерной энергетики. Перед технологией переработки ставятся все новые задачи, выдвигаемые ядерной энергетикой.

За последнее десятилетие ядерная энергетика получила существенное развитие во многих странах. Увеличилась выработка электроэнергии на АЭС стран, имевших их уже к 80-м гг. В настоящее время в 31 стране мира эксплуатируется 192 атомных электростанции с 451 энергоблоком общей электрической мощностью около 394 836 МВт. 58 энергоблоков находится в стадии строительства. Процесс замкнутого ядерного топливного цикла (ЯТЦ) с рециклом плутония и урана применяется в промышленном масштабе во Франции на заводах UP2-500 и UP3. Поэтому в радиохимической промышленности, ранее занятой переработкой лишь облученного уранового топлива, стала актуальной проблема увеличения масштабов получения смешанных оксидов урана и плутония для последующего изготовления из них твэлов и переработки смешанного топлива (МОХ-топлива) после повторного выжигания его в энергетических реакторах.

В технологии переработки ОЯТ предложены новые способы решения отдельных задач, разработаны новые типы оборудования. Практическое воплощение получили автоматизированные дистанционные системы контроля и управления технологическим процессом.

За последние годы количество книг, посвященных отдельным проблемам ЯТЦ, резко сократилось, однако проблема переработки ОЯТ АЭС сейчас стоит очень остро, поскольку в госкорпорации «Росатом» строятся опытно-демонстрационные центры по переработке ОЯТ АЭС. Поэтому авторы сочли целесообразным подготовить учебное пособие, в котором приведены сведения о новых проблемах и разработках в технологии переработки ОЯТ.

Крупномасштабная ядерная энергетика может эффективно развиваться только на основе замкнутого ЯТЦ с воспроизводством ядерного топлива – плутония – и включением его в топливный цикл.

Регенерация ядерного топлива является основной задачей радиохимической технологии переработки отработавших твэлов АЭС.

ОЯТ выгружают из реакторов в виде сборок твэлов с высоким уровнем радиоактивности. Захоронение таких сборок в необработанном виде (открытый ЯТЦ) и обеспечение их долговременной изоляции от биосферы представляют значительные технические трудности, главная

из которых – устранение возможности высвобождения радионуклидов в случае разрушения твэлов при их длительном хранении.

В процессе химической переработки твэлов после выделения урана и плутония основная масса радионуклидов концентрируется в относительно небольших объемах высокоактивных сбросных растворов. Дальнейшая химическая переработка этих растворов направлена на их отверждение с прочной фиксацией радионуклидов. Наиболее интенсивно разрабатываются способы перевода высокоактивных растворов в стеклоподобные композиции различного состава. Остеклованные радиоактивные отходы обладают достаточной химической, термической и механической стойкостью и в настоящее время признаны наиболее пригодными для надежного вечного захоронения в геологических формациях для полной их изоляции от биосферы.

Развитие радиохимической технологии привело в последнее время к тенденции комплексного подхода к переработке ОЯТ. Известно, что среди радиоактивных продуктов содержится большое количество весьма ценных радионуклидов, которые могут широко использоваться в так называемой малой ядерной энергетике (радиоизотопные источники тепла для термогенераторов электроэнергии), а также для изготовления источников ионизирующего излучения различного назначения. Комплексная переработка ОЯТ предполагает, что радиохимическая технология должна обеспечивать извлечение не только делящихся материалов, но и других радионуклидов, полезных с практической точки зрения или представляющих научный интерес (стронция, цезия, технеция, редкоземельных и платиновых элементов, нептуния, америция, кюрия и т. п.).

Из стратегии развития ядерной энергетики следует, что в настоящее время основная задача радиохимической промышленности – переработка топлива энергетических реакторов на тепловых нейтронах с последующим переходом к переработке топлива реакторов на быстрых нейтронах (РБН) в промышленном масштабе.

Экономическая оценка показала, что оптимальная производительность радиохимического завода, перерабатывающего ОЯТ АЭС, составляет 1200...1800 т U/год. Такой завод может обеспечить переработку топлива, выгружаемого на АЭС, общей мощностью 40...50 ГВт (эл). Несмотря на то, что рентабельность перерабатывающих заводов с меньшей производительностью ниже, на практике иногда оказывается оправданным строительство заводов меньшей мощности (в соответствии с потребностями страны) – 400...800 т/год.

В отношении ЯТЦ реакторов на быстрых нейтронах концепция централизованного перерабатывающего завода не столь очевидна, как в случае ЯТЦ с реакторами на тепловых нейтронах. Одно из основных

требований к ЯТЦ реакторов на быстрых нейтронах – минимальное «за-
даживание» (задержка) делящихся материалов во внешнем топливном
цикле. Поэтому применительно к РБН, наряду с концепцией централи-
зованной переработки ОЯТ, развивается концепция локализованных
комплексов АЭС общей мощностью 6...12 ГВт (эл.) и установок реге-
нерации топлива и изготовления твэлов, обеспечивающих возвращение
топлива в ЯТЦ.

В учебном пособии рассмотрены современные технологические
решения процесса переработки ОЯТ АЭС по отдельным узлам техноло-
гических схем, технические разработки, а также проблемы, направлен-
ные на усовершенствование технологических процессов с учетом осо-
бенностей переработки разных видов топлива.

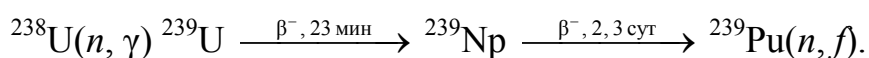


1. ХАРАКТЕРИСТИКИ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА И ЗАДАЧИ РАДИОХИМИЧЕСКОЙ ТЕХНОЛОГИИ

1.1. Ядерный топливный цикл

В зависимости от того, какие делящиеся материалы используют в ядерном реакторе, возможно осуществление трех типов ЯТЦ.

1. Если в ядерном реакторе применяют топливо, в котором делящимся материалом является ^{235}U , а воспроизводящим – ^{238}U , то говорят об осуществлении уранового ЯТЦ. Воспроизводство делящегося материала происходит в реакторе в результате побочной ядерной реакции (n, γ) на ^{238}U с образованием радионуклидов, цепочка распадов которых приводит к образованию делящегося нуклида ^{239}Pu :



Урановое топливо может быть изготовлено из природного (примерно 0,7 % ^{235}U), низкообогащенного (1...5 % ^{235}U) или высокообогащенного (до 93 % ^{235}U) урана. Природный и низкообогащенный уран используют в реакторах на тепловых нейтронах, высокообогащенный уран – в активной зоне реакторов на быстрых нейтронах, работающих в конвертерном режиме.

2. 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 отвального урана. Отвальный уран в дальнейшем может быть использован как воспроизводящий материал в реакторах на быстрых нейтронах. При использовании для загрузки ядерных реакторов низкообогащенного урана отработавшее топливо обычно содержит около 1 % ^{235}U . Такой уран может быть дообогащен до первоначального содержания его в ядерном топливе и возвращен в ЯТЦ.

3. 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 природному или обедненному урану добавляется ^{239}Pu в количестве, эквивалентном соответствующему обогащению топлива по ^{235}U , то реализуется уран-плутониевый цикл (см. рис. 1.1). Смешанное уран-плутониевое топливо может быть использовано как в реакторах на тепловых нейтронах, так и в активной зоне реакторов на быстрых нейтронах. Таким образом, уран-плутониевое топливо обеспечивает максимально полное использование урановых ресурсов и расширенное воспроизводство делящегося материала.



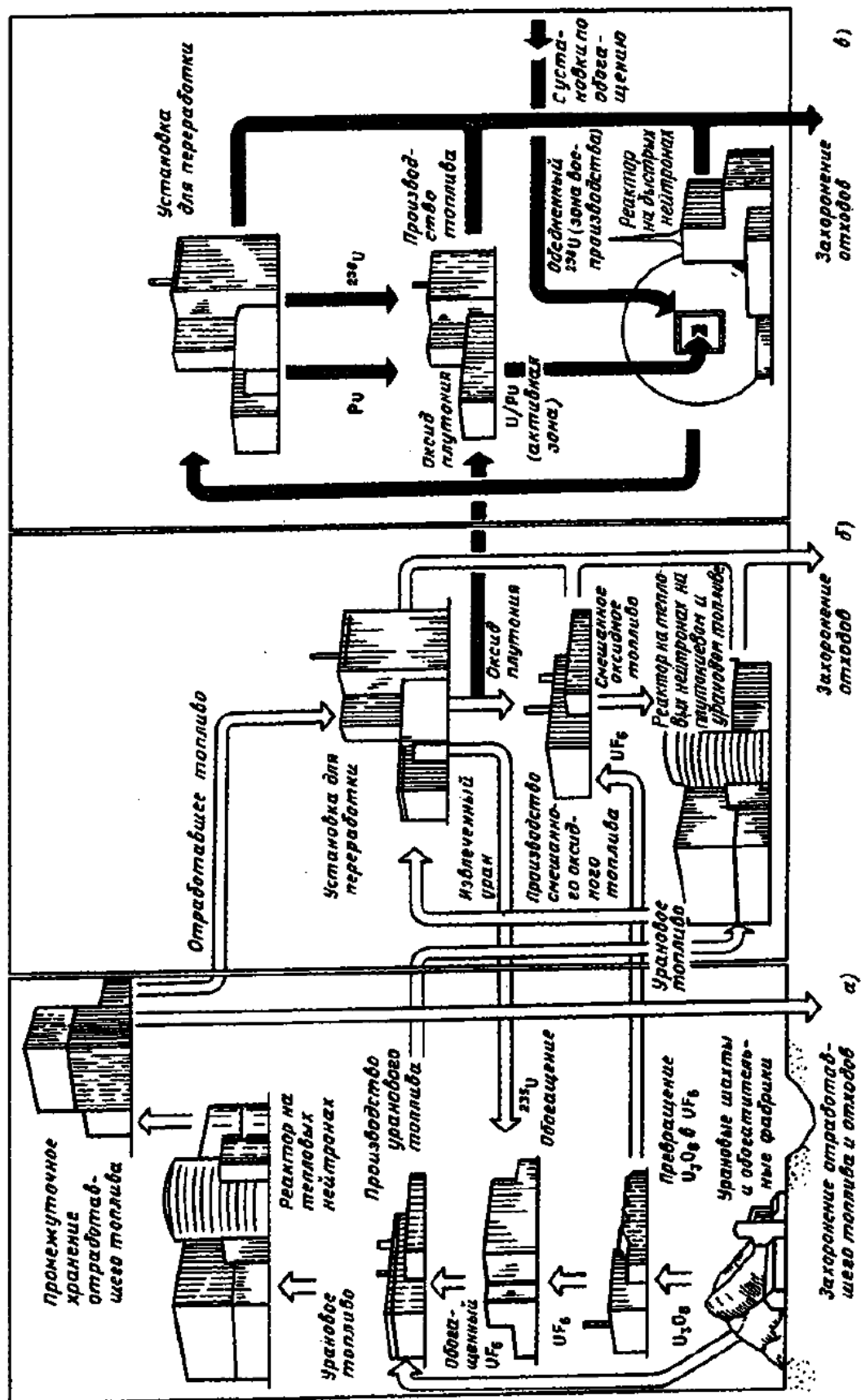
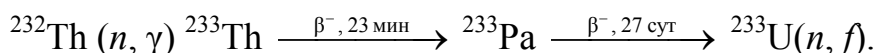


Рис. 1.1. Схема замкнутого ЗВЦ (а), ЯТЦ реактора на тепловых нейтронах с повторным использованием топлива (б) и ЯТЦ реактора на быстрых нейтронах (в)

В уран-ториевом топливе делящимся материалом может служить ^{235}U или ^{233}U . Торий является воспроизводящим материалом:



В настоящее время уран-ториевое топливо в промышленном масштабе не используют. В качестве воспроизводящего материала применяют лишь ^{238}U , из которого получается ^{239}Pu . Однако торий рассматривается как перспективный воспроизводящий материал, особенно с учетом того, что природные его запасы примерно в 5 раз больше природных запасов урана.

Каждый из вариантов ЯТЦ можно реализовать с использованием реакторов определенного типа. Ниже приводится перечень наиболее типичных ядерных реакторов, которые уже широко распространены или считаются перспективными для использования в ядерной энергетике.

Реакторы на тепловых нейтронах (РТН):

- 1) легководные водо-водяные энергетические реакторы (LWR):
 - а) водо-водяные энергетические реакторы под давлением (ВВЭР, PWR);
 - б) водо-водяные энергетические реакторы кипящего типа (ВК, BWR);
- 2) тяжеловодные водо-водяные реакторы (HWR):
 - а) кипящие тяжеловодные реакторы (BHW или BHWR);
 - б) тяжеловодные реакторы под давлением (PHW или PHWR);
 - в) тяжеловодный парогенерирующий реактор (SGHWR);
- 3) газоохлаждаемые реакторы:
 - а) газоохлаждаемые реакторы с графитовым замедлителем (GGR);
 - б) усовершенствованные газоохлаждаемые реакторы (AGR);
 - в) высокотемпературные газоохлаждаемые реакторы (HTGR);
- 4) реакторы смешанного типа:
 - а) легководные кипящие реакторы канального типа с графитовым замедлителем, например РБМК (реактор большой мощности канального типа);
 - б) тяжеловодные газоохлаждаемые реакторы (GCHWR).

Реакторы на быстрых нейтронах (РБН, FBR):

- а) реакторы с жидкометаллическим теплоносителем (LMFBR);
- б) реакторы с газовым теплоносителем (GCBR).

Некоторые характеристики ядерного топлива, использующегося в энергетических реакторах, приведены в табл. 1.1 [1, 2].



Таблица 1.1

Характеристика ядерного топлива энергетических реакторов

Характеристика топлива	Реакторы на тепловых нейтронах							Реакторы на быстрых нейтронах	
	Легководные водо-водяные		Тяжеловодные водо-водяные		Газоохлаждаемые				Смешанного типа (РБМК)
	ВВЭР, PWR	ВК, BWR	HWR	SGHWR	GGR	AGR	HTGR		
Вид топлива	UO ₂ (U, Pu)O ₂	UO ₂	UO ₂ U _{мет} Th	UO ₂	U _{мет} UO ₂	UO ₂	(U, Th)O ₂ (U, Th)C ₂	U _{мет} UO ₂	UO ₂ (U, Pu)O ₂
Делящиеся материалы: содержание в исходном топливе ²³⁵ U, %	3...4,5	2...3	Природ- ный	1,8...2,2	Природ- ный	1,6	~10 или 93	1,6...2,4	20...30 % PuO ₂
Содержание в отработавшем топливе ²³⁵ U, %	0,7...1,3	0,8...0,9	0,2...0,3	0,8	0,2...0,3	0,7...0,9	~50	0,3...0,4	...
Глубина выгорания, МВт·сут/т	12 000... 40 000	До 30 000	7000... 9300	19 000... 21 000	2900... 4200	18 000	100 000... 130 000	18 000... 30 000	60 000... 120 000



1.2. Основные характеристики облученного ядерного топлива

Для технологии регенерации ядерного топлива чрезвычайно важны характеристики выгружаемого из реакторов топлива: его 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, временем выдержки топлива после выгрузки его из реактора, а также типом реактора.

Под выгоранием ядерного топлива понимают деление ядер урана или плутония с высвобождением энергии и образованием осколочных нуклидов. Накопление большого количества продуктов деления приводит к нарушениям режима работы реактора. Так, среди осколочных продуктов имеются нуклиды с большим сечением захвата нейтронов, например ^{135}Xe , ^{149}Sm , которые называют «нейтронными ядами», т. к. накопление этих продуктов может привести к резкому уменьшению плотности потока нейтронов в активной зоне реактора и в конечном счете к прерыванию цепной ядерной реакции. Нарушение режима работы реактора может наступить также за счет накопления в твэлах газообразных продуктов. При высокой температуре внутри реактора это приводит к резкому повышению давления внутри твэлов и, как результат, к распуханию и разрушению оболочек твэлов. Поэтому реактор не может работать на одной загрузке до полного выгорания топлива. После определенного периода времени, называемого кампанией реактора, первоначально загруженное ядерное топливо должно быть выгружено из реактора и заменено свежим. Кампания реактора зависит от конструкции реактора и от вида ядерного топлива. В современных энергетических реакторах на тепловых нейтронах она составляет 2–4 года, в реакторах на быстрых нейтронах – меньше года.

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.

С учетом того, что тепловая энергия одного акта деления ^{235}U составляет 190 МэВ и что 1 эВ/атом соответствует 69,3 кДж/моль, можно считать, что при «сгорании» 1 г ^{235}U выделяется энергия

$$E_{\text{тепл}} = \frac{190 \cdot 10^6 \cdot 69,3}{235} = 5,60 \cdot 10^7 \text{ кДж/г } ^{235}\text{U},$$



или

$$E_{\text{тепл}} = 5,60 \cdot 10^7 \cdot 1,16 = 6,5 \cdot 10^7 \cdot \text{Вт ч/Г} = \\ = 2,89 \text{ МВт} \cdot \text{сут/Г} = 7,92 \cdot 10^{-3} \text{ МВт} \cdot \text{год/Г}.$$

КПД современных энергетических ядерных реакторов составляет примерно 30 % (± 10 %). Это означает, что для обеспечения электрической мощности 1000 МВт необходим реактор с тепловой мощностью примерно 3300 МВт, т. е. в течение одного года должно выгореть около 1,3 т ^{235}U . В реальных условиях уранового топливного цикла это значение ниже, т. к. в выработку энергии существенный вклад 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 деления ядер 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 примерно 50 % [3].

С учетом деления ^{239}Pu в реактор мощностью 1000 МВт (эл.) необходимо загрузить около 670 кг/год ^{235}U , что при 3%-м обогащении соответствует примерно 22 т U. При продолжительности кампании, равной 3 годам, загрузка должна составить около 66 т U. Чтобы при этом обеспечить глубину выгорания 3 %, начальное обогащение ^{235}U должно быть 3,5...4,5 %. Загруженные 66 т U должны быть в течение трех лет заменены свежим топливом. Поэтому из легководного реактора мощностью 1000 МВт (эл.) выгружается и поступает на переработку 20...30 т U в год.

Тепловая энергетическая мощность реактора составляет 3300 МВт (тепл.) $\cdot 365 = 1,2 \cdot 10^6$ МВт \cdot сут. Тогда, согласно определению, глубина выгорания равна $1,2 \cdot 10^6 / 30 = 40\,000$ МВт \cdot сут/т U.

Основные промышленные в России водо-водяные реакторы с электрической мощностью 1 ГВт (ВВЭР-1000) при загрузке 66 т U с обогащением 3,5...4,5 % рассчитаны на глубину выгорания топлива 27 000...40 000 МВт \cdot сут/т U [1]. В табл. 1.2 приведен пример изменения состава топлива, облучаемого в течение трехлетней кампании [4].

Коэффициент воспроизводства характеризует количество вторичного делящегося материала, образующегося при работе реактора, 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.



Таблица 1.2

Изменение состава топлива легководного реактора в результате облучения [4]

Состав топлива до облучения в реакторе	Количество выгоревшего топлива	Состав облученного топлива
^{238}U 967 кг ^{235}U 33кг	^{238}U 24 кг ^{235}U 25кг	^{238}U 943 кг ^{235}U 8 кг ^{236}U 4,6 кг Изотопы плутония 8,9 кг ^{237}Np 0,5 кг ^{243}Am 0,12 кг ^{244}Cm 0,04 кг Осколочные нуклиды 35 кг
Всего 1000 кг Обогащение 3,3 %	Всего 49 кг	

Из упомянутых выше типов реакторов наибольший коэффициент воспроизводства имеют реакторы на быстрых нейтронах. Коэффициент воспроизводства проектируемых и построенных в России реакторов на быстрых нейтронах типа БН-600 по расчетам составляет 1,4...1,5 [1]. В реакторах на быстрых нейтронах во Франции («Феникс», «Суперфеникс»), в Великобритании (PFR) и в Германии (KKW, SNR-300) коэффициент воспроизводства составляет 1,1...1,2.

Из реакторов на тепловых нейтронах наибольший коэффициент воспроизводства имеют тяжеловодные реакторы, а также газоохлаждаемые реакторы с графитовым замедлителем (примерно 0,7...0,8). Легководные водо-водяные реакторы имеют наименьший коэффициент воспроизводства (0,5...0,6) [5].

Указанные значения коэффициента воспроизводства делящихся материалов соответствуют 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 значительную долю активности выгружаемого из реактора топлива. Поэтому свежетыгруженное топливо до переработки 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 отработав-



шего ядерного топлива и уменьшает набор элементов, от которых должны быть очищены основные продукты. После двух-трехлетней выдержки активность облученного топлива определяют лишь долгоживущие продукты деления и α -активные трансурановые элементы.

В табл. 1.3–1.5 приведен типичный радиохимический состав отработавшего топлива реакторов на тепловых и быстрых нейтронах [6, 7].

Таблица 1.3

Активность продуктов деления в отработавшем топливе легководного реактора (глубина выгорания 33 ГВт·сут/т)

Нуклид	Период полураспада	Активность при выдержке, Бк/т		
		0,5 года	1 год	10 лет
^{85}Kr	10,8 года	$4,1 \cdot 10^{14}$	$4,1 \cdot 10^{14}$	$2,3 \cdot 10^{14}$
^{90}Sr	29 лет	$2,96 \cdot 10^{15}$	$2,9 \cdot 10^{15}$	$2,3 \cdot 10^{14}$
^{90}Y	2,6 сут	$2,96 \cdot 10^{15}$	$2,9 \cdot 10^{15}$	$2,3 \cdot 10^4$
^{91}Y	57 сут	$4,8 \cdot 10^{15}$	$5,5 \cdot 10^{14}$	–
^{95}Zr	65 сут	$8,1 \cdot 10^{15}$	$1,1 \cdot 10^{15}$	–
^{95}Nb	35 сут	$1,6 \cdot 10^{16}$	$2,4 \cdot 10^{15}$	–
^{106}Ru	369 сут	$1,4 \cdot 10^{16}$	$9,6 \cdot 10^{15}$	$2 \cdot 10^{13}$
^{106}Rh	30 с	$1,4 \cdot 10^{16}$	$9,6 \cdot 10^{15}$	$2 \cdot 10^{13}$
^{125}Sb	2 года	$2,7 \cdot 10^{14}$	$2,4 \cdot 10^{14}$	$2,4 \cdot 10^{13}$
^{125m}Te	58 сут	$1,1 \cdot 10^{14}$	$1 \cdot 10^{14}$	$9,6 \cdot 10^{12}$
^{127m}Te	105 сут	$1,9 \cdot 10^{14}$	$5,9 \cdot 10^{13}$	–
^{129}I	$1,7 \cdot 10^7$ лет	$1,2 \cdot 10^9$	$1,2 \cdot 10^9$	$1,2 \cdot 10^9$
^{134}Cs	2,3 года	$7,0 \cdot 10^{14}$	$5,9 \cdot 10^{14}$	$2,8 \cdot 10^{14}$
^{137}Cs	30 лет	$3,7 \cdot 10^{15}$	$3,6 \cdot 10^{15}$	$2,9 \cdot 10^{14}$
^{137m}Ba	156 с	$3,7 \cdot 10^{15}$	$3,6 \cdot 10^{15}$	$2,9 \cdot 10^{15}$
^{144}Ce	284 сут	$2,9 \cdot 10^{16}$	$1,8 \cdot 10^{16}$	$6,3 \cdot 10^{12}$
^{144}Pr	17 мин	$2,9 \cdot 10^{16}$	$1,8 \cdot 10^{16}$	$6,3 \cdot 10^{12}$
^{147}Pr	2,6 года	$4 \cdot 10^{15}$	$3,5 \cdot 10^{15}$	$3,2 \cdot 10^{14}$
^{154}Eu	8,8 года	$2,2 \cdot 10^{14}$	$2,1 \cdot 10^{14}$	$1,4 \cdot 10^{14}$
^{155}Eu	1,7 года	$2,1 \cdot 10^{14}$	$1,7 \cdot 10^{14}$	$5,5 \cdot 10^{12}$
Другие нуклиды	–	$1,6 \cdot 10^{16}$	$6,7 \cdot 10^{14}$	$6,3 \cdot 10^{13}$
Сумма	–	$1,5 \cdot 10^{17}$	$8,5 \cdot 10^{16}$	$1,2 \cdot 10^{16}$



Таблица 1.4

Содержание некоторых осколочных элементов в топливе водо-водяного реактора при различном времени выдержки, г/1 т топлива (глубина выгорания 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	12	107	96	8,7
Sm	803	808	824	904
Eu	182	182	180	164
Gd	102	103	105	123

Таблица 1.5

Концентрация актиноидов в отработавшем топливе, г/т U [8]

Нуклид	Реактор на тепловых нейтронах*	Реактор на быстрых нейтронах**	Нуклид	Реактор на тепловых нейтронах*	Реактор на быстрых нейтронах**
²³⁵ U	8000	7000	²⁴² Pu	340	9020
²³⁶ U	4520	1000	²³⁷ Np	450	180
²³⁸ U	940 000	719 000	²⁴¹ Am	50	1460
²³⁸ Pu	168	1840	²⁴³ Am	92	711
²³⁹ Pu	5300	117 000	²⁴² Cm	8	42,3
²⁴⁰ Pu	2140	52 400	²⁴⁴ Cm	31	41,9
²⁴¹ Pu	1100	14 400			

* Глубина выгорания 33 ГВт·сут/т.

** Глубина выгорания 80 ГВт·сут/т.

1.3. Особенности и основные процессы переработки отработавшего ядерного топлива АЭС

Отработавшее ядерное топливо выгружают из реактора, выдерживают в специальных хранилищах и затем транспортируют на завод переработки.

Первая стадия радиохимического производства связана с подготовкой топлива к переработке. Она заключается во вскрытии ядерного топлива, т. е. в освобождении его от конструкционных деталей сборок и



разрушении защитных оболочек твэлов, после чего топливная композиция становится доступной для воздействия химических реагентов.

Следующая стадия связана с переводом ядерного топлива в ту фазу, из которой будет производиться его химическая переработка: в раствор, расплав или газообразное состояние.

Перевод в раствор обычно производят обработкой топлива азотной кислотой. При этом уран переходит в раствор в шестивалентном состоянии в виде иона уранила UO_2^{2+} , а плутоний – частично в шести- и в четырехвалентном состоянии в виде ионов PuO_2^{2+} и Pu^{4+} соответственно.

Перевод в газообразную фазу связан с образованием летучих галогенидов урана и плутония.

Все эти вопросы более детально рассмотрены в последующих разделах.

После перевода ядерного топлива в состояние, необходимое для химической переработки, проводят ряд операций, непосредственно связанных с выделением и очисткой целевых компонентов и выдачей каждого из них в форме товарного продукта.

Наиболее распространенными и типичными являются водно-экстракционные технологии переработки. Именно они составляют основу технологии радиохимических заводов. Предложено также проводить газофазное разделение и очистку урана и плутония. Эта технология разрабатывается прежде всего для топлива реакторов на быстрых нейтронах. Неводную технологию с использованием расплавов считают перспективной для регенерации топлива гомогенных реакторов, в активной зоне которых находятся расплавленные соли.

Основной целью работы энергетического ядерного реактора является производство перегретого пара для последующей выработки электроэнергии.

Поэтому режим работы реактора должен обеспечивать в активной зоне температуру до нескольких сот градусов. Это требует использования термостойких топливных композиций и конструкционных материалов. Условиям термостойкости удовлетворяют диоксиды урана и плутония UO_2 и PuO_2 , а также смешанные оксиды UO_2 , PuO_2 .

Перспективным считается топливо на основе карбидов UC , PuC , $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}$ и нитридов UN , PuN , $(\text{U}, \text{Pu})\text{N}$. Это топливо имеет большую по сравнению с оксидами теплопроводность.

Оболочки твэлов изготавливают также из термостойких, механически прочных и коррозионно-стойких материалов с высокой теплопроводностью.

Обычно это цирконий и его сплавы или нержавеющая сталь. Использование оболочек из циркония позволяет повысить температуру ак-



тивной зоны реактора до 540 °С, а из нержавеющей стали – до 800 °С и выше, в зависимости от ее состава. Однако большое содержание железа в конструкционных материалах приводит к необходимости увеличивать содержание 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. Возможно использование и других конструкционных материалов, однако все они должны отличаться химической стойкостью. Поэтому растворение их в процессе переработки представляет серьезную проблему.

Кроме делящихся материалов, твэлы могут содержать различные наполнители и покрытия, состоящие из нержавеющей стали, циркония, молибдена, кремния, графита, хрома и др. При обработке ядерного топлива азотной кислотой эти вещества не растворяются, и в полученном растворе образуется большое количество взвесей и коллоидов.

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

Глубина выгорания в энергетических реакторах на тепловых нейтронах составляет 15...40 ГВт·сут/т U, а в активной зоне реактора на быстрых нейтронах достигает 100 ГВт·сут/т U и выше. Поэтому на переработку поступают материалы с высоким содержанием осколочных радионуклидов и плутония на 1 т U. Это выдвигает высокие требования к процессам очистки получаемых продуктов, к обеспечению ядерной безопасности и охраны окружающей среды в процессе переработки. Дополнительные трудности связаны с необходимостью переработки и захоронения большого количества жидких высокоактивных отходов.

МАГАТЭ разработаны рекомендации по обеспечению безопасности эксплуатации радиохимических заводов, а также последующего хранения, транспортирования и использования полученных товарных продуктов и всех видов отходов. Согласно этим рекомендациям предусмотрено получение конечных товарных продуктов в твердом состоянии (оксидов урана и плутония), если они подлежат долгосрочному хранению или транспортированию, а также отверждение жидких высоко- и среднеактивных отходов. Утверждены международные нормы выбросов всех видов радионуклидов.

На рис. 1.2 представлена типовая схема переработки отработавшего топлива АЭС, исходя из которой отработавшее топливо АЭС транспортируют из бассейнов промежуточного хранения, расположенных на территории АЭС, в бассейны для приемки и буферного хранения топлива на перерабатывающем заводе. Эти бассейны-хранилища образуют



Переходя к рассмотрению наиболее типичных технологических решений по основным узлам типовой технологической схемы, подчеркнем, что дальнейшее совершенствование переработки ОЯТ направлено на решение следующих задач:

- создание эффективных процессов очистки и выделения урана и плутония в виде, пригодном для их использования в замкнутом ядерном топливном цикле, а также попутного извлечения других радионуклидов, имеющих практическое значение;
- разработку надежных методов локализации радиоактивных отходов для их последующей изоляции от биосферы;
- обеспечение радиационной безопасности персонала перерабатывающих заводов;
- обеспечение экологической безопасности производства в целом.

Вопросы к главе 1

1. Какие типы ядерных топливных циклов Вы знаете?
2. Сколько ^{235}U содержится в отвальном уране?
3. Как определить глубину выгорания ядерного топлива?
4. Какой состав имеет ОЯТ легководного реактора?
5. Что характеризует коэффициент воспроизводства?



2. ТРАНСПОРТИРОВАНИЕ И ХРАНЕНИЕ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА АЭС

2.1. Транспортирование облученного топлива

Заводы регенерации облученного топлива АЭС строят для обслуживания нескольких АЭС, расположенных в разных местах. Типовой завод производительностью 1000 т/год может обслужить 10...15 АЭС суммарной установленной мощностью 30...50 ГВт. Сложилась практика и имеются договоры о передаче ОЯТ на переработку в другие страны, например во Францию из Германии, Японии, Швеции и др. Отработавшее ядерное топливо АЭС восточноевропейских стран, а также АЭС Финляндии «Ловииса» транспортируют на переработку в Россию. Такие решения требуют транспортирования большого количества отработавшего ядерного топлива АЭС на значительные расстояния.

В настоящее время транспортирование облученного топлива во всем мире осуществляют тремя видами транспорта – автомобильным, железнодорожным и водным. Решение об использовании автомобильного или железнодорожного транспорта зависит от транспортных условий страны, наличия железнодорожных подъездных путей и соответствующего оборудования на АЭС, перерабатывающем заводе или в промежуточном хранилище, от размера и типа контейнеров, экономических соображений. Увеличение объема перевозок потребовало использования контейнеров массой 80...100 т, в связи с чем железнодорожный транспорт приобретает все возрастающее значение [9–15].

Наибольший объем перевозок ОЯТ осуществляется во Франции. Отработавшее ядерное топливо с АЭС Франции, а также Германии, Японии, Швеции, Швейцарии, Бельгии, Испании и Нидерландов поступает в хранилища радиохимического завода фирмы «Кожема» на м. Аг, где будет производиться его переработка. ОЯТ поступает на завод автомобильным, морским и железнодорожным транспортом. Перевозки металлического ОЯТ начались в 1966 г. с АЭС «Шенон», с 1973 г. начали транспортировать оксидное топливо от реакторов PWR и BWR перечисленных выше стран. К 1 января 1985 г. было перевезено около 10 тыс. т. урана: 6865 т металлического и 3375 т в виде диоксида. В ближайшие годы на завод на м. Аг будет завозиться примерно по 800 т/год ОЯТ, для чего требуется около 250 контейнеров в год. В перспективе ожидается увеличение перевозок до 1500 т/год.

В Великобритании транспортирование осуществляется в составе обычных грузовых железнодорожных поездов с нормальной скоростью. Во всех остальных западноевропейских странах большую роль при перевозках отработавшего топлива еще играет автомобильный транспорт.



В США отработавшее топливо от АЭС, не имеющих подъездных железнодорожных путей, перевозят в контейнерах массой до 40 т на автомашинах. Эти перевозки выполняют, главным образом, транспортные фирмы, которые имеют в своем распоряжении необходимые транспортные средства для контейнеров типа NaC-1, NFS-4, NLI-1/2, TN-8, TN-9 [15].

Перевозка морским транспортом обусловлена в первую очередь географическим расположением завода регенерации и АЭС, например перевозка между Западной Европой и Японией, а также в самой Японии. Небольшое количество отработавшего топлива, как правило, перевозят как отдельный груз на обыкновенных грузовых судах, железнодорожных паромов или на судах с горизонтальной загрузкой и разгрузкой. Первые специальные суда были использованы для перевозки магнококсового отработавшего топлива из Италии, а также для первых транспортировок отработавшего топлива легководных реакторов из Японии. Для транспортирования отработавшего топлива японских АЭС на заводы в Селлафилде (Великобритания) и на м. Аг (Франция) были заказаны и построены суда водоизмещением примерно 3000 т, которые могут за каждый рейс перевозить 60 т отработавшего топлива. На этих судах для предотвращения больших аварий обеспечено выполнение требований безопасности: установлено специальное оборудование, служащее в первую очередь для поддержания нормального транспортного режима (температуры, мощности дозы излучения), а также для крепления контейнеров и снижения риска от транспортных происшествий (столкновения судна, выбрасывания на мель, опрокидывания, пожара и т. п.). С декабря 1977 г. между японскими АЭС и перерабатывающим заводом в Токаи Мура курсирует переоборудованное специальное судно *Hinoura-Maru*.

В России и других восточноевропейских странах наиболее удобна и экономична перевозка железнодорожным транспортом, т. к. имеется разветвленная сеть железных дорог и подъездные пути есть почти на всех АЭС. Кроме того, затраты по сравнению с автомобильным транспортом ниже, а одним железнодорожным эшелоном можно вывезти годовую выгрузку отработавшего топлива АЭС с установленной мощностью 1 ГВт.

Согласно «Правилам безопасной перевозки радиоактивных веществ» (Вена, МАГАТЭ, 1985 г.) упаковочные комплекты по уровню их безопасности подразделяют на несколько типов.

Упаковочные комплекты типа В(М) удовлетворяют с точки зрения прочности, герметичности, защиты от излучений, теплоотвода без применения принудительных средств охлаждения всем требованиям правил МАГАТЭ. Безопасность перевозки полностью обеспечивается конструкцией упаковочного комплекта.



Упаковочные комплекты типа В(М) могут не удовлетворять одному или нескольким из особых дополнительных требований, предусмотренных «Правилами». В связи с этим для обеспечения безопасных перевозок предусматривают меры административного характера, дополнительный контроль и обслуживание в процессе перевозки. Указанные меры оговаривают в разрешении на эксплуатацию, выдаваемом компетентным органом.

Транспортирование отработавшего топлива производится по дорогам через населенные пункты, поэтому чрезвычайно важное значение имеет обеспечение безопасности перевозок: обеспечение сохранности сборок твэлов в пути (исключение условий их разрушения при ударе, нагреве и т. п.), ядерной безопасности, радиационной безопасности.

Конструкция упаковочных комплектов (контейнеров, чехлов, пеналов) должна обеспечивать их сохранность не только при нормальных режимах, но и в условиях возможных аварий. При расчете контейнера на прочность в качестве наиболее опасной ситуации рассматривают падение контейнера с высоты 9 м на жесткое основание. Допускают также возможность падения контейнера на штырь с высоты 1 м и пребывание в очаге пожара при температуре 800 °С в течение 30 мин. Как показывает опыт, наиболее опасно падение контейнеров с высоты 9 м на крышку, а также плашмя на образующую корпуса. Необходимая прочность должна обеспечиваться в интервале температуры окружающего воздуха от –40 до +38 °С.

Конструкция упаковочного комплекта должна обеспечивать теплоотвод. При этом рассматривают два источника тепла: остаточное тепловыделение отработавших сборок и солнечную радиацию. Предельно допустимой температурой наружной поверхности контейнера считают 85 °С. Температура внутри контейнера нормами и правилами не оговаривается. Однако при сухом способе перевозки она должна быть значительно ниже температуры плавления или разрушения оболочек твэлов, а при перевозке в водозаполненных контейнерах температура воды не должна превышать значений, которые могут привести к превышению допустимого давления в контейнере.

При транспортировании твэлов в водозаполненных контейнерах необходимо предусматривать сжигание гремучей смеси (H_2+O_2), образующейся за счет радиолиза воды. В таких контейнерах должен быть достаточный свободный объем, воспринимающий расширение воды при ее нагревании.

Радиационная безопасность обеспечивается соответствующей биологической защитой, предназначенной для поглощения γ -излучения, а также нейтронного излучения от ТВС с большой глубиной выгорания



(более 20 ГВтсут/т). Уровень излучения в любой точке внешней поверхности контейнера не должен превышать 2 Дж/кг, а на расстоянии 2 м – 0,1 Дж/кг. Конструкция контейнера должна обеспечивать достаточную герметичность. Транспортный упаковочный комплект соответствует правилам, если в результате испытаний общая потеря радиоактивных материалов не превышает допустимого уровня ($1,5 \cdot 10^7$ Бк за одну неделю для упаковок типа В(U) и $1,5 \cdot 10^{10}$ Бк за одну неделю для упаковок типа В(M)).

При разработке конструкции транспортного упаковочного комплекта должны быть обеспечены такие условия ядерной безопасности, чтобы в любых предвидимых ситуациях перевозки не могла возникнуть самопроизвольная цепная реакция [10].

Головные образцы разрабатываемых транспортных контейнеров испытывают на стендах на соответствие их типу В. В Ок-Риджской лаборатории в США имеется стенд для испытания на падение контейнеров массой до 100 т с высоты 46 м, в Берлине – стенд для испытаний на падение 100-тонных контейнеров и огневого испытания, во Франции – стенд для огневого испытания при температуре до 1000 °С в течение 1,5 ч.

Наибольших успехов в создании транспортных контейнеров за рубежом добились Франция и Германия. Во Франции транспортирование осуществляется в контейнерах TN («Транснуклеар») и LK («Лемер»). В 1985 г. в эксплуатации находилось около 60 контейнеров, большинство из них типа TN (рис. 2.1). Существует несколько разновидностей контейнеров TN и LK. Все они имеют сертификаты с индексом В(U), т. е. удовлетворяют всем требованиям правил МАГАТЭ.

Корпуса контейнеров типа TN изготавливают из стальных поковок. Обечайка куется целиком, дно приваривается. Изнутри контейнер облицован нержавеющей сталью, внешние части контейнера (цапфы и т. п.) выполнены также из нержавеющей стали [15]. Средняя наружная часть контейнера покрыта медными никелированными ребрами для улучшения теплоотдачи. Ребра изготавливают из множества пластин толщиной 3 мм, высотой 330 мм. Каждая такая пластина разрезается по высоте на полосы шириной 200 мм, образующие ребра, которые повернуты на 90° (одна пластина – 60 ребер). Всего на контейнере 20...30 тыс. ребер. Дно и крышка контейнера имеют амортизаторы из бальсового дерева, заключенного в оболочку из нержавеющей стали.

Корпуса контейнеров LK изготавливают из нескольких обечаек, вставляемых одна в другую, пространство между которыми заливается свинцом. Нейтронную защиту набирают из большого количества металлических емкостей, заполненных водным раствором борной кислоты. В нормальных условиях перевозки температура жидкости в емкостях не



превышает 150 °С. В условиях пожара температура возрастает, давление в емкости увеличивается и при температуре 220 °С плоские днища деформируются так, что у одного из днищ отрывается патрубок. Жидкость из емкости испаряется. Тепловое воздействие пожара на контейнер, таким образом, снижается в результате охлаждения жидкости при испарении и уменьшения теплопередачи через пустые емкости.

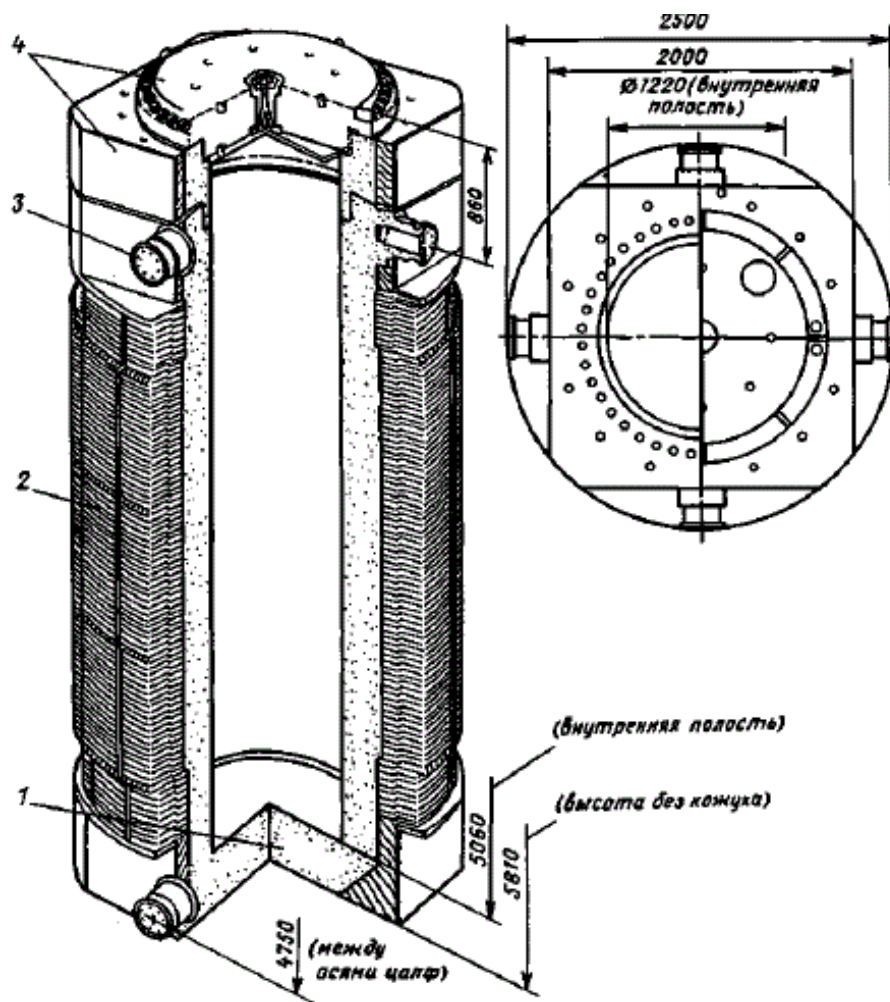


Рис. 2.1. Контейнер TN 13/1:

1 – корпус контейнера; 2 – оребрение; 3 – цапфа; 4 – крышки

Во Франции хранилища большинства АЭС с легководными реакторами рассчитаны на выдержку топлива только в течение 8...9 мес. При этом остаточное тепловыделение одной сборки составляет 8...10 кВт, суммарное при 12 сборках – 100...120 кВт. Хотя переработка ОЯТ производится после трех и более лет выдержки, сборки приходится возить с указанной выдержкой и большим тепловыделением. При испытании контейнера TN-12, загруженного сборками с тепловыделением 120 кВт, температура наружной поверхности ребер контейнера достигала 140 °С в верхней части контейнера и 60 °С в нижней при температуре корпуса



190 °С. Температура сборок при этом составляла 450...510 °С, но могла быть и выше (до 600 °С).

Испытания показали, что для обеспечения температуры наружной поверхности контейнера 85 °С (в соответствии с правилами МАГАТЭ) и температуры сборок из циркония не выше 400 °С остаточное суммарное тепловыделение сборок в контейнере не должно превышать 60 кВт.

Во Франции для транспортирования ОЯТ разрабатывали водо- и газозаполненные контейнеры массой от 36 до 104 т. В настоящее время принята ориентация на большегрузные газозаполненные контейнеры TN-12 и TN-13 (см. рис. 2.1). При загрузке и разгрузке под водой на контейнер предварительно надевают «рубашку» для предохранения обрешеченной поверхности от радиоактивных загрязнений. «Рубашку» изготавливают из нержавеющей стали и надежно уплотняют снизу и сверху прокладками из дюритовых шлангов за счет накачки воздухом. Во внутреннюю полость «рубашки» заливают чистую воду, которая обеспечивает дополнительную биологическую защиту при погрузке и разгрузке.

Транспортные средства, обслуживающие завод на м. Аг, стандартизованы по многим параметрам: масса контейнеров не должна превышать 110 т, габаритные размеры цапф, координаты и установки, размеры контейнера под защитную рубашку, систем опорожнения контейнеров, штуцеров, системы расхолаживания унифицированы. Такая стандартизация позволяет использовать для контейнеров различных типов один тип вагонов.

В Германии фирма GNS разрабатывает контейнеры из чугуна с включением графита в виде сферических частиц. Корпус контейнера изготавливают центробежным литьем. Материал контейнера по своим свойствам приближается к стальному прокату, обладает хорошей ковкостью, высокой коррозионной стойкостью, отвечает условиям сохранения хрупкой прочности при минусовых температурах.

Масса чугунного контейнера больше, чем стального, т. к. при одинаковом внутреннем диаметре толщина чугунной стенки (420...450 мм) больше толщины стальной (300...320 мм). Биологическая защита от γ -излучения обеспечивается чугуном толщиной 420...450 мм, от нейтронов – борированным силиконовым каучуком или борированным полиэтиленом, которыми заполняют отверстия, высверленные в шахматном порядке в стенке на всю длину обечайки. Кроме того, графит, содержащийся в чугуне (7...8 % по объему, около 3,5 % по массе), поглощает примерно 30 % нейтронов. Внутренняя поверхность контейнера покрыта нержавеющей сталью толщиной около 1 мм, наносимой гальваническим методом. На наружную поверхность контейнера наносят 3 слоя эпоксидного покрытия с различными добавками. Контейнер



из чугуна с графитом, изготовленный для хранения ОЯТ реактора «Суперфеникс», на тепловых испытаниях в Кадараше обеспечивал теплоотвод 52 кВт при температуре сборок в контейнере 450 °С.

В Японии разработан и изготавливается контейнер NZ-75T. Защита контейнера от β - и γ -излучения состоит из нержавеющей обечаяек, между которыми находится слой свинца толщиной 184 мм. Нейтронная защита представляет собой стальную «рубашку», заполненную 45...55%-м раствором этиленгликоля. Через нейтронную защиту проходят трубы для обеспечения принудительного охлаждения прокачкой воды. Внешний теплоотвод осуществляется с помощью 87 медных ребер высотой 152 мм и толщиной 6,4 мм, наружная поверхность которых покрыта нержавеющей сталью толщиной 1,6 мм. Шаг размещения ребер – 50 мм. Крышка контейнера уплотняется двумя эластомерными прокладками из этилен-пропиленового каучука, максимальная рабочая температура которого составляет 150 °С. Для перевозки топлива в чехлах реакторов PWR и BWR используют два вида контейнеров. Поглотителем нейтронов в чехлах служат пластинки из борала. Амортизаторы, представляющие конструкцию из алюминиевых труб в оболочке из нержавеющей стали, обеспечивают снижение перегрузок при падении с высоты 9 м до 150 g. Внутри контейнера в качестве теплоносителя используют воду с рабочим давлением до 708 кПа. Конструкция контейнера отнесена к типу В(М).

В США разработаны контейнер NAC-3 массой 100 т для перевозки 12 ТВС реакторов типа PWR или 32 ТВС реакторов типа BWR и его уменьшенный вариант NAC-2 массой 80 т для перевозки 7 ТВС реакторов типа PWR или 21 ТВС реакторов типа BWR. Контейнеры изготовлены из низколегированной стали с толщиной стенки 360 мм с внутренней и наружной оболочками из нержавеющей стали. Нейтронной защитой служит специальный полиэфир (WEP – water extended polyester), который в виде отдельных блоков прикрепляют к корпусу контейнера снаружи между ребрами при транспортировании отработавшего топлива с большой глубиной выгорания. Контейнер удовлетворяет требованиям по безопасности США и Германии.

В России при перевозке отработавшего топлива АЭС с реакторами ВВЭР и РБМК (табл. 2.1) по железной дороге используют специальные вагоны-контейнеры, в которых контейнеры размещают вертикально (рис. 2.2) или горизонтально (рис. 2.3) в зависимости от габаритных размеров сборок твэлов. Сборки длиной менее 3,6 м транспортируют в вертикальных контейнерах, остальные – в горизонтальных. Вертикальные контейнеры вмещают значительно большее количество топлива, чем горизонтальные. При погрузке и разгрузке ОЯТ [9, 12, 14] в эти контейнеры не требуется их кантование. Конструкция сборок твэлов



РБМК позволяет разделять их на две части длиной 3640 мм без нарушения герметичности активной зоны. Такое разделение непосредственно на площадке АЭС позволяет перевозить половины сборок в *вертикальных контейнерах ТК-11*. Габаритные размеры вагонов стандартизованы.

Таблица 2.1

Характеристика топлива российских энергетических реакторов

Реактор	Загрузка топлива UO_2 , т	Средняя глубина выгорания, ГВт·сут/т	Число сборок в реакторе	Размеры сборки $S \times L^*$, мм
ВВЭР-210	44	13	349	144×3200
ВВЭР-365	44	28	349	144×3200
ВВЭР-440	44	28	349	144×3200
ВВЭР-1000	72	41	151	238×4665
РБМК-1000	210	18,5	1693	79**×10065 79×3640***

* S – размер «под ключ», L – длина сборки.

**Диаметр оборки.

***Разрезанные на две части.

В России максимальные высота и ширина вагонов равны соответственно 5300 и 3750 мм, в других восточноевропейских странах – 4650 и 3150 мм; допустимая нагрузка на рельсы от одной колесной пары для железных дорог России и восточноевропейских стран составляет 22 и 18 т.

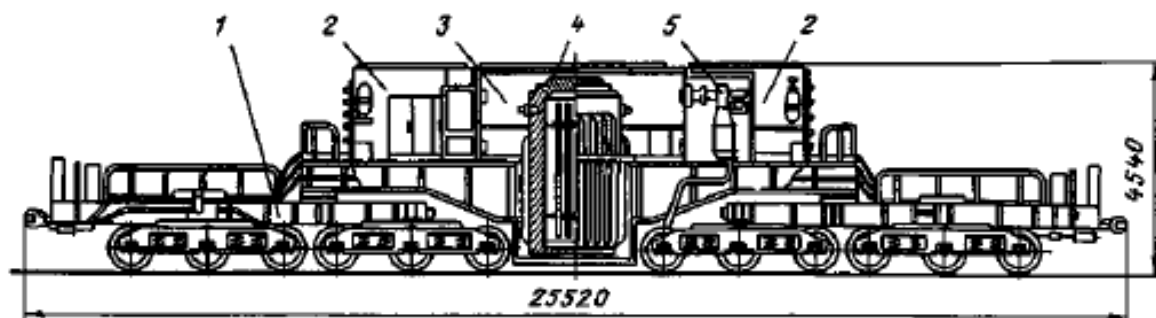


Рис. 2.2. Вагон-контейнер ТК-6:

1 – вагон; 2 – вспомогательный отсек; 3 – грузовой отсек; 4 – контейнер;
5 – вентилятор

В связи с тем, что железнодорожная колея в России и восточноевропейских странах различна (1520 и 1435 мм), вагоны-контейнеры снабжены на обе колеи колесными парами, перестановку которых производят на пограничных станциях. Вагоны имеют раздвижные створки в крыше, что облегчает загрузку и разгрузку.



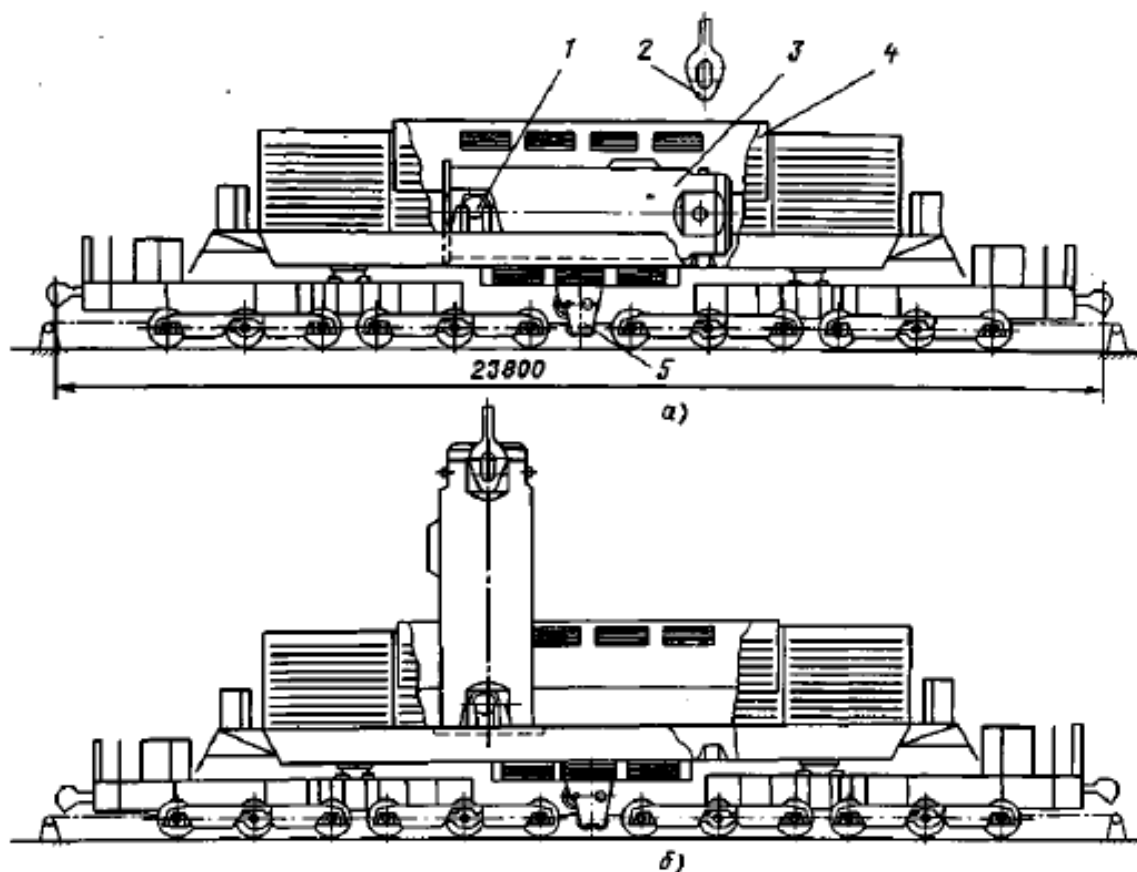


Рис. 2.3. Вагон-контейнер ТК-10:

а – положение вагона в момент застропки контейнера; б – положение вагона в момент снятия контейнера; 1 – опора поворотная; 2 – траверса; 3 – контейнер; 4 – грузовой отсек; 5 – вентилятор

Некоторые характеристики изготавливаемых в восточноевропейских странах контейнеров приведены в табл. 2.2.

Вертикальные контейнеры ТК-6 (ВВЭР-440) и ТК-11 (РБМК) сходны по конструкции, различаются только высотой. Контейнер представляет собой толстостенный цилиндрический стальной сосуд со съемной крышкой, которая крепится к корпусу на болтах. Внутренние стенки контейнеров облицованы нержавеющей сталью, крышки изготавливаются целиком из нержавеющей стали. В контейнерах размещаются чехлы из нержавеющей стали. К внешней поверхности контейнера приварены ребра и специальные опоры, на которые контейнер устанавливают в вагоне (рис. 2.4). Чехол контейнера ТК-6 (рис. 2.5) представляет собой стальную обечайку с днищем и поперечными решетками. Отверстия в решетках и углубления в днище обеспечивают устойчивое фиксированное положение пеналов в чехле при загрузке-разгрузке и транспортировании. Чехол контейнера ТК-11 представляет собой сварной пакет труб, в которые устанавливаются сборки РБМК, не имеющие наружных чехлов.



Таблица 2.2

Некоторые характеристики транспортных контейнеров, используемых в восточноевропейских странах

Контейнер	Реактор	Форма контейнера	Масса, т	Размеры, м	Толщина защиты из стали, мм	Масса топлива, т	Число сборок
ТК-6	ВВЭР-440	Вертикальный цилиндр	90	$d = 2,195$ $H = 4,105$	360	3,8	30
ТК-10	ВВЭР-1000	Горизонтальный цилиндр	103	$d = 2,0$ $L = 6,0$	360*	2,9	6
ТК-13	ВВЭР-1000	То же	116	$d = 2,43$ $d = 3$ $H = 4,3$	340	6,0	12
ТК-Райн-сберг	ВВЭР-70	Вертикальный цилиндр	80		350	3,9	30
ТК-КС	КС-150	Горизонтальный параллелепипед	78	$1,68 \times 1,2$ $L = 5,4$	385	2,49– 2,85**	16
ТК-11	РБМК-1000 (половины сборок)	Вертикальный цилиндр	86,5	$d = 2,195$ $L = 4,455$	360	5,0	102

*Дополнительная защита от нейтронов 120 мм (антифриз).

**Топливо – уран металлический.

Облученное топливо реакторов ВВЭР-1000 по сравнению с топливом ВВЭР-440 характеризуется увеличенной глубиной выгорания, большими размерами ТВС, повышенным содержанием делящихся материалов в ТВС и т. п.

Контейнер ТК-10 представляет собой толстостенный стальной цилиндр, облицованный изнутри нержавеющей сталью. Чехол выполнен в виде сварного пакета из нержавеющей труб с встроенными поглотителями нейтронов (трубы, заполненные карбидом бора). Снаружи контейнера имеется «рубашка» из нержавеющей стали, заполненная антифризом, для замедления и поглощения нейтронов.



Конструкция упаковочного комплекта ТК-10 предусматривает транспортирование отработавшего топлива в контейнерах, заполненных либо водным, либо газовым теплоносителем. Предусмотрено кантование контейнера с помощью крана АЭС, обеспечивающего вертикальное перемещение контейнера, и лебедки, установленной на раме транспортера, для горизонтального перемещения транспортера с контейнером. Упаковочный комплект устанавливается на 12-осный железнодорожный транспортер. Вагон-контейнер разработан в соответствии с международным габаритным размером 02-Т с возможностью перестановки с колеи 1520 мм на колею 1435 мм, что позволяет перевозить его по железным дорогам всех восточноевропейских стран.

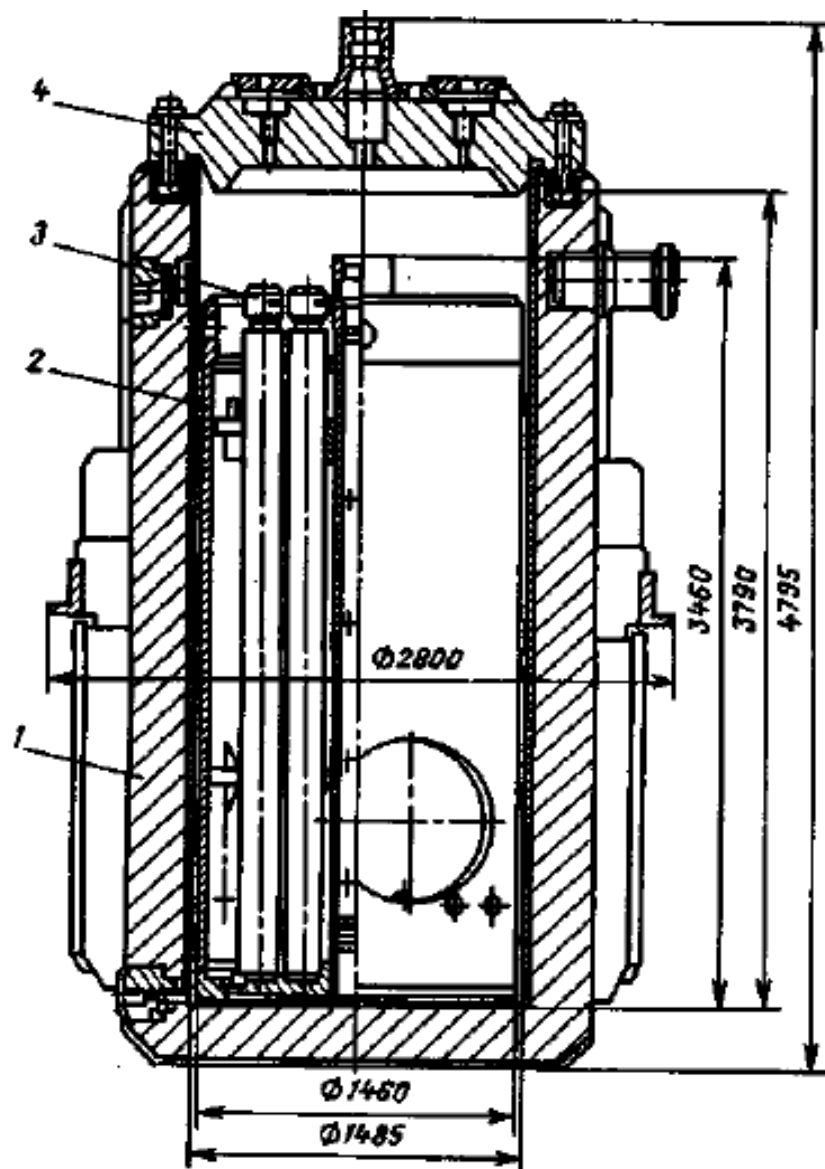


Рис. 2.4. Транспортный контейнер для отработавшего топлива реактора ВВЭР-440: 1 – контейнер; 2 – чехол; 3 – пенал; 4 – крышка контейнера



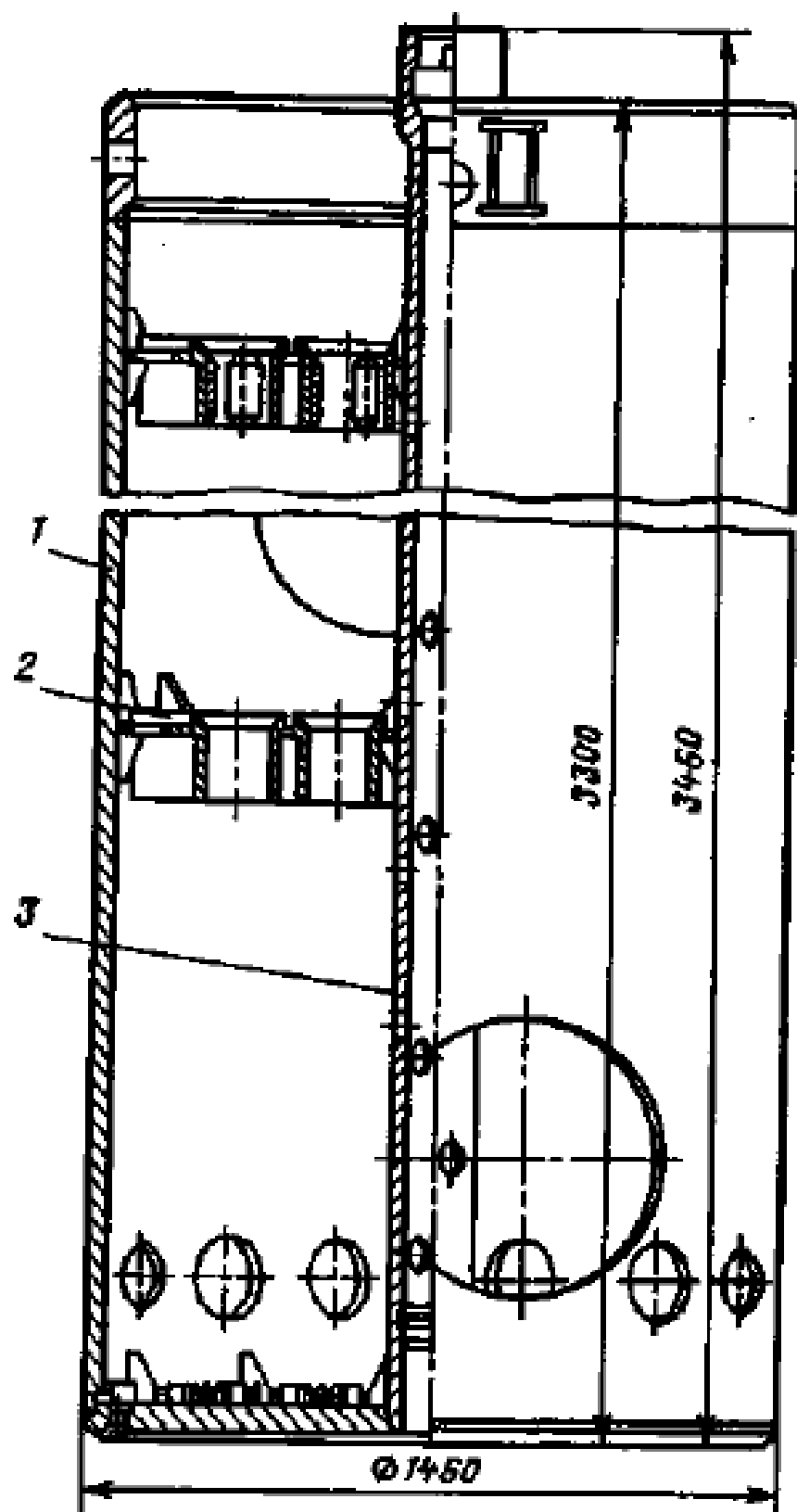


Рис. 2.5. Чехол транспортного упаковочного комплекта для отработавшего топлива реактора ВВЭР-440: 1 – обечайка; 2 – решетка; 3 – центральная труба под захват



Принятая в России трехлетняя выдержка отработавшего топлива на АЭС обеспечивает при максимальной загрузке контейнеров суммарные тепловыделения: с топливом РБМК – 10 кВт, ВВЭР-440 – 15 кВт и ВВЭР-1000 – 20 кВт. При таком решении значительно сокращаются суммарные затраты на хранение ОЯТ на АЭС, заводах регенерации и на транспортирование, упрощается конструкция контейнеров, не требуется развитая поверхность оребрения, усложняющая технологию изготовления и дезактивации.

Анализ результатов испытаний контейнера ТК-10 и опыт его эксплуатации подтвердили возможность создания конструкции контейнера с удвоенной вместимостью по топливу.

Изготавливаются контейнеры ТК-13 (рис. 2.6) для ОЯТ ВВЭР-1000.

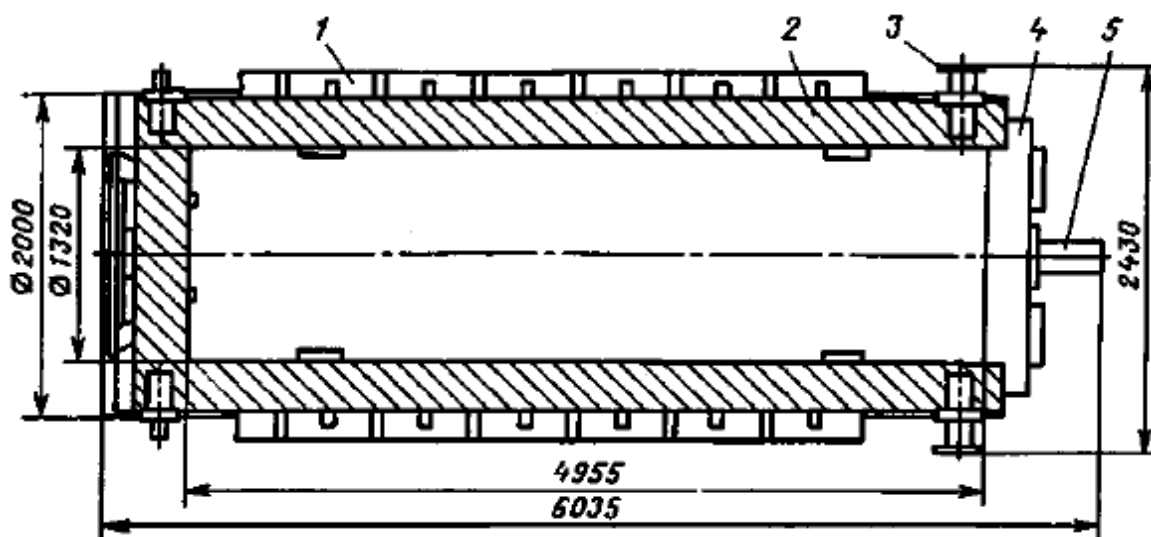


Рис. 2.6. Контейнер ТК-13 для перевозки отработавших ТВС реактора ВВЭР-1000: 1 – нейтронная защита; 2 – корпус; 3 – цапфа; 4 – крышка; 5 – устройство под захват

Конструкция контейнера ТК-13 аналогична конструкции контейнера ТК-10, однако внутренний диаметр контейнера увеличен с 1000 до 1320 мм, что позволило повысить загрузку с 6 до 12 ТВС. Транспортирование производится в газовом теплоносителе.

Чехол изготавливается в виде сварного пакета из борсодержащих нержавеющей труб.

Основополагающим нормативным и регламентирующим документом по обеспечению безопасности перевозок ОЯТ в России являются введенные в действие в 1983 г. «Основные правила безопасности и физической защиты при перевозке ядерных материалов» (ОПБЗ-83) [13]. Эти правила практически полностью учитывают рекомендации МАГАТЭ, из-

ложенные в «Правилах безопасной перевозки радиоактивных веществ. Пересмотренное издание 1973 г., исправленное», в отношении нормирующих уровней излучения и допустимых потерь радиоактивного содержимого упаковок в нормальных и аварийных условиях перевозки, а также самих определений нормальных и аварийных условий перевозки.

В то же время ОПБЗ-83, в отличие от «Правил» МАГАТЭ, не допускают перевозок радиоактивных упаковок на открытых транспортных средствах, наличия нефиксированного радиоактивного загрязнения наружной поверхности транспортных средств. Кроме того, согласно ОПБЗ-83, перевозка всех делящихся материалов, в том числе и ОЯТ, должна осуществляться на условиях «полного груза» (недопустимо присутствие других грузов), с обязательным сопровождением груза ответственным лицом или бригадой сопровождения.

При разработке ОПБЗ-83 особое внимание было уделено таким вопросам организации транспортирования, как порядок разработки и согласования конструкций упаковочных комплектов, условия перевозок, включая взаимоотношения участвующих в перевозках ведомств и предприятий, проведение радиационного контроля и мероприятий при авариях. В частности, было признано необходимым (и в правила ОПБЗ-83 были введены эти требования) наличие для всех используемых в России упаковочных комплектов типа В сертификатов-разрешений, выдаваемых ГКАЭ России. Ответственность за безопасность перевозок возлагается (за исключением случаев нарушения безопасности движения) на ведомства и предприятия грузоотправителя и грузополучателя. В систему нормативно-технической документации на перевозки ОЯТ входят также правила по отдельным вопросам безопасности, таким как ядерная и радиационная безопасность. В России утверждены и введены в действие «Правила ядерной безопасности при транспортировании ядерного топлива» (ПБЯ-06-08-77), в которых изложены общие принципы и основные требования ядерной безопасности при проектировании и эксплуатации транспортных упаковочных комплектов. Для обеспечения ядерной безопасности с достаточным запасом для каждой отдельной упаковки должно выполняться одно из следующих ограничений:

- масса делящихся материалов не должна превышать 80 % критической массы системы, подобной рассматриваемой;
- эффективный коэффициент размножения нейтронов $K_{эф}$ не должен превышать 0,95 [14].

Для регламентирования международных перевозок ОЯТ АЭС, построенных за рубежом при техническом содействии России, разработаны



соответствующие правила безопасной перевозки и технические условия на поставку отработавшего ядерного топлива от АЭС восточноевропейских стран с реакторами ВВЭР-440 и от АЭС «Ловииса» (Финляндия).

2.2. Хранение облученного топлива

Хранение облученного ядерного топлива – необходимый и обязательный этап как замкнутого, так и «открытого» топливного цикла. Естественно, хранилища ОЯТ имеются во всех странах мира, где строятся АЭС.

Облученное топливо, выгруженное из реакторов АЭС, направляют на временное или долговременное хранение в хранилища при реакторах, в отдельно стоящие хранилища при АЭС, в региональные, национальные хранилища и в хранилища на заводах регенерации. Срок хранения зависит от выбранной концепции обращения с отработавшим топливом. Ее выбор зависит от существующих в стране социальных, экономических, законодательных и политических условий, а также от энергетических потребностей, преобладающих в данное время. Срок хранения топлива перед переработкой в разных странах варьируется от 0,5 года до 7 лет. Оптимальное время выдержки для типового завода регенерации составляет примерно 3 года [16].

Применяют два способа хранения: водный и сухой. В водных хранилищах может быть организовано чехольное и стеллажное хранение. На АЭС чаще используют стеллажное хранение, на заводах регенерации – чехольное.

Зарубежные хранилища лучше всего представлены в проектах АЭС и завода регенерации Франции. Хранилища ОЯТ на АЭС во Франции однотипны по конструкции и отличаются только объемом: на АЭС с реакторами PWR – объем на 240 суток выдержки выгруженных ОТВС + объем на случай аварийной разгрузки реактора; с реакторами «Суперфеникс» – 3 года выдержки.

Вместимость хранилищ на заводе регенерации должна обеспечить достаточный запас отработавшего топлива для бесперебойной работы завода. Сравнение вместимости хранилищ с производительностью новых зарубежных перерабатывающих заводов (табл. 2.3) показывает, что хранилища представляют собой своеобразные склады сырья для завода с 3–8-кратным годовым запасом [17–20].

При строительстве новых заводов в первую очередь сооружают приемные отделения для транспортных контейнеров и бассейны-хранилища.



Таблица 2.3

Производительность перерабатывающих заводов и вместимость хранилищ отработавшего топлива

Завод	Местоположение	Производительность завода по урану, т/год	Проектируемая вместимость хранилищ ОЯТ, т урана
THORP	Великобритания, Селлафилд	650 в первые 10 лет	4000
WAW	ФРГ, Ваккерсдорф	350	1500
UP-3 UP-2 800	Франция, м, Аг	1600	10 000
JNFS	Япония, Рокосомура	800	2000

Во Франции на м. Аг с опережением строительства заводов UP-2 800 и UP-3 в 1987 г. сданы в эксплуатацию четыре бассейна вместимостью 2000 т каждый, две камеры разгрузки (сухая и под водой) производительностью 800 т/год по урану и отделение приема, в котором временно хранятся транспортные контейнеры до и после разгрузки (рис. 2.7). Все камеры и бассейны-хранилища соединены между собой. Это способствует повышению гибкости работы узлов приема и хранения и в целом работы заводов UP-2 800 и UP-3 [21].

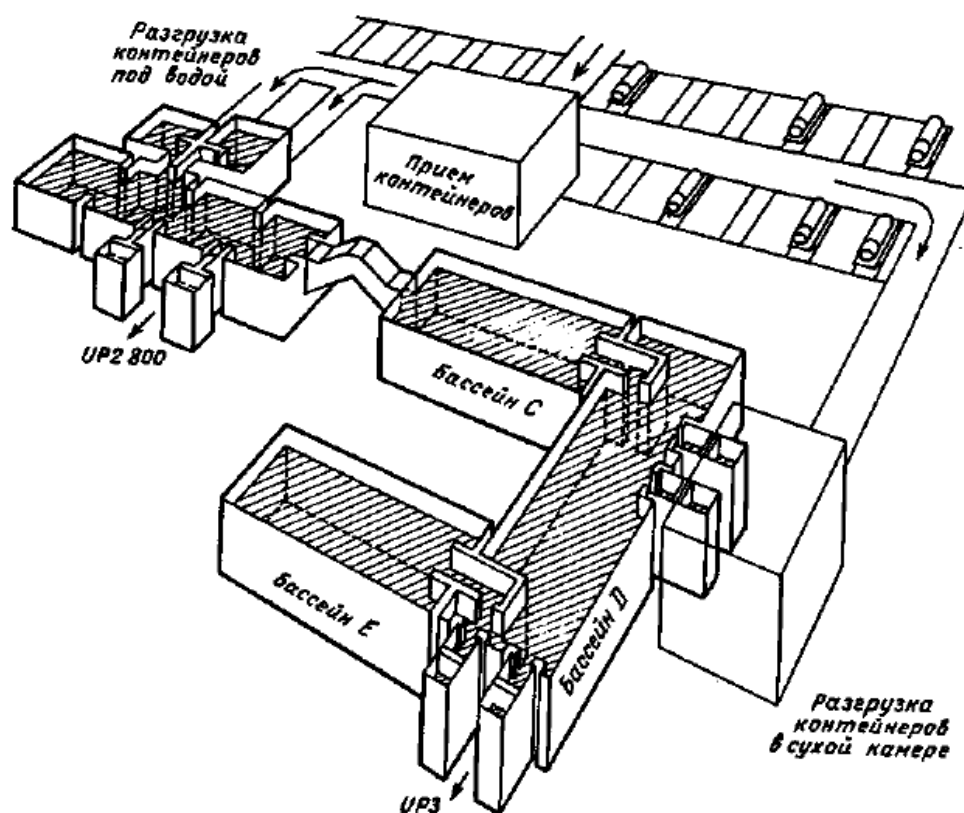


Рис. 2.7. Отделение приема и хранения отработавшего топлива на м. Аг



Хранилища представляют собой бассейны с водой, стены и дно которых облицованы нержавеющей сталью. Перекрытий у бассейнов нет, по контуру они ограждены перилами. Стеллажи и другое оборудование отсутствуют. Контейнеры на заводе на м. Аг разгружают под водой непосредственно в бассейне-хранилище ТВС и поштучно с помощью перегрузочной машины помещают в чехлы из бористой стали. Чехлы имеют прямоугольную форму (как и сборки PWR) и очень компактно устанавливаются на дно бассейна вплотную друг к другу. Отсутствие перекрытий французские специалисты объясняют необходимостью удобного осмотра ОТВС в бассейне инспекторами-контролерами МАГАТЭ.

Объемы хранилищ ОЯТ в России и других восточноевропейских странах определяются выбранной стратегией – созданием атомной энергетики с замкнутым топливным циклом. В проектах АЭС с реакторами типа ВВЭР, сооружаемых в этих странах, предусматриваются хранилища отработавшего топлива при реакторах, рассчитанные на выдержку топлива до трех лет. Однако такая выдержка топлива целесообразна только тогда, когда начнется массовое строительство реакторов на быстрых нейтронах, в которых будет использоваться плутоний, представляющий основную ценность в отработавшем топливе реакторов типа ВВЭР. С учетом задержки серийного строительства реакторов на быстрых нейтронах в России и других восточноевропейских странах принято решение о строительстве дополнительных отдельно стоящих хранилищ отработавшего топлива, рассчитанных примерно на 10 лет работы АЭС [12].

Технический анализ и экономические расчеты для условий России показали, что оптимальное время выдержки отработавшего топлива реакторов на быстрых нейтронах составляет около 1 года, а топлива серийных реакторов ВВЭР и РБМК на период освоения технологии регенерации топлива на опытных установках, опытно-промышленных и промышленных заводах в отсутствие реакторов на быстрых нейтронах – от 3 до 10 лет, на период освоения реакторов на быстрых нейтронах – от 1 года до 3 лет и, наконец, на период серийного строительства реакторов на быстрых нейтронах, работающих в режиме реактора-размножителя, – около 1 года.

В России предусмотрено сооружение хранилищ при реакторах, отдельно стоящих хранилищ при АЭС и заводах регенерации. Они не имеют принципиальных отличий, а различаются только объемом: хранилища при реакторах рассчитаны на 3 года выдержки, отдельно стоящие хранилища при АЭС – на 10 лет и хранилища на заводах регенерации – на 1 год работы завода [12].



Типовое отдельно стоящее хранилище отработавшего топлива (рис. 2.8) состоит из трех основных отделений:

- приема, перегрузки и выдачи транспортных контейнеров;
- хранения топлива;
- технологических систем, служб обеспечения условий хранения топлива.

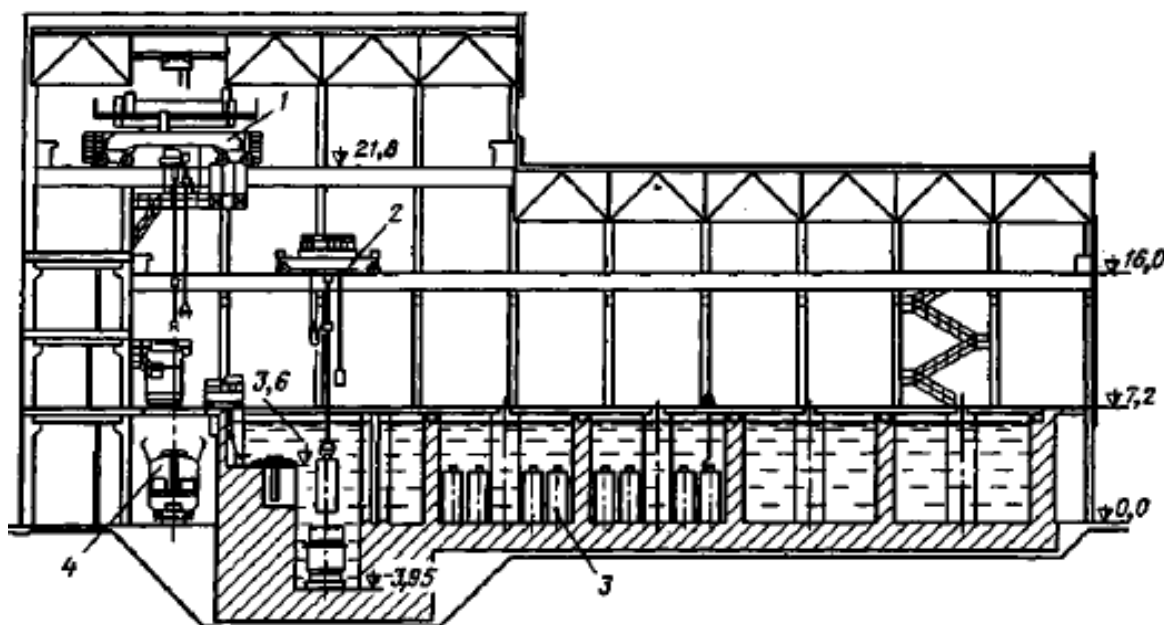


Рис. 2.8. Хранилище отработавшего топлива (продольный разрез):
1 – кран мостовой 125/20 т; 2 – кран мостовой 15 т; 3 – чехол со сборками;
4 – вагон-контейнер

Отделение приема и перегрузки транспортных контейнеров состоит из транспортного коридора и зала перегрузки. Транспортный коридор расположен под залом перегрузки и соединен с ним закрываемым проемом для передачи контейнеров. В зале перегрузки имеются отсек перегрузки контейнеров, отсек промывки и перегрузки сборок твэлов, шахты обмывки и дезактивации контейнеров, шахты приспособлений и инструмента, а также участок мелкого ремонта технологического оборудования. Отсеки перегрузки и промывки соединены передаточным коридором с отсеками хранения отработавших сборок. Зал перегрузки оборудован мостовым краном, площадкой с гайковертами для снятия крышки контейнера, стендами технологического контроля загруженных контейнеров, траверсой для переноски контейнеров, штангой для крышки контейнера и чехла и другим инструментом, необходимым для перегрузочных работ.

Отделение хранения отработавшего топлива состоит из бассейна, заполненного водой, и транспортного зала. Бассейн имеет четыре отсе-



ка, в которые устанавливают на хранение чехлы с отработавшими сборками, и передаточный коридор, соединяющий все отсеки бассейна между собой, а также с отсеками перегрузки и обмывки сборок. Отсеки бассейна соединены с передаточным коридором гидрозатворами для возможности разделения отсеков по технологическим условиям и проведения ремонта. Стены и дно бассейна покрыты двойной металлической облицовкой из углеродистой и нержавеющей стали. В случае протечек вода попадает в зазор между облицовками. Ее собирают и возвращают в отсеки бассейна. Контроль за состоянием облицовки каждого отсека бассейна практически исключает утечки радиоактивной воды из бассейна. Отсеки бассейна имеют щелевое перекрытие, которое обеспечивает нормальные условия работы персонала. Щели перекрытия являются транспортными путями развозки чехлов с топливом, необходимыми для расстановки чехлов в отсеках бассейна в заданном порядке.

Над бассейном располагается транспортный зал хранилища. Он оборудован мостовым краном, штангами и захватами для перевозки чехлов, светильниками и телевизионной переносной установкой для наблюдения под водой за чехлами и сборками.

Отделение технологических систем и служба обеспечения условий хранения отработавшего топлива представляют собой пристройку к хранилищу, в которой размещены системы охлаждения и очистки вод бассейна, технологической и сантехнической вентиляции, электроснабжения, хранилища, обмывки и дезактивации контейнеров, спецоборудования и помещений, а также пультовая и операторская по управлению и контролю, спецпропускник, административные и другие помещения.

Отработавшее топливо хранят под защитным слоем воды (3,0 м над активной частью ТВС). Такой способ надежен. При этом для технологических процессов перегрузки и хранения топлива используют незначительное количество простого оборудования. Одновременно обеспечиваются биологическая защита в процессе выполнения всех технологических операций при прямом визуальном контроле и постоянный надежный отвод тепла от сборок.

Хранение отработавших сборок в бассейнах осуществляется двумя способами: либо на стеллажах поштучно, либо в многоместных чехлах, устанавливаемых на дно бассейна. В рассматриваемом хранилище отработавшие сборки хранят в чехлах, применение которых имеет целый ряд важных технологических и экономических преимуществ по сравнению со стеллажным способом: во-первых, наличие чехла обеспечивает защиту сборок от механических повреждений и исключает дополнительные перегрузки, неизбежные при стеллажном способе хранения; во-вторых, отпадает необходимость в мостовом координатном перегружа-



теле, т. к. перегрузки и перевозки чехлов со сборками твэлов выполняются одним мостовым краном. С помощью этого же крана проводят и ремонтно-профилактические работы в бассейне. Чехольный метод хранения позволяет быстро и оперативно подготовить отсек бассейна к ремонту путем перегрузки чехлов в резервный отсек. При стеллажном методе отсек освобождают перегрузкой отдельных сборок, что требует значительно большего времени. Кроме того, после перегрузки со дна бассейна необходимо удалять стеллажи, что очень трудоемко. Следует отметить, что на изготовление чехлов и стеллажей расходуется примерно одинаковое количество нержавеющей стали.

Для поддержания нужного качества воды в бассейне предусмотрена ее очистка по двухступенчатой схеме: на первой ступени воду очищают от взвешенных продуктов коррозии, а на второй – от растворенных солей. На обеих ступенях одновременно производят очистку от радиоактивных загрязнений. На первой ступени применяют намывные фильтры патронного типа с использованием вспомогательного фильтрующего материала – перлита – и насыпные фильтры с катионитом в качестве фильтрующего материала. Вторую ступень выполняют в виде двух фильтров с отдельной загрузкой катионита и анионита или в виде одного фильтра смешанного действия (ФСД).

Вопросы к главе 2

1. Какие требования предъявляются к контейнерам для перевозки ОЯТ?
2. Какая предельно допустимая температура на поверхности транспортировочного контейнера?
3. За счет чего обеспечивается теплоотвод на поверхности контейнера?
4. Какое время выдержки ОЯТ для его транспортировки в России?
5. Из каких отделений состоит хранилище ОЯТ?



3. ПОДГОТОВКА ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА К ЭКСТРАКЦИИ

3.1. Вскрытие облученных твэлов

Вскрытие облученных твэлов является первой операцией технологического процесса переработки топлива. Отделение материала оболочки твэлов от топливной композиции – одна из наиболее сложных в техническом отношении задач процесса регенерации ядерного топлива. В радиохимической технологии разработаны разнообразные методы вскрытия твэлов. Однако до сих пор нет ни одного метода, позволяющего с помощью технически простых средств осуществить достаточно полное удаление оболочки без внесения загрязняющих компонентов в топливные материалы или без потерь ценных компонентов топливной композиции.

Все предложенные методы можно разделить на две группы:

- методы вскрытия с разделением материалов оболочки и сердечника твэлов;
- методы вскрытия без отделения материала оболочки от материала сердечника.

В обоих случаях используют водно-химические, высокотемпературные и механические методы. Выбор метода вскрытия твэлов для конкретной технологии зависит от свойств материалов оболочки твэлов, конструкции твэлов, принятой технологии химической переработки ядерного топлива, а также необходимости обеспечить определенную производительность процесса.

3.1.1. Вскрытие с разделением материала оболочки и сердечника твэлов

Данные методы вскрытия предусматривают снятие оболочки твэлов и удаление конструкционных материалов до растворения ядерного топлива.

Водно-химические методы (растворение оболочек). Водно-химические методы снятия оболочки заключаются в растворении материалов оболочки в растворителях, не затрагивающих материалы сердечника. Эти методы использовались на первых этапах развития радиохимической технологии для переработки твэлов из металлического урана в оболочках из алюминия или магния и его сплавов. Алюминий легко растворяется в щелочах (обычно используют раствор едкого натра), а магний и магнокс (сплав магния с 1 % Al, 0,015 % Be и 0,03 % Ca) – в разбавленных растворах серной кислоты при нагревании [22–24]. Магние-вые оболочки можно селективно растворить и в разбавленной азотной



кислоте. Однако при этом необходимо строго следить, чтобы температура не превышала 25 °С, так как в противном случае может произойти растворение, а следовательно, и потери урана [24, 259].

Удаление оболочки путем отдельного растворения материалов оболочки и сердечника не требует сложной аппаратуры.

Однако твэлы из металлического урана с алюминиевой оболочкой не характерны для современных типов энергетических реакторов.

Как было указано выше, современные твэлы имеют оболочки из коррозионно-стойких, трудно растворимых материалов. Наиболее типичны оболочки из циркония, сплавов циркония с оловом (циркалой) или ниобием, а также оболочки из нержавеющей стали. Селективное растворение этих материалов возможно только в сильно агрессивных средах.

Так, для циркония разработаны методы растворения во фтористо-водородной кислоте и в ее смесях со щавелевой или азотной кислотами [23, 26]. Однако при растворении образуется большое количество шламов из диоксида циркония, что обуславливает значительный унос урана и плутония. Кроме того, такой процесс требует изготовления аппаратуры из специальных коррозионно-стойких материалов.

В США, в Ок-Риджской национальной лаборатории, был испытан так называемый цирфлекс-процесс [27, 28] – растворение оболочек из циркалой обработкой раствором фторида аммония с добавкой нитрата аммония (6 М NH_4F + 1 М NH_4NO_3). Потери урана и плутония в этом процессе составляют 0,05 %. Преимущество замены фтористо-водородной кислоты фторидом аммония – отсутствие выделения водорода при растворении. Кроме того, менее агрессивная среда позволяет использовать аппаратуру из аустенитной хромоникелевой стали. Существенный недостаток всех процессов растворения циркониевых оболочек – попадание фторид-ионов на последующие операции и вследствие этого повышенная коррозия аппаратуры. Особенно это существенно на стадии упаривания растворов.

Для растворения оболочек из нержавеющей стали был разработан сульфлекс-процесс – растворение в кипящей H_2SO_4 с концентрацией от 4 до 6 М [28].

Несмотря на принципиальную возможность снятия оболочек из циркония и из нержавеющей стали с помощью селективного химического растворения, использование этого метода в процессах переработки твэлов АЭС нецелесообразно не только в связи с уже упомянутыми недостатками этих методов. Основным недостатком химического метода снятия оболочек – образование большого количества сильно засоленных жидких радиоактивных отходов. Для переработки твэлов водяных реакторов это обстоятельство еще более существенно, чем для



твэлов газографитовых реакторов в оболочках из алюминия или магния. Легкие оболочки из алюминия и магния составляют лишь небольшую долю массы твэла. Поэтому при их растворении образуется относительно небольшое количество отходов, приходящихся на 1 т перерабатываемого топлива. Масса циркония и нержавеющей стали в твэлах водо-водяных реакторов часто достигает 40...50 % массы тепловыделяющей сборки. Соответственно, количество отходов на 1 т перерабатываемого топлива значительно возрастает.

Пирохимические методы снятия оболочки. Чтобы уменьшить объем отходов от разрушения оболочек и получить эти отходы сразу в твердом состоянии, более пригодном для длительного хранения, разрабатывают процессы разрушения оболочек под воздействием неводных реагентов при повышенной температуре. Эти процессы пока еще находятся в стадии лабораторных разработок и полупромышленных испытаний. Особенно полезными они могут оказаться в сочетании с неводными методами переработки ядерного топлива.

Один из таких процессов – снятие оболочки из циркония безводным хлороводородом в псевдоожигенном слое Al_2O_3 при 350...800 °С. Цирконий превращается при этом в летучий $ZrCl_4$ и отделяется от материала сердечника сублимацией. $ZrCl_4$ затем гидролизуются, образуя твердый диоксид циркония. Этот процесс детально был изучен во Франции на установке «Аттила» в Фонтене-о-Роз [29]. Исследования показали, что сублимация летучего хлорида циркония приводит к потерям урана. Этих потерь можно избежать, используя смесь безводных HF и $HC1$ в псевдоожигенном слое из частиц CaF_2 . Образующийся тетрафторид циркония осаждается при этом на частицах CaF_2 .

Для удаления оболочек из нержавеющей стали был предложен процесс, основанный на ее деструктивном окислении под действием смеси газообразного хлороводорода и кислорода при 500...600 °С [30, 31].

Разрабатывали и другие методы разрушения оболочек твэлов под действием газообразных реагентов, например гидрирование или азотирование оболочек из циркония. Во всех рассмотренных пирохимических методах снятия оболочек процесс идет при высокой температуре с участием агрессивных газообразных реагентов. Поэтому все они требуют довольно сложного, как правило, автоклавного аппаратного оформления. В то же время эффективность их невысока и часто наблюдаются значительные потери ценных компонентов. Поэтому ни один из них пока еще не использован в промышленном масштабе.

Пиromеталлургические методы. Разработки высокотемпературных методов снятия оболочки направлены на создание методов прямого оплавления оболочек или растворения их в расплавах других металлов.



Эти методы основаны на различии температуры плавления материалов оболочки и сердечника или на различии их растворимости в других расплавах металлов или солях. При этом необходимо, чтобы при высокой температуре сохранялась совместимость конструкционных и топливных материалов, т. е. чтобы между ними не происходило взаимодействия.

В табл. 3.1 отражена температура плавления некоторых топливных и конструкционных материалов.

Таблица 3.1

Температуры плавления некоторых топливных и конструкционных материалов

Вещество	$t_{пл}, ^\circ\text{C}$
UO ₂	2800
U ₃ O ₈	2500
U ⁵⁺ J	2650
UC	2350
Нержавеющая сталь	1400...1500
Циркалой	1855
Магний	651
Алюминий	680

Метод плавления оболочек из нержавеющей стали и отделения их от материалов сердечника разработан в России [32, 33]. При нагревании в тигле сборок твэлов до 1450...1550 °С стальные конструкционные детали сборок расплавляются. Расплав фильтруют в дополнительную емкость. Сердечники твэлов остаются в тигле, откуда затем выгружаются.

Интересна разработка метода плавления нержавеющей стали в дисперсных матричных твэлах, где сталь служит наполнителем для ядерного топлива (UO₂, PuO₂). Расплавленная сталь не смачивает оксиды урана и плутония, поэтому происходит разделение основных компонентов топлива и инертных наполнителей. Застывшие гранулы стали можно отделить с помощью магнитной сепарации. Окончательное разделение происходит на стадии растворения топливных материалов в азотной кислоте, в которой нержавеющая сталь не растворяется, или на стадии фторирования топлива в случае газофторидной технологии.

Разработаны также различные варианты плавления магниевых оболочек твэлов газографитовых реакторов при 550...700 °С. Однако наиболее эффективен разработанный во Франции метод сублимации магниевой оболочки в вакууме при 612 °С, т. е. еще до достижения температуры плавления магния. Этот метод нашел промышленное применение на заводе в Маркуле. Установка для сублимации представляет собой трубчатую горизонтально расположенную печь, продолжением которой



служит грохот. Печь нагревается с помощью электронагревателей. Магний улавливается в ротационном конденсаторе, очищается и собирается в ковши, где он находится в твердом состоянии под слоем жидкости.

Разрабатывали также различные варианты растворения оболочек твэлов в расплавах других металлов. Это дает возможность снимать оболочки при температуре более низкой, чем температура плавления материала оболочки. Так, были предложены методы растворения оболочек из нержавеющей стали в расплавах цинка при 800 °С под слоем флюса ($\text{CaCl}_2 + 15\% \text{CaF}_2$), в расплавах сурьма-медь-марганец при 700...1000 °С и в расплаве олова при 1550 °С [34, 35].

Однако все эти работы имеют исследовательский характер и еще не доведены до уровня промышленной разработки.

Механические методы снятия оболочки. Химические и пирометаллургические методы снятия оболочек не обеспечивают достаточно полного удаления оболочек. Часть конструкционных материалов остается на сердечниках и попадает в основные технологические растворы. Поэтому были разработаны механические методы снятия оболочек без их химического разрушения. Процесс механического снятия оболочек включает несколько операций. Сначала отрезают концевые детали тепловыделяющей сборки и разбирают ее на пучки твэлов и на отдельные твэлы. Затем механически снимают оболочки отдельно с каждого твэла (рис. 3.1).

На заводе в Ханфорде (США) применяли метод выпрессовки сердечника UO_2 из алюминиевой оболочки с помощью специальной пресс-формы и пуансона. Диаметр отверстия в пресс-форме должен быть больше диаметра сердечника, а диаметр пуансона – меньше.

В Великобритании на заводе в Селлафилде до последнего времени осуществляли снятие магноксовых оболочек с сердечников из металлического урана так называемым методом «очистки банана». Продольный надрез оболочки производится тремя фрезами, расположенными по отношению друг к другу под углом 120° (см. рис. 3.1) [36].

В Ханфорде, Саванна-Ривере, Ок-Ридже (США) оболочки снимали путем их деформирования прокаткой на роликовых правильных машинах.

Предложены различные варианты электрохимической резки кассет и оболочек твэлов для освобождения сердечников твэлов, основанные на электрохимическом анодном растворении конструкционных материалов. Растворяющий электролит подается специальными иглами на узкую полосу, образующую разрез по периметру кассеты [37].

Разрабатывались и другие варианты механического снятия оболочек [35]. Недостаток всех этих методов – возможность захвата с оболочкой твэла материала сердечника, т. е. потери ценных компонентов.



Кроме того, оборудование, необходимое для механического снятия оболочек, имеет высокую стоимость, сложно по конструкции и в управлении. Для каждого из видов ТВЭЛОВ, отличающихся по форме или размеру, необходимо создавать специальное оборудование.

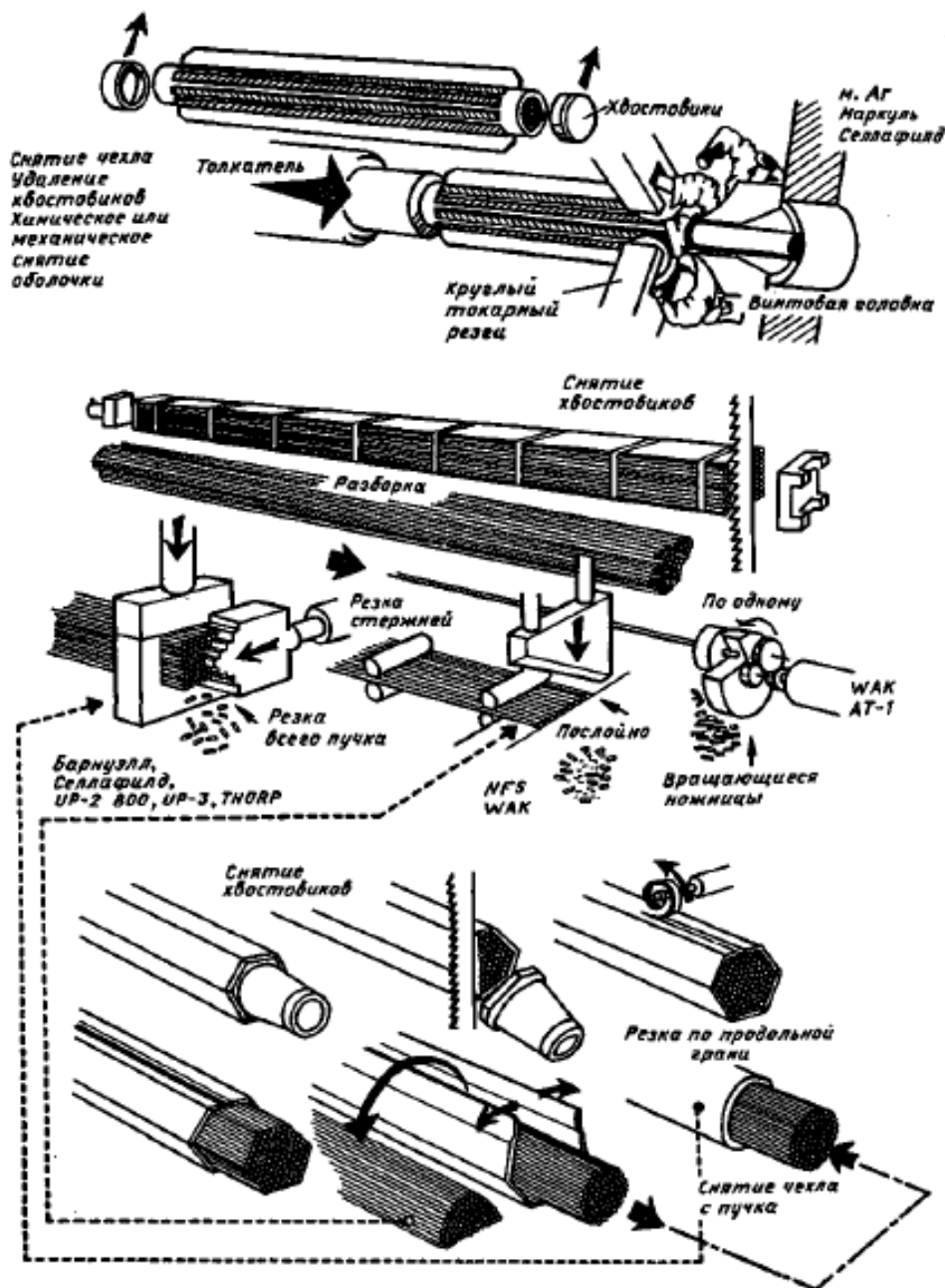


Рис. 3.1. Варианты операции расчехловки и резки, применяемые на различных заводах

Все рассмотренные в п. 3.1.1 методы вскрытия ядерного топлива с отделением конструкционных материалов от топливных совместимы с водными способами переработки топлива. Они не вносят существенных дополнительных загрязнений в растворы топливных материалов, и кон-



струкционные материалы твэлов не влияют на последующий процесс переработки. Однако как в процессах химического, так и в процессах механического снятия оболочек может происходить захват материалов сердечника, что вызывает потери ценных компонентов. Это особенно существенно при переработке топлива с высоким содержанием делящихся материалов – плутония или высокообогащенного урана.

Поэтому уже на ранних этапах развития радиохимической технологии начали разрабатывать методы вскрытия, совмещенные непосредственно с процессами переработки топлива.

3.1.2. Вскрытие твэлов без отделения материалов оболочек от материала сердечника

Химические методы. Эта группа методов, так же как и предыдущая, включает водно-химические и пирохимические методы вскрытия. В обоих случаях предусматривается одновременное разрушение оболочек и сердечников и переводение их в ту фазу, из которой предполагается проводить дальнейшую химическую переработку делящихся материалов. При этом сброс компонентов конструкционных материалов происходит одновременно с очисткой урана и плутония от других примесных и осколочных элементов.

При реализации водно-химических методов оболочку и сердечник растворяют в одном и том же растворителе с получением общего раствора (подробнее см. разд. 4.2). Совместное растворение целесообразно в тех случаях, когда перерабатывают топливо с высоким содержанием ценных компонентов (^{235}U и Pu) или когда на одном заводе перерабатывают разные виды топлива, особенно, если твэлы различаются размером и конфигурацией. Установка специального разделочного оборудования для каждого вида твэлов нецелесообразна. Кроме того, форма перерабатываемых твэлов может оказаться слишком сложной для механического снятия оболочек. Характерным примером такого производства являются заводы США в Айдахо, где перерабатывается более 24 видов топлива, и в Саванна-Ривере, где совместное растворение используют при переработке высокообогащенного топлива для предотвращения его потерь. Совместное растворение проводили также на заводе Еврокемик в Моле (Бельгия).

При использовании пирохимических методов твэлы обрабатывают газообразными реагентами, которые разрушают не только оболочку, но и сердечник твэлов.



Механические методы. Удачной альтернативой методам вскрытия с удалением оболочки и методам совместного разрушения оболочки и сердечников оказался так называемый метод «рубка-выщелачивание».

Метод пригоден для переработки твэлов в оболочках, не растворимых в азотной кислоте.

Сборки твэлов или отдельные твэлы в оболочках разрезают на мелкие куски. Обнажившийся сердечник твэла становится доступным действию химических реагентов и растворяется в азотной кислоте. Нерастворившиеся оболочки твэлов отмывают от остатков задержавшегося в них раствора и удаляют в виде скрапа.

Рубка твэлов имеет определенные преимущества перед описанными выше методами. Образующиеся отходы – остатки оболочек – находятся в твердом состоянии, т. е. не происходит образования жидких радиоактивных отходов, как при химическом растворении оболочек. Нет и значительных потерь ценных компонентов, как при механическом снятии оболочек, так как отрезки оболочек могут быть отмыты с большой степенью полноты. Конструкция разделочных машин (при осуществлении этого метода) упрощается в сравнении с конструкцией машин для механического снятия оболочек. Кроме того, поступающие на переработку растворы топлива не содержат большого количества балластных материалов, как при совместном растворении оболочек и сердечников твэлов.

Метод «рубка-выщелачивание» получил широкое признание как наиболее целесообразный метод вскрытия при переработке оксидных твэлов в оболочках из циркония или нержавеющей стали.

Описанный метод стал наиболее типичным методом вскрытия твэлов энергетических реакторов.

Разработка метода рубки-выщелачивания была начата еще в 50-е годы в СССР и США. Первые результаты его применения для рубки твэлов первой советской АЭС были доложены на Второй Женевской конференции по мирному использованию ядерной энергии. В промышленном масштабе этот метод впервые был внедрен на заводе в Вест-Вэлли в США [38]. Метод, по существу, состоит из двух процессов:

- рубки твэлов на куски;
- растворения топливной композиции.

Эти процессы составляют два самостоятельных узла технологической схемы. Поэтому здесь будет рассмотрена только рубка твэлов (см. рис. 3.1, б).

На работающих и строящихся заводах метод применяют в трех модификациях:

- рубка целой сборки без предварительного ее демонтажа;



- рубка сборки после отделения от нее хвостовиков;
- полный демонтаж сборки и рубка отдельных стержней (см. рис. 1.1).

В России, Франции, США, Германии разработаны агрегаты рубки сборок твэлов и отдельных твэлов. При этом в предполагаемых вариантах машин предусмотрено как вертикальное, так и горизонтальное расположение режущего механизма. В качестве режущего механизма предлагаются пресс-ножницы, вертикальный и горизонтальный ножи, а для отрезки концевых деталей ТВС – пилы с вращающимися электродами, плазменный резак и др.

Французская фирма «Сен-Гобен Текник Нувель» (новое название *Sosiete' Generate Techniques Nouveiles*) разрабатывает агрегаты рубки в различных вариантах, специально приспособленных к технологической схеме завода-заказчика. Размер отрезков топлива может изменяться в пределах 25...75 мм. Агрегат может рубить сборки длиной до 6 м, сечением 300×300 мм. Скорость рубки – 5 ударов/мин; производительность агрегата может быть доведена до 5 т/сут. Потери ценных компонентов на этой операции составляют около 0,2 %. В середине 70-х годов эта фирма была монополистом в сфере изготовления и поставок разделочных машин за рубежом. Она изготовила агрегаты рубки для заводов США, Франции, Японии, Индии. В 80-х годах эта фирма также занималась проектированием и производством агрегатов для заводов Франции и Японии.

Рубку целой сборки твэлов производят и планируют в дальнейшем производить на заводах, перерабатывающих большие партии однотипного топлива: м. Аг во Франции, в Токаи-Мура в Японии и в Селлафилде в Великобритании. На опытно-промышленных заводах, например на заводе WAK в Германии, чтобы избежать установки дорогостоящего сложного оборудования, рубят не целые сборки, а отдельные твэлы или пучки твэлов. Для этого у ТВС сначала срезают хвостовики (рис. 3.2), удаляют скрепляющие детали и вытягивают твэлы. Высвобожденные твэлы поступают в агрегат рубки [6, 36].

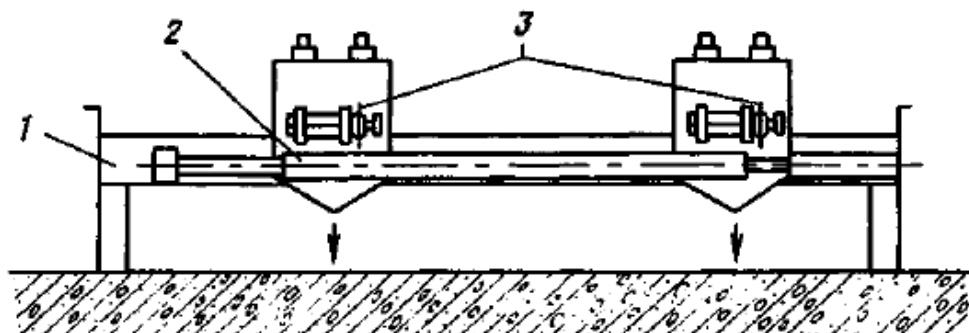


Рис. 3.2. Схема станка для отрезки хвостовиков:
1 – ванна; 2 – сборки твэлов; 3 – дисковые пилы

В России предусмотрено сплющивать сборки твэлов с помощью специального устройства и затем разрезать на куски длиной 40 мм с помощью прессы рубки [39] (рис. 3.3). Увеличение длины кусков при резке твэлов повышает производительность режущих агрегатов и уменьшает потери топлива на данной стадии. Однако при этом увеличивается продолжительность растворения и возрастает вероятность потери делящихся материалов с остатками оболочек.

Существенный недостаток метода рубки-выщелачивания – сложность оборудования для рубки твэлов и необходимость его дистанционного обслуживания.

В настоящее время исследуют возможность замены механических способов рубки. Так, изучали возможность электролитической резки кожуха сборок и оболочек твэлов с одновременным выщелачиванием топлива электролитом [49]. В Великобритании (завод в Дунрее), России, во Франции и в США ведут разработки, связанные с использованием для резки сборок твэлов лазерного луча (рис. 3.4).

На заводе в Дунрее лазерную резку используют для отрезания хвостовиков сборок твэлов реакторов на быстрых нейтронах, а также для продольной и поперечной резки кожуха сборки твэлов. После освобождения топливных стержней все оставшиеся конструкционные детали сборок режут также с помощью лазера на более мелкие куски, которые затем упаковывают в контейнеры для хранения.

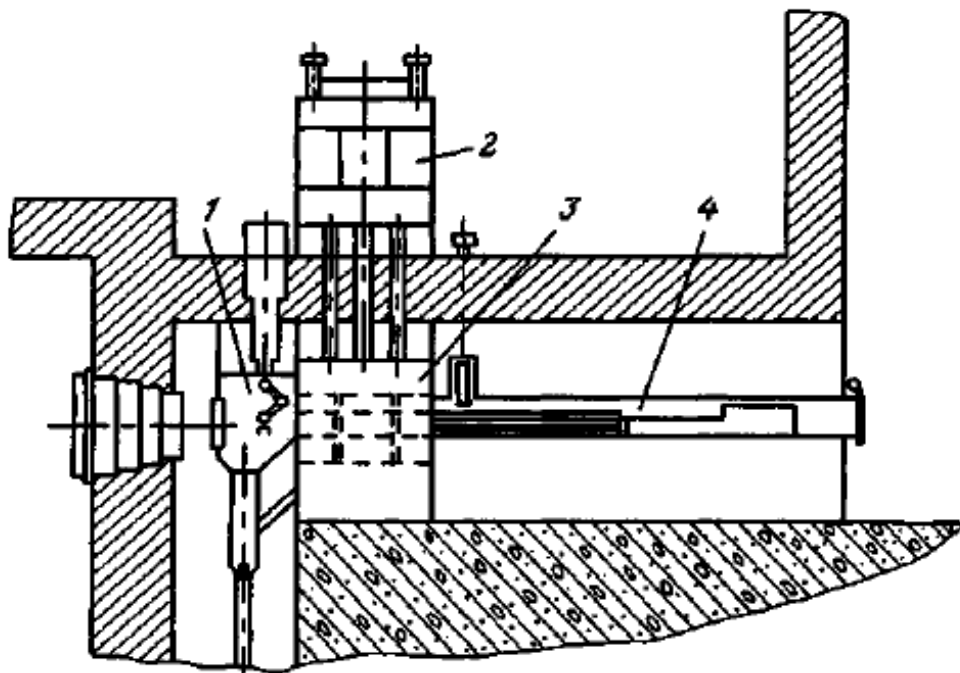


Рис. 3.3. Схема агрегата для резки ТВС:

1 – камера контроля кусков; 2 – прессовая установка; 3 – блок; 4 – камера подачи



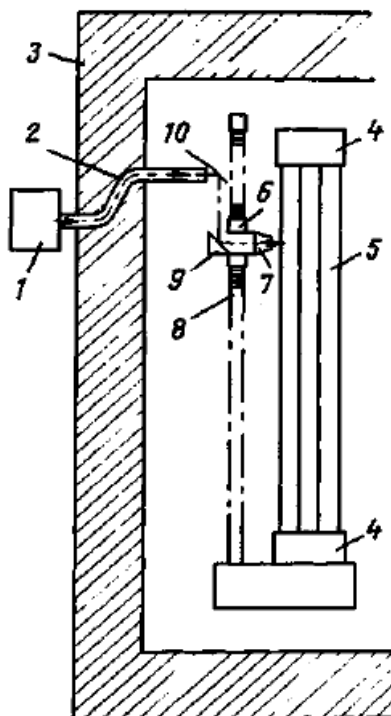


Рис. 3.4. Схема установки для лазерной резки ТВС:

1 – генератор; 2 – проводник; 3 – кран; 4 – установка для закрепления и вращения сборки; 5 – сборка ТВЭЛ; 6, 8 – приспособление для перемещения фокусирующего устройства; 7 – фокусирующее устройство; 9 – подвижное зеркало; 10 – неподвижное зеркало

Испытания лазера мощностью 400 Вт, работающего в непрерывном режиме, показали, что он может быть точно сфокусирован для резки кожуха (толщиной 3,25 мм) вдоль и поперек со скоростью резки 0,5 м/мин и при этом не будет оказывать большого влияния на прилегающие к кожуху топливные стержни.

Изучение возможных последствий аварийных случаев разрезания топливных стержней (хотя такие случаи и считают маловероятными) показало, что при воздействии луча лазера на сердечник возможно улетучивание некоторых продуктов деления и плутония, а также сплавление топливных материалов с образованием труднорастворимых соединений [50].

В Радиевом институте им. В.Г. Хлопина исследовалась возможность резки лучом лазера ТВЭЛ ВВЭР с разной глубиной выгорания. Была создана установка, включающая узел формирования лазерного луча, систему его транспортирования и ввода в защитную камеру, блок для размещения и герметизации вскрываемого топлива и систему для улавливания и анализа в процессе резки ТВЭЛ компонентов газовой смеси [40]. Результаты испытаний показали принципиальную возможность осуществления лазерного метода резки. Заданная мощ-



ность луча обеспечивала резку единичных твэлов ВВЭР в течение 0,5...1,0 с при ширине реза около 0,9...0,8 мм. Количество радиоактивных материалов, уносимых во время резов, соизмеримо с тем, которое образуется при механической рубке. Выделение газообразных и легколетучих компонентов определяется только объемом вскрываемой зоны твэла. Растворение партии кусков твэлов ВВЭР, нарезанных с помощью лазерного луча, не выявило существенного отличия от скорости растворения механически нарубленного топлива. Количество нерастворимых остатков и содержание в них урана и плутония были на допустимом уровне, близком к показателям традиционных способов вскрытия топлива.

Преимущество лазерной резки твэлов в сравнении с механической рубкой состоит в отсутствии сложного оборудования, требующего дистанционного обслуживания и ремонта.

Однако лазерная резка невозможна без создания установок с большим ресурсом непрерывной работы луча, совершенствования оптических систем транспортирования луча, его ввода в активную зону, фокусировки луча и геометрической ориентации при вскрытии твэлов.

3.2. Дополнительные операции подготовки топлива к растворению

В облученных твэлах с высокой и средней глубиной выгорания накапливается большое количество газообразных радиоактивных продуктов, которые представляют серьезную биологическую опасность. Этими продуктами, прежде всего, являются тритий, иод и криптон. В процессе растворения ядерного топлива основная их часть выделяется и уходит с газовыми потоками. Однако некоторое количество радиоактивных газов остается в растворе, а затем распределяется в большом количестве продуктов по всей цепочке переработки. Особую опасность при этом представляет тритий, образующий третированную воду, НТО, которую весьма трудно отделить от обычной воды. Поэтому на стадии подготовки топлива к растворению предлагается вводить дополнительные операции, позволяющие освободить топливо от основной массы радиоактивных газов и сосредоточить их в небольших объемах сбросных продуктов. Предложенные для этой цели методы хорошо сочетаются с методами резки твэлов на отдельные куски.

В США, России, Германии и Японии разработан процесс предварительной обработки топлива, получивший название «волоксидация», при котором куски оксидного топлива подвергают обработке кислородом при 450...470 °С. В этих условиях происходит перестройка структуры



решетки оксидного топлива в связи с переходом $\text{UO}_2 \rightarrow \text{U}_3\text{O}_8$. Образование октаоксида триурана приводит к увеличению поверхности топливных частиц, причем общий объем их может увеличиться до 30 %. Это вызывает увеличение напряжения и даже разрыв оболочек, что способствует выделению газообразных продуктов деления – трития, иода, благородных газов.

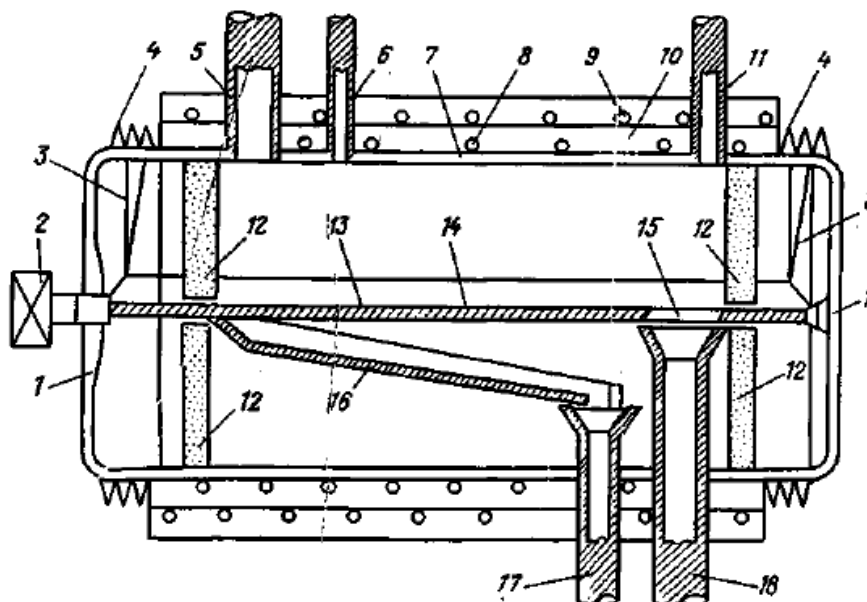


Рис. 3.5. Схема вибрационного аппарата для термоокислительной или термовосстановительной обработки топлива:

1 – внешние стенки-мембраны; 2 – вибратор; 3 – подвесные штанги; 4 – приспособление для охлаждения; 5 – место подачи топлива; 6 – ввод газа-окислителя; 7 – герметичный кожух аппарата; 8, 9 – змеевики для нагревания и охлаждения аппарата; 10 – слой термоизоляции; 11 – вывод газообразных продуктов; 12 – термоизолирующие стенки; 13 – мелкие отверстия в пластине 14 для прохождения порошкообразного топлива; 14 – пластина; 15 – отверстие в пластине 14 для более крупных частиц топлива и кусков оболочек; 16 – направляющая пластина для измельченного топлива; 17 – вывод облученного топлива; 18 – вывод оболочек

При испытании процесса волоксации на опытной установке в Радиовом институте им. В.Г. Хлопина куски твэлов длиной 40...50 мм подвергали нагреву до 420...460 °С в атмосфере кислорода в течение 6...8 ч. При этом в газовую фазу выделялось около 99,5 % трития, главным образом в виде НТО. Характер выделения благородных газов и иода существенно зависит от факторов, относящихся как к самому топливу, так и к условиям окислительной обработки. Поведение их в процессе объемного окисления кислородом весьма сложное. Степень их выделения в газовый поток непостоянна и составляет 40...70 % для Кг и 25...40 % для ^{129}I . Одновременно происходит отгонка примерно 90 % Ru в форме RuO_4 .

Разрыхление топливного материала при выделении газообразных продуктов, а также при переходе диоксида урана в U_3O_8 способствует ускорению последующего растворения топливных материалов в азотной кислоте. С этой же целью были предложены также и другие процессы газотермической обработки вскрытых твэлов, например гидрирование водородом, науглероживание, окисление при воздействии воздуха или паров воды и т. п. В некоторых разработках рекомендовано вести эти процессы в условиях вибрации топливных материалов (рис. 3.5).

Вопросы к главе 3

1. Какой состав оболочек современных твэлов?
2. Каковы особенности пирохимических методов снятия оболочек?
3. В чем состоит метод «очистки банана»?
4. Каковы преимущества метода рубка-выщелачивание?
5. В чем состоит процесс волоксации ОЯТ и когда его применяют?



4. РАСТВОРЕНИЕ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

Метод переведения ядерного топлива в раствор зависит от химической формы топливной композиции, способа предварительной подготовки топлива, необходимости обеспечения определенной производительности.

Химическая форма топливной композиции определяет выбор растворителя.

Например, топливо из металлического урана или оксидов урана и плутония растворяется в азотной кислоте. Сплавы урана с цирконием или нержавеющей сталью требуют или использования более агрессивных сред, или проведения электрохимического растворения и т. п.

Если на стадии предварительной подготовки топлива к переработке оболочки твэлов были удалены химическим или механическим способом, то на растворение поступают только сердечники твэлов. Если твэлы разрезаны на куски вместе с конструкционными материалами, необходимо производить избирательное выщелачивание топливных материалов, отделяя их от оболочек на стадии растворения. И наконец, если на стадии предварительной подготовки оболочки твэлов не разрушались, то производят совместное растворение материалов оболочек и топлива.

Производительность завода или установки определяет выбор конструкции и размеры аппаратов для растворения.

К процессу растворения предъявляют следующие *требования*:

- должна быть обеспечена высокая степень полноты растворения топливной композиции, чтобы не допустить потери делящихся материалов с нерастворимым остатком;
- обеспечение полноты растворения не должно приводить к получению большого объема разбавленных растворов;
- получение максимально концентрированных растворов не должно создавать условий для возникновения цепной ядерной реакции, т. е. *процесс растворения должен быть ядерно безопасен*;
- полученные растворы должны быть устойчивы во времени; в них не должны происходить химические процессы, например гидролиз, приводящие к выпадению в осадок ценных компонентов;
- материал аппаратуры должен быть коррозионно-стойк в отношении применяемых реагентов;
- используемые реагенты не должны отрицательно влиять на последующие стадии химической переработки.



4.1. Растворение топливных материалов без оболочек

4.1.1. Растворение металлического урана и диоксида урана

Растворение топливных материалов без оболочек осуществляют в двух вариантах:

- растворение сердечников, если их оболочки были предварительно удалены;
- выщелачивание топливных материалов из отрезков ТВЭЛОВ.

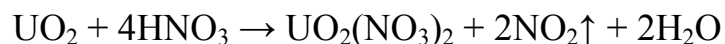
Химическое и механическое снятие оболочек применяют для ТВЭЛОВ, сердечники которых состоят из металлического урана, рубку ТВЭЛОВ производят при переработке оксидного топлива. В обоих случаях дальнейшее растворение сердечников проводят в азотной кислоте без каких-либо катализирующих добавок.

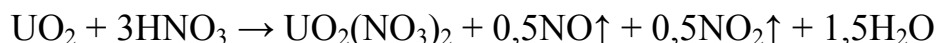
Металлический уран обычно растворяют в 8...11 М HNO_3 , а диоксид урана – в 6...8 М HNO_3 при 80...100 °С (заводы в Маркуле и на м. Аг, Франция; в Селлафилде, Великобритания).

Растворение урана в азотной кислоте представляет собой сложный процесс [23, 36]. Состав образующихся конечных продуктов, расход азотной кислоты и скорость растворения зависят от многих факторов, в частности от концентрации азотной кислоты, температуры, скорости удаления газообразных продуктов реакции, наличия продувки раствора воздухом или кислородом, наличия перемешивания или циркуляции раствора.

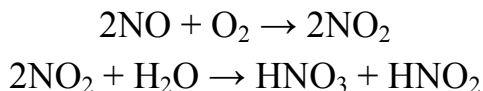
Полнота и скорость выщелачивания оксидного топлива из отрезков ТВЭЛОВ зависят от возможности проникновения кислоты внутрь топливной таблетки (ТТ) в отрезках ТВЭЛОВ, т. е. от длины отрезков, возможности высыпания частиц топлива из полости отрезка, от степени деформации и формы края оболочки на отрезках. Производительность узла растворения можно увеличить, если отрезки ТВЭЛОВ перед растворением пропустить между валками, подвергая их сжимающей деформации. При этом более 15 % UO_2 высыпается из оболочки, и кислота легче проникает в отрезки. Если растворение топлива из недеформированных отрезков ТВЭЛОВ длиной 5 см происходит за 10 ч, то из кусков, деформированных сжатием до 10...15 % первоначального диаметра, растворение протекает быстрее на 3 ч с учетом операций обмывки оболочек.

Диоксид урана растворяется достаточно быстро в кипящей азотной кислоте. В зависимости от концентрации азотной кислоты и соотношения количеств диоксида урана и кислоты растворение протекает с выделением разных количеств диоксида или оксида азота и может быть описано реакциями:





Одновременно с растворением металлического урана или диоксида урана протекают реакции, приводящие к частичной регенерации азотной кислоты:



Образующиеся при растворении газы поступают с восходящим потоком в конденсатор аппарата растворения, где большая часть NO окисляется воздухом до NO₂, поглощается водой с образованием HNO₃ и возвращается с обратным потоком азотной кислоты. Кроме оксидов азота отходящие газы содержат небольшое количество азота, оксидов углерода (за счет примесей графита в металле) и водорода.

Чтобы снизить расход азотной кислоты, оксиды азота окисляют кислородом или воздухом, который для этой цели вводят в аппарат-растворитель. Полное окисление оксидов азота с последующим поглощением их водой и образованием азотной кислоты, которое может быть осуществлено при непрерывной циркуляции реагентов через аппарат-растворитель и дефлегматор, способствует созданию условий «бездымного» растворения.

Разрушение топливной композиции при растворении приводит к освобождению всех радиоактивных продуктов деления. При этом газообразные продукты деления (йод, криптон) попадают в систему сброса отходящих газов. Перед выбросом в атмосферу сбросные газы проходят через систему газоочистки (см. разд. 9.5). Большая часть других, 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. Кроме того, в нерастворенном виде остается часть углерода и кремния, которые могут присутствовать как в материале сердечника, так и в смазочных материалах, находящихся между поверхностью сердечника и оболочкой твэла.

Изучение растворимости октаоксида U₃O₈, образующегося при термообработке UO₂, показало, что скорость растворения увеличивается с ростом концентрации азотной кислоты от 0,1 до 10 М и увеличением температуры от 30 до 95 °С, а также зависит от интенсивности перемешивания. Удаление на стадии термообработки трития и рутения приводит к тому, что в растворе U₃O₈ их концентрация ниже, чем в растворе



UO₂. В то же время *термообработка вызывает образование трудно-растворимых форм плутония, рутения, молибдена, палладия, технеция, родия и, соответственно, повышение количества нерастворимых остатков примерно в 2 раза* [42].

4.1.2. Растворение смешанного уран-плутониевого оксидного топлива

Смешанное оксидное топливо (U, Pu)O₂ растворяют в концентрированной азотной кислоте. Полнота и скорость растворения (U, Pu)O₂ зависят от содержания плутония в топливе, способа изготовления топлива, влияющего на гомогенность композиции, объема и концентрации азотной кислоты, температуры и т. п.

Растворимость смешанного топлива падает с ростом содержания в нем плутония.

Процесс его растворения протекает более сложно, чем растворение чистого диоксида урана. Если UO₂ растворяется в HNO₃ быстро за счет окисления иона U⁴⁺ до UO₂²⁺ и перехода уранил-иона из решетки оксида в раствор, то PuO₂ – *труднорастворимое соединение – не окисляется ни азотной, ни азотистой кислотой* [43]. Для перевода PuO₂ в азотнокислый раствор необходимо вводить окисляющие или комплексообразующие добавки или применять электрохимическое окисление.

В качестве добавок могут быть использованы HF, HI, HBr, HCl, H₂SO₄, четырехвалентный церий, серебро в двухвалентном состоянии или трехвалентный кобальт и т. п. В ряде американских и французских работ предлагалось поддерживать необходимую концентрацию окисляющего иона электролитически. Такими электрохимически генерируемыми окислителями могут быть, в частности, ионы, присутствующие в топливе в качестве продукта деления или продукта другой ядерной реакции, например церий и америций [41, 43, 44].

При сопоставлении пар Ag²⁺/Ag¹⁺, Ce⁴⁺/Ce³⁺ и Co³⁺/Co²⁺ установлено, что обмен электроном в первой паре происходит быстрее, чем в двух других, и именно этот окислитель рекомендован для использования в укрупненных испытаниях. Однако *чаще всего при растворении (U, Pu)O₂ в азотной кислоте применяют фторид-ионы*, хотя введение в раствор коррозионно-активного иона усложняет процесс и вызывает необходимость очистки раствора от этого иона перед экстракцией. Поэтому продолжают поиски методов растворения без добавок или с минимальными добавками фторид-иона или других реагентов.

Было показано [45], что (U, Pu)O₂, так же как и PuO₂ и ThO₂, можно растворять без добавок фторид-иона в концентрированной азотной кис-



лоте при температурах от 120 до 300 °С в атмосфере озонированного кислорода в автоклаве. Однако этот метод вряд ли может быть рекомендован для промышленного использования.

Увеличению полноты растворения топлива в азотной кислоте без добавок окислителей способствуют следующие условия изготовления топлива:

- повышение температуры спекания таблеток топлива до 1700 °С, если топливо образовали смешением порошков оксидов;
- снижение размера частиц индивидуальных оксидов до величины менее 10 мкм;
- образование (U, Pu)O₂ методами соосаждения, например методом AUPUC (Ammonium Uranyl Plutonyl Carbonate), золь-гель или с применением микроволнового нагрева [46].

Твердые гомогенные растворы UO₂-PuO₂ растворяются гораздо полнее, чем механически смешанные порошки, когда PuO₂ диспергирован в матрице UO₂. Максимальное содержание PuO₂ в твердом растворе (U, Pu)O₂, при котором топливо практически полностью растворяется, обычно оценивается в 30...35 % мас. Однако систематическое изучение растворимости (U, Pu)O₂ с содержанием плутония от 25 до 75 % в кипящей азотной кислоте показало, что верхний предел концентрации плутония в топливе может быть повышен. Образцы (U, Pu)O₂ в виде твердого раствора, содержащего 55 и 65 % мас. Pu, полностью растворяются в 5 и 10 М кипящей азотной кислоте соответственно, если содержание суммы металлов в образующемся растворе не превышает 1 М. Если сумма концентраций U и Pu в растворе больше 1 М, то растворимость (U, Pu)O₂ падает.

В этом случае предельное содержание плутония для растворения в 5 М HNO₃ составляет 35 %, а для 10 М HNO₃ – 40 % PuO₂ в смешанном топливе [47].

4.1.3. Растворение карбидного топлива

Наряду с разработкой методов растворения оксидного топлива проводится изучение процессов растворения перспективных видов топлива: карбидного, карбонитридного и нитридного, содержащего не только уран, но и плутоний.

Нитридное топливо хорошо растворяется в азотной кислоте, образуя прозрачный темно-желтый раствор, а карбидное и карбонитридное топливо – непрозрачные растворы желтого цвета.

В зависимости от режима растворения большая или меньшая часть углерода превращается в CO₂, а оставшаяся часть переходит в раствор в форме углеродсодержащих органических кислот, в основном щавелевой



и меллитовой (бензолгексакарбоновая кислота). Превращению углерода карбидного топлива в CO_2 способствуют относительно низкие концентрации азотной кислоты (2...4 М) и высокая температура [48, 49].

Наличие в растворе органических кислот мешает нормальному протеканию дальнейшего процесса очистки урана и плутония.

Поэтому органические примеси должны быть разрушены. Для этой цели предложено применять химические окислители (MnO_2 , PbO_2) или фотохимический способ.

В Великобритании разработан метод растворения смешанного карбидного топлива (U, Pu)C, заключающийся в обработке топлива 6 М HNO_3 и потоком озонированного кислорода. Вместо озонированного кислорода может быть использовано электролитическое окисление. Полученный раствор не требует дополнительной очистки от органических соединений перед экстракционной очисткой.

4.2. Совместное растворение топливных материалов и оболочек твэлов

Разрушение оболочек твэлов на стадии предварительной подготовки целесообразно использовать не во всех случаях переработки твэлов. Оно оказывается непригодным, например, для твэлов сложной конфигурации или в тех случаях, когда материал сердечника нерастворим в азотной кислоте, а также при переработке высокообогащенного топлива, где нежелательны даже незначительные потери ценных компонентов в процессе снятия оболочек. В таких случаях целесообразно производить совместное растворение оболочек и сердечника.

4.2.1. Растворение уран-алюминиевого ядерного топлива

Совместное растворение оболочек из алюминия и магния и сердечников твэлов применяли в первые периоды работы на французских заводах, на заводе в Тромбее (Индия) и на итальянских установках. твэлы из высокообогащенного (93 % ^{235}U) урана и из сплавов урана с алюминием вместе с алюминиевой оболочкой растворяют на заводах США в Айдахо и в Саванна-Ривере. Растворение производят в разбавленной азотной кислоте с нитратом ртути в качестве катализатора при температуре кипения раствора (около 110 °С). В начале процесса необходимо нагревание раствора, а затем – отвод тепла, т. к. реакция является сильно экзотермической.

Разработано и запатентовано несколько способов проведения растворения таких материалов. Например, его рекомендуют начинать в 0,8...1,2 М HNO_3 в присутствии 0,003...0,015 М Hg^{2+} при 70 °С, а затем



добавлять концентрированную азотную кислоту для создания в системе кислотности до 4...6 М [51].

Скорость растворения уран-алюминиевых сплавов в азотной кислоте сильно зависит от состава примесей в топливе.

Например, никель, кремний и медь значительно уменьшают скорость растворения, а железо его слабо катализирует [52]. Так, если время растворения порции сплава урана с высокочистым алюминием составляет 14 мин, то для такой же порции уран-алюминиевого сплава с содержанием 2,9 % кремния оно составляет 1400 мин. Технология растворения топлива из сплавов алюминия с ураном в азотной кислоте хорошо отработана. Процесс легко протекает даже для твэлов с большой глубиной выгорания. Недостаток технологии заключается в том, что в отходы переходит относительно большое количество ртути, которая интенсифицирует коррозию и тем самым усложняет процессы переработки и хранения отходов, а также в увеличении вероятности образования стабилизированных эмульсий, осложняющих последующий процесс экстракционной очистки.

Как было показано в Саванна-Ривере, в азотной кислоте с ртутным катализатором хорошо растворяется также топливо на основе силицида и оксида урана в алюминиевой матрице. Время растворения 4...8 ч, что соответствует режиму работы узла растворения завода [53].

4.2.2. Растворение уран-циркониевого ядерного топлива

Совместное растворение ядерного топлива и оболочки часто требует использования более агрессивных реагентов-растворителей, чем азотная кислота.

При изготовлении твэлов в качестве конструкционного материала оболочки, а также инертного компонента сердечника часто используют цирконий, т. к. он обладает малым сечением захвата нейтронов и весьма коррозионно-стоек. По этой последней причине он не растворяется в азотной кислоте.

Растворение твэлов на основе сплавов урана с цирконием осуществляют в смеси фтористо-водородной и азотной кислот.

Однако при этом возникают трудности в выборе материала для аппаратуры, поскольку фторид-ионы вызывают сильную коррозию нержавеющей сталей. Подходящим материалом является монель – сплав на основе никеля с добавкой 27...29 % меди, 2...3 % железа и 1,2...1,8 % марганца (иногда за счет уменьшения содержания меди он содержит до 3 % алюминия). Фтористоводородную кислоту иногда рекомендуют заменять фтори-



дом аммония или калия. Для снижения коррозии аппаратов-растворителей в раствор вводят нитрат алюминия. Комплексообразование фторид-ионов с алюминием приводит к уменьшению их активности в растворе.

При высоком содержании циркония в сердечнике твэлов (>90 %) растворение можно проводить непосредственно во фтористоводородной кислоте. Однако большой избыток свободных фторид-ионов вызывает выпадение в осадок урана в виде $UF_4 \cdot 3/4H_2O$. Уменьшение концентрации свободных фторид-ионов приводит к гидролизу солей циркония.

Область стабильности таких растворов жестко ограничена и зависит от концентрации фторидов циркония, кислотности раствора и температуры. Поэтому при растворении топлива необходим строгий контроль за концентрацией фтористоводородной кислоты и температурой раствора. Для удерживания урана в растворе рекомендуется переводить его в шестивалентное состояние путем введения в процесс окислителей.

На заводе в Айдахо (США) для растворения ядерного топлива в оболочке из циркалоя сложного состава, например топлива из ZrO_2-UO_2 , покрытого пиролитическим графитом, применяют трехступенчатый процесс:

- оболочку растворяют в 5 М HF;
- диоксид циркония – в 20 М HF;
- для полного растворения диоксида урана к раствору в качестве окислителя добавляют 0,1 М H_2CrO_4 [23].

Для связывания фторид-ионов в комплексы с целью предотвращения коррозии и уменьшения общего количества радиоактивных отходов на этом заводе практикуется совместное растворение твэлов на основе уран-алюминиевых и уран-циркониевых сплавов.

4.2.3. Растворение твэлов в оболочках из нержавеющей стали

Для растворения твэлов в оболочках из нержавеющей стали, так же как и для растворения циркониевого топлива, используют агрессивные среды, оказывающие сильное коррозионное воздействие на аппаратуру.

Совместное растворение оболочек из нержавеющей стали и ядерного топлива возможно в смесях азотной кислоты с соляной или серной кислотами.

При использовании соляной кислоты (например, смеси 5 М HNO_3 и 2 М HCl) процесс протекает быстро и с высокой степенью полноты.

Однако в связи с сильной агрессивностью соляной кислоты процесс можно проводить только в аппаратах из титана или тантала. Поэтому перед подачей раствора на экстракцию в аппаратах из нержавеющей



щей стали соляную кислоту из раствора необходимо удалить. Для этого разработан процесс противоточной дистилляции с 15,2 М HNO_3 [23].

После растворения нержавеющей стали в серной кислоте экстракцию можно производить непосредственно из полученного разбавленного раствора. Однако присутствие сульфат-ионов крайне нежелательно не только из-за их коррозионного воздействия, но и в связи с возможностью образования нерастворимых сульфатов в перерабатываемых растворах.

4.2.4. Электрохимическое растворение

Приведенный выше обзор методов растворения ядерного топлива показывает, что азотная кислота имеет некоторые преимущества по сравнению с другими растворителями. Растворение в ней происходит достаточно быстро, полученные растворы пригодны для экстракционной переработки. В качестве конструкционных материалов на всех узлах технологической схемы можно использовать нержавеющую сталь. Поэтому *для перевода труднорастворимых видов топлива в раствор с помощью азотной кислоты были разработаны методы электрохимического растворения.*

Метод электрохимического анодного растворения впервые был испытан в США в 1951 г., а затем использован на заводах в Айдахо и в Саванна-Ривере при переработке топлива типа керметов в оболочках из нержавеющей стали или нихрома [54]. Этот метод особенно удобен в тех случаях, когда необходимо перерабатывать небольшие партии разнообразных по составу твэлов сложной конфигурации из высокообогащенного урана.

Электрохимический метод приводит к практически полному растворению материалов сердечника и оболочек [55]; нерастворенными остаются лишь графит и цирконий. Если твэлы имели оболочки из циркалия, то сплав разрушается, а цирконий в виде гидратированного диоксида выпадает в осадок на дно аппарата.

Выбор соответствующих режимов электрохимического процесса позволяет производить дифференцированное растворение: одновременно растворять оболочку и сердечник; либо отдельно растворять оболочку, а затем сердечник; либо растворять только сердечник. Это дает возможность отделить основную массу конструкционных материалов от топливных на стадии растворения и при этом избежать потерь ценных компонентов, которые возможны при отделении оболочек на стадии предварительной подготовки. Решающее значение для успешного осуществления электрохимического растворения имеет конструкция аппаратов-электролизеров.



Таким образом, любые конструкционные материалы и топливные композиции могут быть переведены в раствор.

Однако в условиях высокопроизводительной промышленной переработки, например при экстракционной переработке твэлов АЭС, более целесообразно осуществлять процесс рубки-выщелачивания. При поступлении на переработку большого количества однотипного стандартного топлива оправдана установка даже достаточно сложного оборудования для рубки твэлов, т. к. при этом достигается выигрыш за счет сокращения количества образующихся жидких радиоактивных отходов.

Кроме того, использование процесса рубки-выщелачивания исключает поступление в перерабатываемые растворы нежелательных примесей, в частности компонентов оболочки из нержавеющей стали и циркония, железа, никеля, хрома и других, которые могут осложнять технологию переработки радиоактивных растворов.

4.3. Оборудование для растворения ядерного топлива

На радиохимических заводах и установках растворение и выщелачивание ядерного топлива осуществляют в периодическом, полунепрерывном и непрерывном режимах. Для каждого из этих режимов разработаны многочисленные конструкции аппаратов-растворителей. *Аппараты-растворители* любой конструкции должны удовлетворять следующим требованиям:

- обеспечение свободной циркуляции раствора и необходимого для растворения времени контакта;
- поддержание установленной кислотности раствора;
- регулирование температуры раствора для поддержания необходимой скорости растворения;
- соблюдение условий ядерной безопасности;
- обеспечение системами конденсации азотной кислоты и очистки выделяющихся при растворении газов;
- коррозионная стойкость конструкционных материалов по отношению к используемым реагентам.

Аппараты, предназначенные для выщелачивания сердечника твэлов, должны обеспечивать возможность обмывки, контроля и выгрузки нерастворившихся кусков оболочек. Поэтому аппараты для выщелачивания более сложны по конструкции, чем аппараты, в которых должно происходить полное растворение поступающего в них материала.



4.3.1. Аппараты периодического действия

Для осуществления периодического и полунепрерывного процессов выщелачивания на ряде заводов (м. Аг, Вест-Вэлли, Барнуэлл, Карлсруэ) установлены *аппараты корзиночного типа* (рис. 4.1). Куски твэлов, разрезанные вместе с оболочкой, загружают в перфорированные корзины из нержавеющей стали, которые погружают в растворитель.

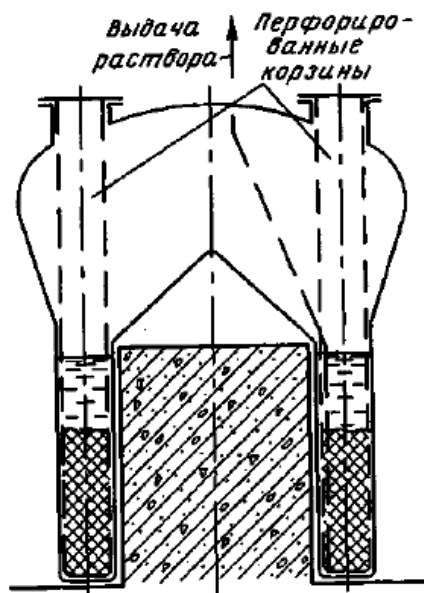


Рис. 4.1. Схема корзиночного аппарата-растворителя

По окончании растворения корзину с кусками оболочек вынимают из растворителя, промывают последовательно разбавленной азотной кислотой и водой. Куски оболочек перегружают в контейнер для хранения, а корзину вновь используют для растворения [32, 36, 38].

Полунепрерывный процесс растворения отличается от периодического тем, что загрузку и выгрузку корзины производят периодически, а раствор ядерного топлива непрерывно циркулирует между аппаратом для растворения и буферной емкостью, из которой часть раствора непрерывно отбирают для дальнейших операций.

На заводе THORP в Селлафилде установлены три периодически действующих аппарата, которые поочередно соединяются с агрегатом резки через поворотное устройство. Емкость каждого аппарата около 1,7 т по урану; цикл загрузки, растворения и выгрузки для одного аппарата будет продолжаться по 12 ч. Корзину, загруженную кусками топлива длиной 2,5...10 см (по другим данным 2,5...7,5 см), погружают в 7 М азотную кислоту при 90 °С. За счет теплоты растворения температура быстро поднимается до 105 °С. Оболочки удаляют из аппарата вместе с корзиной, далее производят измерение их радиоактивности, промывку и выгрузку [18].



В последние годы создаются аппараты-растворители с высокой разовой загрузкой (до 2 т). В Германии предложена ядерно-безопасная конструкция аппарата, включающая плоский бак-хранилище раствора, к узким стенкам которого присоединяются еще два плоских бака. В эти боковые баки помещают корзины с топливом. Все баки имеют общее днище с уклоном в сторону боковых баков.

Если сердечник твэла растворяют вместе с оболочкой, иногда используют корзины одноразового действия из растворимого материала, идентичного материалу оболочки, например из алюминия. Тогда вместе с ядерным топливом растворяется и корзина. Такой метод растворения применяли на заводе в Моле до его реконструкции.

Аппараты-растворители корзиночного типа зарекомендовали себя в процессе эксплуатации как простые и надежные конструкции. Существенным недостатком этого метода растворения является необходимость транспортирования пылящего на местах среза высокоактивного материала в перфорированных корзинах от места их загрузки (агрегат рубки твэлов) до аппарата-растворителя. Такие открытые операции крайне нежелательны при обращении с высокоактивными пылящими материалами.

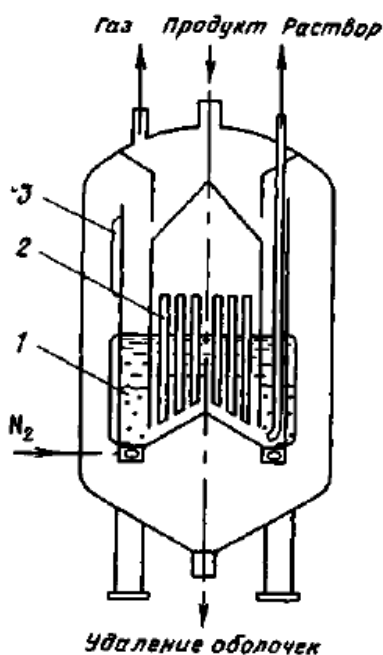


Рис. 4.2. Схема аппарата-растворителя периодического действия с пневматической выгрузкой оболочек:

1 – куски твэлов; 2 – стержни с поглотителями нейтронов; 3 – пароводяная рубашка

В России разработан аппарат-растворитель периодического действия с пневматическим выбросом оболочек (рис. 4.2) [56]. Нарезанные куски твэлов из агрегата рубки поступают по герметично присоединен-



ному трубопроводу непосредственно в кольцо аппарата-растворителя, в котором производится выщелачивание топлива. В нижней части кольца имеются сопла, через которые под давлением подается азот для выброса оболочек в контейнеры после растворения материала сердечника. Недостатком растворителя с пневматической выгрузкой оболочек является большой расход азота, который необходимо очищать от радиоактивных аэрозолей, образующихся в аппарате при выбросе оболочек.

4.3.2. Аппараты непрерывного действия

Непрерывный процесс растворения осуществляют в герметичных горизонтальных или вертикальных аппаратах, в которых движение кусков твэлов и азотной кислоты организовано, как правило, по принципу противотока. При установке аппаратов непрерывного действия необходимо обеспечить синхронизацию его работы с агрегатом рубки твэлов. При этом из агрегата рубки должны равномерно поступать куски твэлов одинакового размера.

Аппарат непрерывного действия для растворения уранового топлива установлен на заводе в Селлафилде. В США, Франции и Великобритании ведутся разработки аппаратов непрерывного действия типа *вращающегося барабана* или *со спирально движущимся шнеком внутри камеры* растворения. Аппараты пригодны для растворения высоковыгоревшего оксидного уранового и смешанного уран-плутониевого топлива.

В ядерном центре Фонтене-о-Роз (Франция) разработан вращающийся *аппарат непрерывного растворения для крупных заводов* производительностью 6 т/сут (рис. 4.3). Подобный аппарат будет установлен на заводе UP-3 на м. Аг. Аппарат состоит из резервуара с раствором азотной кислоты, в который погружено вращающееся устройство в форме колеса. Внутренний диаметр колеса – 1 м, внешний диаметр – 2,7 м, толщина колеса – 16 см. Колесо разделено на 12 одинаковых загрузочных камер. Трубопровод для подачи топлива из агрегата рубки стыкуется с верхней частью загрузочных камер колеса. Топливо непрерывно подается в трубопровод, а затем в одну из загрузочных камер. При вращении колеса загрузка происходит поочередно в каждую камеру. Вращение прекращается только на несколько секунд для ввода топлива в загрузочную камеру. Загруженные топливом камеры постепенно опускаются в нижнюю часть аппарата, заполненную кипящей азотной кислотой. Одновременно там находятся четыре камеры. Скорость вращения колеса регулируют и устанавливают такой, чтобы топливо полностью растворилось. После растворения скрап из оболочек топлива, оставшийся в камерах, промывают азотной кислотой и направляют на выгрузку [36].



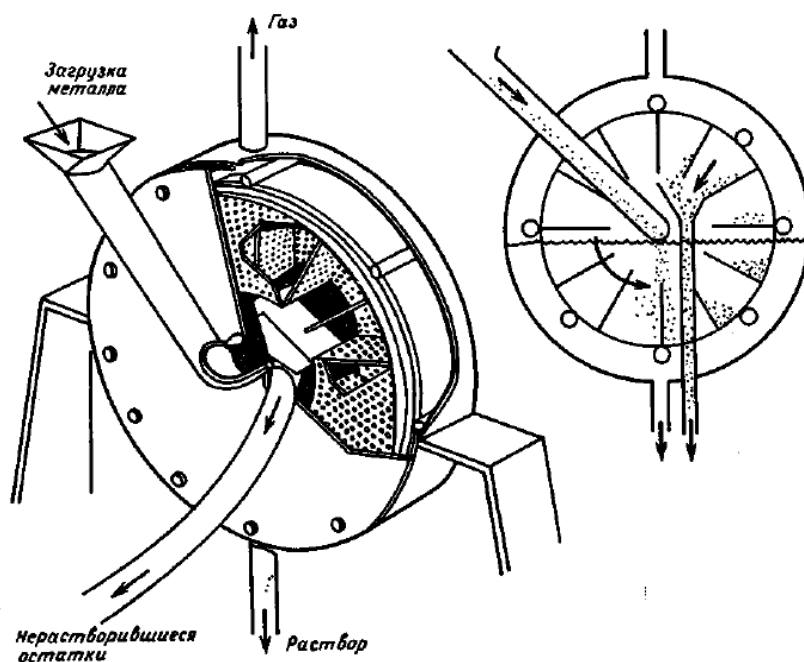


Рис. 4.3. Схема вращающегося аппарата – растворителя непрерывного действия

В Ок-Риджской национальной лаборатории разработан аппарат для непрерывного выщелачивания в форме цилиндрического барабана, продольная ось которого расположена горизонтально. Барабан можно вращать как по часовой стрелке, так и против. Аппарат разделен вертикальными перфорированными перегородками на отсеки, первый из которых служит для приема нарезанных кусков твэлов, а последний – для выгрузки нерастворившегося твердого материала. Промежуточные отсеки предназначены для выщелачивания. Перфорация обеспечивает свободное перемещение раствора через перегородки противотоком по направлению передвижения твердых частиц. Для переноса твердого вещества из отсека в отсек в каждой перегородке есть отверстие. Отсеки снабжены лопатками для перемешивания материала и приспособлением для его переноса в другой отсек. Процесс выщелачивания проводят при вращении аппарата в одном направлении – против часовой стрелки, а перегрузку материала из отсека в отсек при вращении в другом направлении – по часовой стрелке. Такая последовательность смены направлений вращения продолжается до тех пор, пока куски твэлов не пройдут все отсеки для выщелачивания, а нерастворившиеся куски оболочек не попадут в последний отсек, откуда их сбрасывают в отверстие выходной трубы.

Продолжительность выщелачивания и пребывания кусков твэлов в аппарате регулируется в соответствии с заданной концентрацией растворителя, скоростью его потока, а также в зависимости от размера кусков твэлов и скорости растворения топлива.



Возможны и другие конструкции аппаратов непрерывного действия. Например, в Германии предложен *неподвижный U-образный аппарат*, внутри которого движется транспортер через зону загрузки кусков топлива, U-образную зону растворения, зону обмывки оболочек и зону их выгрузки [57]. Во Франции в Маркуле предложен аппарат с вибрирующей спиралью (рис. 4.4) [36].

Одним из существенных преимуществ непрерывного процесса растворения является то, что в единицу времени растворяются примерно одинаковые количества топлива, поэтому происходит равномерное во времени выделение газов и паров, образующихся при растворении. Это дает возможность уменьшить габаритные размеры оборудования системы газоочистки по сравнению с размерами этих систем при периодическом процессе растворения, когда в результате быстрого протекания реакции растворения в начальный период времени происходит бурное выделение сразу большого объема газов.

Недостаток аппаратов непрерывного действия состоит в наличии движущихся деталей (рабочий орган, рессоры и т. п.), которые необходимо герметично соединять с неподвижными коммуникациями.

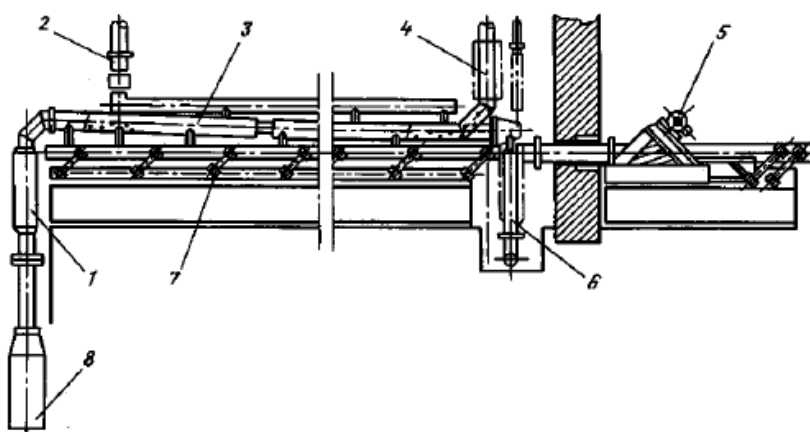


Рис. 4.4. Схема аппарата-растворителя с вибрационным перемещением оболочек и топлива:

1 – выгрузка оболочек; 2 – сдувка; 3 – рабочий орган; 4 – загрузка топлива;
5 – вибропривод; 6 – слив раствора; 7 – рессоры; 8 – контейнер

Для устранения этого недостатка в России разработана модель аппарата-растворителя непрерывного действия с транспортированием кусков твэлов с помощью бегущего электромагнитного поля [58]. Аппарат компактен и не имеет движущихся частей. Лабораторные испытания модели аппарата показали, что этот принцип может быть положен в основу действующей установки.

В России разработана также конструкция барабанного шнекового аппарата [46] и аппарата с применением вибрации [58] (рис. 4.4).



Многочисленность конструкций аппаратов-растворителей непрерывного действия, различающихся по форме и способу транспортирования кусков твэлов, свидетельствует о том, что до настоящего времени еще не создан аппарат, в полной мере удовлетворяющий требованиям радиохимического производства.

4.3.3. Аппараты для электрохимического растворения

Аппараты для электрохимического растворения могут быть и периодического, и непрерывного действия. Конструкции электролизеров этих аппаратов можно подразделить на два типа [35].

В электролизере первого типа электроконтакт с растворяемым топливом устанавливается через раствор. Куски твэлов загружаются в корзины из инертного материала. Постоянный ток проходит через раствор (рис. 4.5). Действующий на заводе в Айдахо электролизер такого типа, рассчитанный на токовую нагрузку 10 000 А, предназначен для растворения топливных композиций с нержавеющей сталью. Расход электроэнергии составляет 400 кВт·ч на 1 кг растворенной стали.

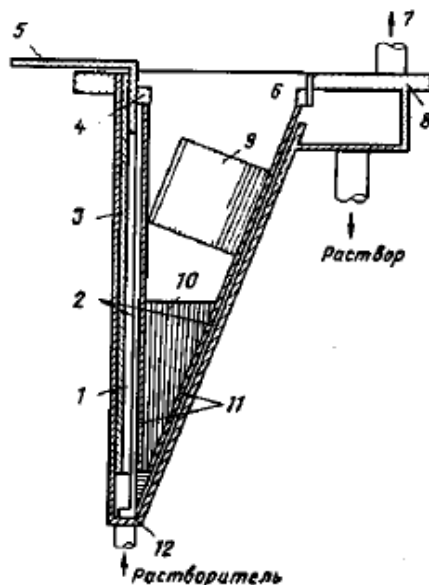


Рис. 4.5. Принципиальная схема аппарата для электрохимического растворения: 1 – пластина из платины толщиной 0,25 мм (анод); 2 – щель для циркуляции раствора; 3 – пластиковый экран анода; 4 – перегородка; 5 – титановая шина анода; 6 – вывод раствора и газов; 7 – газообразные отходы; 8 – катодная шина; 9 – загруженный твэл; 10 – частично растворенный твэл; 11 – перфорированная ниобиевая корзина; 12 – катод из титана (корпус)

В аппаратах второго типа анодом являются сами растворимые куски твэлов, которые должны иметь хороший контакт с анодным токопроводом, выполненным в виде корзины. Материалом для корзины служит ниобий или тантал. Катодом является корпус электролизера.

Недостаток такого электролизера заключается в трудности обеспечения устойчивого электроконтакта между корзиной и растворяемым материалом. Для восстановления электроконтакта между твэлами и корзиной использовали встряхивающее устройство. Электролизер этого типа был испытан на заводе в Саванна-Ривере. Скорость растворения керамического ядерного топлива в оболочке из нержавеющей стали при силе тока 3500 А составляла 2,3 кг/ч.

4.4. Обеспечение ядерной безопасности в процессе растворения

Для обеспечения ядерной безопасности в процессе растворения используют разные *приемы*:

- подбор геометрии аппаратов (Барнуэлл, Вест-Вэлли, Айдахо, Карлсруэ);
- ограничение количества загружаемого в аппарат ядерного топлива (Вест-Вэлли, Моль, Среднезападный);
- ограничение максимальной высоты уровня раствора в аппаратах-растворителях непрерывного действия (Среднезападный);
- регулирование количества и концентрации подаваемой на растворение азотной кислоты (Вест-Вэлли);
- использование растворимых поглотителей нейтронов, таких как борная кислота, растворимые соли кадмия или гадолиния (Айдахо, Барнуэлл, Саванна-Ривер, Моль, Вест-Вэлли, Селлафилд);
- применение в аппаратах-растворителях вставок из водородсодержащих материалов для замедления нейтронов и вставок, поглощающих нейтроны, например в виде пластин из борсодержащей стали (Саванна-Ривер).

Как правило, для обеспечения ядерной безопасности процесса одновременно используют несколько из указанных приемов.

Вопросы к главе 4

1. Какие требования предъявляются к процессу растворения ОЯТ?
2. Какую кислоту и какой концентрации применяют для растворения диоксида урана?
3. Напишите реакции растворения диоксида урана в кислоте.
4. В чем состоят особенности растворения смешанного уран-плутониевого оксидного топлива?
5. Какие аппараты применяют для растворения ОЯТ и в чем особенности их конструкции?



5. ПОДГОТОВКА РАСТВОРА ОЯТ К ЭКСТРАКЦИИ

Полученный в процессе растворения азотнокислый раствор ядерного топлива, содержащий кроме ценных продуктов также продукты деления, компоненты конструкционных материалов и примеси, направляют на экстракционную переработку с целью очистки и разделения урана и плутония. Однако для обеспечения бесперебойной работы оборудования, достижения заданных коэффициентов очистки урана и плутония и их разделения *раствор необходимо предварительно очистить от взвесей и провести корректировку его состава в соответствии с технологическими условиями I экстракционного цикла.*

5.1. Осветление

Полученный в процессе растворения ядерного топлива продукт всегда содержит некоторое количество осадков, взвесей и коллоидов, состоящих из труднорастворимых компонентов.

Их состав зависит от многих факторов:

- химического состава сердечника и конструкционных материалов твэла;
- глубины выгорания топлива в ядерном реакторе;
- температурного режима в процессах изготовления твэлов и облучения топлива в ядерном реакторе;
- способа снятия оболочки и перевода топлива в раствор и др.

Следовательно, состав взвесей не может быть постоянным и определенным.

Анализ нерастворимых остатков оксидного топлива энергетических реакторов показал, что они включают:

- мелкие частицы оболочек (циркаловых и из нержавеющей стали) и конструкционных материалов сборок топлива в количестве 0,5...5,5 кг/т в зависимости от способа резки топлива и степени износа режущего полотна;
- частицы продуктов активации элементов конструкционных материалов (хрома, никеля, железа) в количестве около 1,8 кг/т;
- частицы продуктов деления в количестве от 1 до 6 кг/т в зависимости от химического состава топлива и его глубины выгорания;
- остатки нерастворившегося топлива, масса которых зависит от способа получения и состава топлива, в частности от температурного режима в процессах изготовления твэлов и облучения в ядерном реакторе, а также от условий растворения;
- вторичные осадки, образующиеся непосредственно в растворе при взаимодействии компонентов раствора, в количестве до 3 кг/т.



Суммарное количество осадков достигает нескольких килограммов на 1 т урана и составляет для оксидного уранового топлива 0,19...0,59 % массы исходного топлива; для смешанного уран-плутониевого топлива реакторов на быстрых нейтронах – 1...4 %, а для уран-плутониевого топлива легководных реакторов – примерно 0,7 % [7, 59]. После растворения концентрация взвесей в растворе достигает примерно 1...3 г/дм³.

Во фракции продуктов деления обнаружены три фазы:

- металлическая, содержащая молибден (от 10 до 50 %), технеций (от 2 до 20 %), рутений (от 20 до 60 %), родий (до 20 %) и палладий (до 10 %);
- две оксидные – типа $Ba_{1-x}Si_xO$ и типа перовскита ABO_3 , с составом, например, $Ba_{1-x}(Sr, Cs)_x \cdot (U, Pu, Zr, Mo, PЗЭ)O_3$.

Оксидные фазы могут быть гидратированы. Плотность частиц изменяется от 6 г/см³ для простых и гидратированных оксидов до 12 г/см³ для сплавов (например, сплавы U-Pu, Pd-Rh) и полиметаллических соединений. Частицы, содержащие продукты деления, обладают высокой удельной активностью; их тепловыделение может превышать 1 кВт/кг. Имеется также небольшое количество частиц с более высоким, чем в исходном топливе, содержанием плутония.

Диапазон размеров частиц весьма широк. Показано [59], что при растворении твэлов легководных реакторов в аппарате-растворителе оседают крупные частицы с размером >0,5 мм, состоящие из циркалоя. На фильтре с диаметром пор 3 мкм отделяются частицы с размерами в интервале от 3 мкм до 0,5 мм. Эта фракция представляет собой в основном продукты активации конструкционных материалов. Через фильтр в экстрактор попадает взвесь с размерами частиц менее 3 мкм, обогащенная более чем в 2 раза осколочными элементами по сравнению со взвесью до фильтрации. Таким образом, осколочные нуклиды образуют мелкие частицы с размерами порядка 0,1...1,5 мкм. Замечено, однако, что они склонны к агломерации.

Размеры частиц, продуктов деления, образующихся при растворении топлива реакторов на быстрых нейтронах, превышают размеры нерастворимых частиц топлива реакторов на тепловых нейтронах: ~ 50 % частиц имеют диаметр > 20 мкм, а 90 % частиц > 12 мкм. Размер частиц зависит от кислотности раствора: он уменьшается при ее снижении. Явление уменьшения размера частиц с понижением кислотности следует учитывать при проектировании оборудования для осветления растворов и выборе режима работы этого оборудования [7].

Наличие в растворе осадков и взвесей вызывает различные нарушения как при подготовке, так и при проведении экстракционной очистки урана и плутония. На заводе в Токай-Мура, например, наблюдались частичная закупорка циркуляционных линий аппарата-



растворителя, забивка пароструйного эжектора на линиях передачи раствора в буферную емкость. В процессе экстракции взвеси концентрируются на границе раздела фаз, образуя пленки (или, как их образно называют, «медузы»), стабилизирующие капли эмульсии и уменьшающие скорость расслаивания фаз. При значительном накоплении взвесей в зоне расслаивания может образоваться объемный осадок, который резко нарушает режим работы экстракционных аппаратов, снижает их производительность, эффективность и длительность бесперебойной работы. Высокое тепловыделение радиоактивных осадков вызывает местные перегревы, что приводит к усилению разрушения экстрагента и способствует образованию стабилизированных эмульсий. Кроме того, осадки могут захватывать из раствора значительное количество ценных компонентов, что приводит к их потерям. В свою очередь, захват пленок органической фазой снижает коэффициенты очистки.

В связи с неблагоприятным влиянием взвесей на стадии подготовки растворов к экстракции серьезное внимание уделяется их осветлению. При определении необходимой степени осветления раствора существенное значение имеет тип используемых экстракционных аппаратов. Например, центробежные экстракторы весьма чувствительны к присутствию в растворе взвесей. В то же время именно этот тип экстракторов, обеспечивающий минимальное время контакта раствора с экстрагентом, целесообразно использовать при переработке растворов глубоководного топлива. Однако именно в таких растворах возможно присутствие большого количества взвесей и необходима высокая степень осветления растворов. Степень осветления зависит также от свойств экстрагента и разбавителя, т. к. склонность к появлению межфазных образований неодинакова в разных экстракционных системах.

Освобождение растворов от взвесей предусмотрено на всех построенных и проектируемых заводах для переработки твэлов энергетических реакторов. Для осветления растворов используют центрифугирование или фильтрацию. Центрифугирование включено в технологические схемы заводов на м. Аг, в Барнуэлле, в Саванна-Ривере, в Айдахо, в Дунрее. В проектах новых заводов THORP, UP-3 и WA-350 также предусмотрено центрифугирование. Этот метод позволяет удалять частицы с размерами вплоть до долей микрометра. На рис. 5.1 показан один из вариантов конструкций центрифуги подвешного типа с коротким валом привода [60]. Достоинствами ее являются эффективное разделение суспензий, сокращение расхода жидкости для вымывания твердого материала из ротора, относительно большое отверстие для удаления ротора и т. п. Центрифуги такого типа предполагают установить на заводе WA-350.



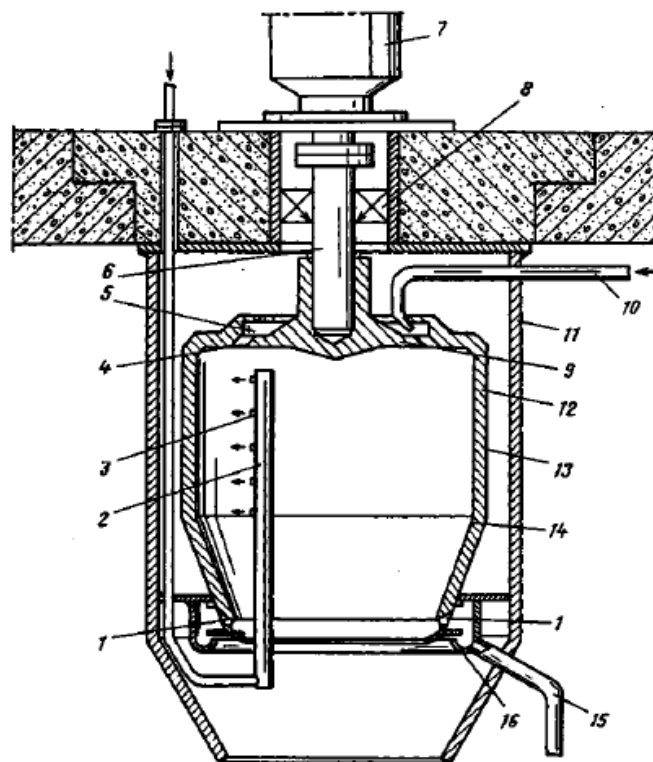


Рис. 5.1. Схема одного из вариантов центрифуги для осветления раствора:
 1 – проходные отверстия; 2 – труба для подвода смывной жидкости; 3 – форсунки;
 4 – каналы; 5 – кольцевая полость; 6 – вал; 7 – двигатель; 8 – опорный подшипник;
 9 – крышка; 10 – труба, подводящая суспензию; 11 – корпус центрифуги;
 12 – цилиндр; 13 – ротор; 14 – конус; 15 – отводная труба; 16 – ловушка

В Дунрее при переработке топлива реактора на быстрых нейтронах раствор успешно осветляют с помощью центрифуги, имеющей внутренний диаметр цилиндра 50 мм, высоту 250 мм, центробежное ускорение превышает 11 000g, скорость подачи раствора – 180 дм³/ч. Цилиндр рассчитан на 0,5 кг шлама с тепловыделением 0,5 кВт. После наполнения твердым материалом он дистанционно отключается и заменяется новым.

Применяемые и разрабатываемые центрифуги отличаются способом подачи раствора (непрерывно или периодически), формой и геометрией ротора, скоростью вращения и, соответственно, достигаемым центробежным ускорением, способами выгрузки твердого материала, охлаждения накапливающегося осадка твердого материала и т. п.

Недостаток метода центрифугирования состоит в том, что в аппарате имеются движущиеся с большой скоростью детали. При работе с высокоактивными растворами это всегда вызывает трудности в эксплуатации оборудования.

Фильтрация через твердые фильтрующие материалы применяется на заводах в Токай-Мура, в Карлсруэ (на заводе WAK), на установке TOR в Маркуле.

При разработке процесса фильтрации наиболее серьезные затруднения возникают при выборе фильтрующего материала, конструкции и способов регенерации фильтра. Фильтрующие перегородки должны иметь высокую химическую, механическую и радиационную стойкость. Такими свойствами обладают, например, разработанные в России металлокерамические фильтрующие перегородки на основе порошков нержавеющей стали и титана. Фильтрующие перегородки изготавливают в виде втулок [58].

Для повышения скорости фильтрации рекомендуется введение в раствор флокулянтов (например, желатина в количестве около $0,1 \text{ г/дм}^3$), а также вспомогательных фильтрующих веществ (перлита или диатомита). Схема патронного фильтра с намывным слоем вспомогательного фильтрующего вещества изображена на рис. 5.2. Важной характеристикой фильтра является размер пор. Фильтры с крупными порами позволяют получить в начале процесса высокую производительность. При использовании таких фильтров, однако, существует опасность проскока частиц мелкой фракции. Кроме того, поры фильтра быстро забиваются и его производительность падает. Очистка такого фильтра возможна лишь путем длительного химического растворения осадка. Поэтому отдают предпочтение фильтрам с размером пор порядка величины средних диаметров частиц (до 10 мкм). Эти частицы осаждаются на поверхности фильтра, образуя фильтрующий слой, который удаляют с помощью противоточной промывки. Патронные фильтры регенерируют периодически с помощью гидроудара («шоковая» регенерация).

Преимущество патронных фильтров перед центрифугами в том, что они не имеют движущихся частей. Патроны фильтров можно заменять дистанционно. К их недостаткам следует отнести большое количество вспомогательных операций и дополнительные объемы высокоактивных сбросов в виде пульпы, образующихся при регенерации фильтров.

В России разработаны также *пульсационные фильтры-сгустители* непрерывного действия [58]. Наложение пульсаций на подаваемую в фильтр исходную суспензию позволяет избежать накопления большого слоя осадка на фильтрующей поверхности, а периодическая подача импульса в направлении, обратном фильтрованию, позволяет регенерировать фильтрующую перегородку. Скорость фильтрации практически неизменна. В качестве фильтрующей перегородки можно использовать также плоскую металлокерамику с размером пор 5...8 мкм.

Осветление растворов предусматривает удаление из них не только нерастворенных взвешенных частиц, но и таких веществ, как кремниевая кислота, цирконий, молибден и другие компоненты, способные образовывать осадки при экстракционной переработке (например, за счет



гидролиза) и вызывать образование межфазных пленок. Поэтому желательно удалять эти вещества из раствора до его поступления на экстракцию. Для этого используют их **флокуляцию** с помощью водорастворимых высокомолекулярных органических соединений (например, содержащих оксиалкильную группу или группу химически активного азота) с последующим удалением образующихся осадков вместе с другими взвесями [58]. Таким образом, процесс осветления способствует снижению общей активности раствора и повышению коэффициентов очистки ценных компонентов.

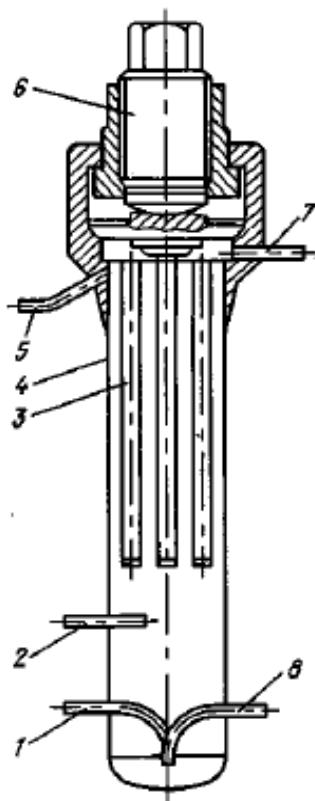


Рис. 5.2. Схема патронного фильтра:

*1 – подача промывной жидкости; 2 – подача суспензии; 3 – патрон в сборе;
4 – корпус; 5 – шок-сброс; 6 – головка; 7 – выход фильтрата;
8 – удаление осадка*

Для усиления этого эффекта иногда в раствор вводят специальные реагенты. Так, на заводе в Саванна-Ривере предусмотрено введение в раствор перманганата калия. Образующийся осадок диоксида марганца наряду с мелкими взвесями и коллоидами увлекает также часть осколочных радионуклидов. Общая γ -активность раствора снижается при этом примерно в 10 раз вследствие адсорбции циркония, ниобия, рутения и иода на диоксиде марганца.

Иногда стадию подготовки раствора к экстракции дополняют специальными операциями, предназначенными для снижения активности



раствора. Например, на заводе на м. Аг для отгонки рутения и иода раствор нагревают до 100 °С и через него барботируют кислород, оксиды азота или озон. Для отгонки рутения весьма эффективна обработка раствора озono-кислородной смесью, которая позволяет удалить до 99 % рутения [84].

5.2. Корректировка состава исходного раствора

Окончательную подготовку исходного раствора ядерного топлива к экстракции проводят в специальных *аппаратах для корректировки кислотности* и состава раствора. Обычно эти аппараты снабжены нагревателем и могут быть использованы для упаривания растворов.

Как правило, кислотность растворов, поступающих из аппаратов-растворителей, необходимо повышать. Чтобы она удовлетворяла требованиям режима I цикла экстракции, в раствор добавляют концентрированную азотную кислоту или его упаривают. В некоторых случаях, например на заводе в Айдахо, предпочтительным считают упаривание, т. к. прогревание растворов приводит к увеличению концентрации нитратов. Возрастает их высаливающее действие, уменьшается склонность образования устойчивых эмульсий, а также уменьшается общий объем высокоактивного раствора. При упаривании растворов необходимо следить, чтобы концентрация делящихся веществ в растворе не превышала расчетной минимальной критической концентрации и не создавалась опасность возникновения цепной ядерной реакции.

I цикл экстракции обычно проводят из 2...2,5 М HNO₃, что предотвращает возможность выпадения гидролизных осадков и обеспечивает высокие коэффициенты распределения ценных компонентов при экстракции. Если исходный раствор содержит большое количество нитратов, что наблюдается, например, при совместном растворении сердечников и оболочек твэлов, кислотность раствора может быть снижена до 1...1,3 М (Айдахо). Если в технологической схеме I цикла экстракции предусмотрено извлечение нептуния совместно с ураном и плутонием, для обеспечения полноты перехода его в органическую фазу кислотность исходного водного раствора повышают до 3...4 М.

При подготовке растворов, образующихся при совместном растворении оболочек и сердечников, когда в исходный раствор попадает большое количество ионов, способных отрицательно влиять на процесс экстракции или оказывать сильное коррозионное действие, используют различные дополнительные приемы обработки растворов, зависящие от характера примесей. Так, ионы циркония связывают в комплекс, добавляя фторид-ионы (Маркуль, м. Аг, Ханфорд). Это способствует предот-



вращению образования нерастворимых соединений циркония с продуктами радиолиза экстрагента и разбавителя, являющихся основой объемистых, устойчивых межфазных образований. При этом следует, однако, учитывать, что избыток фторид-ионов в растворе нежелателен в связи с их сильным коррозионным действием. Если исходный раствор уже содержал избыток фторид-ионов, введенных на стадии растворения, например, смешанного уран-плутониевого оксидного топлива с высокой глубиной выгорания, то его связывают в комплексы с алюминием, добавляя к раствору нитрат алюминия. Избыток фторид-иона предлагается удалять из раствора методом сорбции с использованием гидратированного оксида кремния. На заводе в Айдахо, где перерабатывают разнообразные виды топливных композиций, в том числе и труднорастворимых, проводят совместную обработку растворов уран-циркониевого топлива, содержащих фторид-ионы, и растворов уран-алюминиевого топлива.

Стадия корректировки исходного раствора включает также стабилизацию плутония (и, если необходимо, нептуния) в экстрагируемом четырех- и шестивалентном состоянии, которую проводят нитритом натрия или оксидами азота. При переработке топлива с высоким содержанием плутония целесообразно осуществлять его электрохимическое окисление, чтобы избежать введения в раствор большого количества солеобразующих веществ, увеличивающих объем высокоактивных сбросов.

Вопросы к главе 5

1. С какой целью проводят процесс осветления ОЯТ?
2. Какое оборудование применяют для осветления растворов ОЯТ?
3. В чем состоит процесс флокуляции ОЯТ и каковы его преимущества?
4. Для чего необходима корректировка раствора ОЯТ по кислотности?
5. Каким способом удаляют ионы циркония из осветленного ОЯТ?



ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Успешное развитие ядерной энергетики и осуществление национальных энергетических программ возможны лишь при гармоничном развитии всех стадий замкнутого ЯТЦ, в том числе его завершающей стадии – переработки ОЯТ АЭС.

Стадия регенерации ОЯТ АЭС на современном этапе играет существенную роль в определении путей развития ядерной энергетики. Это обусловлено тем, что целесообразность и необходимость переработки ОЯТ определяются не только возможностью экономии ядерного топлива, но и требованиями безопасности обращения с ОЯТ, а также потребностями науки и техники в извлекаемых побочных продуктах ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{237}Np (^{238}Pu), ^{241}Am , ^{99}Tc , P33 и т. п.

Темпы развития радиохимической промышленности пока отстают от темпов развития ядерной энергетики. В то время как более 25 стран мира уже используют энергию АЭС, радиохимическая промышленность, перерабатывающая топливо энергетических реакторов, по существу, еще только создается.

По оценкам экспертов МАГАТЭ, ожидаемое количество накопленного ОЯТ тепловых реакторов (без учета его переработки) в различных странах составит примерно 320 тыс. т к 2020 г. В то же время планируется, что годовая мощность перерабатывающих заводов к 2020 г. возрастет лишь до 9600 т.

В настоящее время кроме опытно-промышленных заводов и установок в России, Германии, Японии и других стран только во Франции есть действующие заводы UR2-500 и UR3, перерабатывающие оксидное топливо. В некоторых странах есть планы строительства новых заводов (Великобритания, Россия, Франция, Германия, Япония) или пуска старых (Бельгия). Проявляют заинтересованность в овладении технологией переработки топлива Аргентина, Бразилия, Италия, Испания, Пакистан, Южная Корея. Тем не менее в течение ближайших десятилетий в мире будет наблюдаться дефицит перерабатывающих мощностей. Ограниченная вместимость хранилищ может вызвать необходимость остановки энергетических реакторов в связи с невозможностью произвести замену топлива. Поэтому уже теперь принимают меры к срочному строительству новых и расширению имеющихся хранилищ или к уплотнению расстановки сборок ТВЭЛов, что возможно, например, при использовании пеналов из боросодержащей стали. Одновременно решают вопрос о возможности обеспечения переработки ОЯТ, т. е. создания крупномасштабной радиохимической промышленности.



Своеобразие развития этой отрасли промышленности связано с тем, что дискуссия о целесообразности регенерации ОЯТ имеет не только научно-технический и экономический, но и политический характер, так как развертывание строительства заводов регенерации представляет потенциальную опасность распространения ядерного оружия. Поэтому среди важнейших факторов, определяющих масштабы радиохимического производства, а также характер технологических процессов, необходимо назвать такие, как:

- международное сотрудничество в области ядерной энергетики и создание правовых норм и эффективных мер международного контроля в этой области и физической защиты ядерных материалов;
- уровень развития технологии переработки ОЯТ, включая разработки оборудования и средств контроля радиохимических производств, а также уровень научно-исследовательских работ, направленных на совершенствование технологии;
- решение проблемы обезвреживания радиоактивных отходов: обеспечение экономичности ЯТЦ, в том числе ее топливной составляющей, включая обращение с ОЯТ.

Одна из важнейших проблем развития радиохимической промышленности – обеспечение полной безопасности производства, т. е. гарантии контролируемого использования плутония и экологической безопасности производства.

Строительство заводов регенерации в неядерных странах, вызванное стремлением этих стран к созданию национального замкнутого ЯТЦ, повышает опасность распространения ядерного оружия и вызывает необходимость совершенствования системы гарантий. Большинство стран мира подписало Договор о нераспространении ядерного оружия или соглашение с МАГАТЭ о гарантиях. В связи с этим в настоящее время создаются эффективные системы контроля технологического процесса химической переработки ядерного топлива, позволяющие надежно определять количество делящихся материалов на любой стадии процесса.

Один из важнейших факторов, влияющих на развитие радиохимической промышленности, фактор экономики, в настоящее время не вполне определен. Неопределенность в экономические расчеты вносят, в частности, капитальная составляющая затрат и недостаточная степень решенности некоторых технических и технологических задач.

Современные требования к увеличению масштабов производства, повышению радиационной безопасности и охране окружающей среды, обеспечению гарантий нераспространения ядерного оружия обуслови-



вают необходимость дальнейшего совершенствования радиохимической технологии.

К наиболее характерным тенденциям развития радиохимической технологии следует отнести:

- создание эффективной технологии, обеспеченной соответствующим высокопроизводительным оборудованием;
- совершенствование отдельных технологических операций, таких как растворение оксидного ОЯТ, осветление полученных растворов и корректировка состава растворов, подаваемых на дальнейшую переработку;
- модернизация систем контроля созданием автоматизированных систем дистанционного контроля на линии в близком к реальному масштабе времени, создание систем автоматизированного пробоотбора, автоматизированных рабочих мест для лабораторных анализов;
- создание автоматизированных систем управления технологическим процессом (АСУТП) на основе контроля в реальном масштабе времени и математических моделей управления процессами;
- создание эффективных систем контроля за движением делящихся материалов по всей технологической цепочке, в том числе разработка прецизионных методов анализа делящихся нуклидов;
- предварительная подготовка топлива с высокими уровнями активности, в том числе с большой глубиной выгорания, а также смешанного уран-плутониевого топлива (МОХ-топлива) к последующим операциям переработки.

Для компоновки современных радиохимических заводов характерно размещение оборудования в замкнутых модулях, соединенных между собой гибкими шлангами и шинами. Это дает возможность дистанционной замены целых модулей. Для обслуживания, ремонта и замены такого оборудования разрабатываются дистанционно управляемые тяжелые манипуляторы и роботы, которые предполагается испытывать на специально создаваемых стендах.

Развитие методов аналитического контроля позволяет не только внедрять их на новых заводах, но и модернизировать систему контроля старых производств. Поэтому реконструкция действующих заводов всегда связана с совершенствованием систем и методов контроля как непосредственно в технологической линии, так и в лабораториях. Завод в Саванна-Ривере (США) представляет собой типичный пример старого радиохимического производства, на котором осуществлена реконструкция с заменой оборудования и введением современных методов контроля.



Одновременно с этими работами ведутся обширные исследования в области биологии, медицины, экологии для установления научно обоснованных норм сбросов радиохимических производств.

В настоящее время наиболее эффективны водные методы переработки, которые не только применяют на всех действующих заводах и крупных опытно-промышленных установках, но и закладывают в технологию проектируемых заводов. Переработка топлива с большой глубиной выгорания РБН также ориентирована пока на водные методы даже при сокращении времени внешнего топливного цикла до одного года и менее. Поскольку от начала создания проекта завода до ввода его в эксплуатацию проходит 7–8 лет (чаще 10–12 лет), а сроки службы завода возрасли до 50–70 лет, совершенно очевидно, что водные методы переработки сохранят ведущее положение по меньшей мере в течение ближайших 50 лет.

Короткая история становления промышленной переработки ОЯТ показывает, что она связана с преодолением разного вида трудностей технического, экономического и политического характера. Весь период развития ядерной энергетики России показал ее техническую доступность и возможность заменить органическое топливо ядерным при производстве электроэнергии и тепла. Намечена обширная программа развития ядерной энергетики. На апрель 2017 года в России, на 10 действующих АЭС, эксплуатировалось 35 энергоблоков общей мощностью 27 914,30 МВт, из них 18 реакторов с водой под давлением – 12 ВВЭР-1000 (11 блоков 1000 МВт и 1 блок 1100 МВт), 1 ВВЭР-1200 (1200 МВт), 5 ВВЭР-440 (4 блока 440 МВт и 1 блок 417 МВт); 15 канальных кипящих реакторов – 11 РБМК-1000 (1000 МВт каждый) и 4 ЭГП-6 (12 МВт каждый); 2 реактора на быстрых нейтронах – БН-600 (600 МВт) и БН-800 (880 МВт).

В 2017 г. АЭС России установили абсолютный рекорд выработки – 202,868 млрд кВт·ч. Таким образом, российские АЭС установили абсолютный рекорд за всю историю существования российской атомной энергетики, приблизившись к абсолютному рекорду по выработке, достигнутому лишь во времена Советского Союза в 1989 г. (212,58 млрд кВт·ч, с учетом АЭС Украины, Литвы и Армении).

Доля атомной генерации в общем энергобалансе России в последние пять лет стабильно растет и по итогам 2017 года составила 19,25 %. Высокое значение атомная энергетика имеет в европейской части России и особенно на северо-западе, где выработка электричества на АЭС достигает 42 %.

В разработках проекта Энергетической стратегии России на период до 2030 г. предусмотрено увеличение производства электроэнергии на атомных электростанциях в 4 раза.



Подавляющее большинство АЭС будут базироваться на реакторах на тепловых нейтронах (РТН) типа ВВЭР. Эксплуатация демонстрационных РБН позволит заложить основы перехода к осуществлению генеральной стратегии ядерной энергетики с РБН, сырьем для которых служит плутоний. Если потребности в электроэнергии возрастут в мире за ближайшие 50 лет в 3–4 раза, а доля ядерной энергетики составит 20...25 % общей величины, только РБН смогут в течение длительного срока обеспечить такой объем производства, а именно – 5...10 ТВт (эл.). Это означает, что через 50 лет первоначально намеченный путь развития ядерной энергетики на основе концепции $РТН \rightarrow Pu \rightarrow РБН$ окажется предпочтительным. Развитие радиохимической промышленности, воспроизводство и рециклирование ядерного топлива, а также сокращение времени пребывания его во внешнем топливном цикле будут способствовать гармоническому развитию и быстрейшему становлению крупномасштабной ядерной энергетики.

Альтернативой этому пути развития энергообеспечения может быть только техническое осуществление получения энергии из таких источников, которые не вызвали бы опасности загрязнения внешней среды, но и не уступали бы по мощности ядерной энергетике.



Список литературы

1. Алексеев Н.П. Направления развития системы ядерной энергетики / Н.П. Алексеев // Инноватика и экспертиза. – 2016. – Вып. 3 (18). – С. 67–80.
2. Акатов А.А. Будущее ядерной энергетики. Реакторы на быстрых нейтронах / А. Акатов, Ю. Коряковский. – Москва : Информационный центр по атомной энергии. – 2012. – 36 с.
3. Курындин А.В. О транспортировании отработавшего ядерного топлива реакторов типа ВВЭР / А.В. Курындин, А.А. Строганов, Л.А. Курындина // Ядерная и радиационная безопасность. – 2009. – № 2. – С. 16–23.
4. Тевлин С.Л. Атомные электрические станции с реакторами ВВЭР-1000 / С.Л. Тевлин. – Москва : Издательство МЭИ, 2002. – 344 с.
5. Курчатов И.В. О стратегии ядерного энергетического развития / И.В. Курчатов, А.П. Александров // Сборник трудов VII Всероссийской конференции по радиохимии «Радиохимия-2013». – Москва : НИЦ «Курчатовский институт», 2013. – 144 с.
6. Акатов А.А. Быстрая энергетика / А.А. Акатов, Ю.С. Коряковский. – Москва : Изд-во «Центр содействия социально-экологическим инициативам атомной отрасли», 2010. – 36 с.
7. Корчагин Ю.П. Снижение поступлений радиоактивных отходов на АЭС и современные технологии их переработки. Обращение с радиоактивными отходами / Ю.П. Корчагин. – Москва : ЭНИЦ ВНИИ АЭС, 2002. – 418 с.
8. Скачек М.А. Обращение с отработавшим ядерным топливом и радиоактивными отходами АЭС / М.А. Скачек. – Москва : Издательский дом МЭИ, 2007. – 448 с.
9. Рудаков М.Н. Особенности конкуренции в области атомной энергетики / М.Н. Рудаков // Микроэкономика. – 2011. – № 3. – С. 35–38.
10. Васильев А.С. Создание ресурсосберегающего производства экологически безопасного транспортно-упаковочного комплекта для перевозки и хранения отработавшего ядерного топлива / А.С. Васильев // Наука и бизнес: пути развития. – 2012. – № 1(07). – С. 62–65.
11. Некоторые актуальные проблемы безопасности при утилизации радиационно опасных объектов / Р.И. Калинин, В.Н. Баринов, В.Л. Высоцкий и др. // IV Международная конференция «Радиационная безопасность: транспортирование радиоактивных материалов. АТОМТРАНС-2003» (22–26 сентября 2003 г.). – Санкт-Петербург, 2003. – С. 178–182.



12. Сивинцев Ю.В. Техногенные радионуклиды в морях, омывающих Россию: Радиоэкологические последствия удаления радиоактивных отходов в арктические и дальневосточные моря («Белая книга-2000») / Ю.В. Сивинцев, А.П. Васильев, В.Л. Высоцкий и др. – Москва : ИздАТ, 2005. – 624 с.
13. Концептуальные подходы к созданию региональной системы радиоэкологического мониторинга в Мурманской области / Л.П. Амозова, Р.В. Арутюнян, В.Л. Высоцкий и др. // Изв. Рос. акад. наук. Энергетика. – 2005. – № 5. – С. 13–21.
14. Ожидаемые радиационные и радиоэкологические последствия эксплуатации плавучих атомных теплоэлектростанций / А.А. Саркисов, В.П. Билашенко, В.Л. Высоцкий и др. // Атом. энергия. – 2008. – Т. 104. – Вып. 3. – С. 178–187.
15. Обращение с токсичными отходами утилизации и реабилитации ядерных объектов в Северо-Западном регионе России / В.Л. Высоцкий, В.С. Никитин, К.Н. Куликов и др. // Атом. энергия. – 2008. – Т. 105. – Вып. 6. – С. 345–352.
16. Моделирование процессов переноса тепла в водозаполненных контейнерах для хранения отработавшего топлива АЭС / А.Ю. Снегирев, Е.Д. Федорович, В.А. Талалов, В.В. Степанов // Вопросы материаловедения. – 1997. – Вып. 6 (12). – С. 38–47.
17. Инютин Е.И. Выдержка радиоактивных отходов до захоронения / Е.И. Инютин, А.Л. Кочетков, А.Г. Цикунов // Атом. энергия. – 1990. – Т. 69. – Вып. 6. – С. 402–403.
18. Чечеткин Ю.В. Обращение с радиоактивными отходами / Ю. Чечеткин, Ф. Грачев. – Самара : Самарский дом печати, 2000. – 217 с.
19. Внуков В.С. Проблемы и опыт обеспечения ядерной безопасности при хранении отработавшего топлива АЭС / В.С. Внуков, Б.Г. Рязанов // Атом. энергия. – 2001. – Т. 91. – Вып. 4. – С. 263.
20. К вопросу проектирования хранилищ радиоактивных отходов контейнерного типа / А.В. Кирсанов, А.А. Шведов, В.Т. Сорокин, Г.П. Заручевская // Обращение с радиоактивными отходами. – Москва : ЭНИЦ ВНИИ АЭС, 2002. – С. 221.
21. Копырин А.А. Технология производства и радиохимической переработки ядерного топлива / А.А. Копырин, А.И. Карелин, В.А. Карелин. – Москва : Атомэнергоиздат, 2006. – 573 с.
22. Рябкова Н.В. Растворение UO_2 в системе $\text{N}_2\text{O}_4\text{-H}_2\text{O}$ / Н.В. Рябкова, А.А. Лумпов, В.А. Михалев // Радиохимия. – 2010. – Т. 52, № 4. – С. 339–341.



23. Энергетика в экономике XXI века / Е.П. Велихов, А.Ю. Гагаринский, С.А. Субботин, В.Ф. Цибульский. – Москва : ИздАт, 2010. – 352 с.
24. Rocco P. Waste management for different fusion reactor designs / Rocco P., Zucchetti M. // J. Nucl. Mater. – 2000. – Vol. 283. – P. 1473–1478.
25. Zucchetti M. The back-end of fusion materials cycle: recycling, clearance and disposal / M. Zucchetti, L. Di Pace, L. El-Guebaly // Fusion Sci. Techn. – 2009. – Vol. 56, № 2. – P. 781–788.
26. Natesan K. Air Oxidation Kinetics for Zr-Based Alloys: Rep. ANL 03/32 / K. Natesan, W.K. Soppet // NUREG/CR-6846. – 2003. – Nov.
27. Garner A. The effect of substrate texture and oxidation temperature on oxide texture development in zirconium alloys / A. Garner, P. Frankel, J. Partezana // Journal of Nuclear Materials. – 2017. – Vol. 484, № 2. – P. 347–356.
28. Sundell G. Direct observation of hydrogen and deuterium in oxide grain boundaries in corroded zirconium alloys. / G. Sundell, M. Thuvander, A. Yatim // Corros. Sci. – 2015. – Vol. 90. – P. 1–4.
29. Microstructural characterization of oxides formed on model Zr alloys using synchrotron radiation / A.T. Motta, da Silva M.J. Gomes, A. Yilmazbayhan // Zircon. Nucl. Ind. 15th Int. Symp. ASTM STP. – 2008. – Vol. 1505. – P. 486–505.
30. Gong W. Grain morphology and crystal structure of pre-transition oxides formed on zircaloy-4 / W. Gong, H. Zhang, Y. Qiao // Corros. Sci. – 2013. – Vol. 74. – P. 323–331.
31. Garner A. The effect of Sn concentration on oxide texture and microstructure formation in zirconium alloys / A. Garner, J. Hu, A. Harte // Acta Mater. – 2015. – Vol. 99. – P. 259–272.
32. Потапов В.Н. Спектрометрический способ оценки характеристик отработавшего ядерного топлива / В.Н. Потапов, А.Г. Волкович, Ю.Н. Смирский // Атом. энергия. – 2009. – Т. 106. – Вып. 5. – С. 26–34.
33. Gavrilov P.M. Experimental demonstration center on MCC as a prototype of the 3-rd generation plant for thermal reactor SNF reprocessing / P.M. Gavrilov, E.G. Kudryavtsev, Yu.A. Revenko // Proceedings of Global 2009. – Paris, France, September 6–11, 2009. – P. 9075.
34. Heidet F. Maximum fuel utilization in fast reactors without chemical reprocessing / F. Heidet, E. Greenspan // Proceedings of Global 2009. – Paris, France, September 6–11, 2009. – P. 9173.
35. Laidler J.J. Development of pyroprocessing technology / J.J. Laidler, J.E. Battles, W.E. Miller // Progress in Nuclear Energy. – 1997. – Vol. 31. – Issue 1–2. – P. 131–140.



36. Miquel P. Presentation generate du retraitement. Le retraitement (textes des conferences) / P. Miquel // Saclay. – 1986, 13–17 oct. CEN-INSTN.
37. Koyama T. Pyroprocess and metal fuel development for closing actinide fuel cycle with reduced waste burden / T. Koyama, Y. Sakamura, T. Ogata et al. // Proceedings of Global 2009. – Paris, France, September 6–11. – 2009. – P. 9247.
38. Mizuguchi K. Development of hybrid reprocessing technology based on solvent extraction and pyrochemical electrolysis. / K. Mizuguchi, K. Fuse, S. Kanamura // Proceedings of Global 2009. – Paris, France, September 6–11. – 2009. – P. 9196.
39. Никипелов А.С. Вопросы регенерации отработавшего топлива АЭС / А.С. Никипелов, В.Л. Землянухин, В.С. Шмидт // Атом. энергия. – 1981. – Т. 50. – Вып. 2. – С. 122–128.
40. Trinlzi C. Rittrattamento dei combustibili irradiati e gestione del rifiuti radioactive / C. Trinlzi // Energia Nucl. – 1979. – Vol. 26, № 1. – P. 27–37.
41. Bauhn L. The interaction of molecular hydrogen with α -radiolytic oxidants on a (U,Pu)O₂ surface / L. Bauhn, N. Hansson, C. Ekberg // Journal of Nuclear Materials. – 2018, July. – Vol. 505. – P. 54–61.
42. Akiniko Inone. Dissolution rates of U₃O₈ powders in nitric acid / Inone Akiniko // Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev. – 1984. – Vol. 23. – P. 122–125.
43. Koyama T. Pyroprocess and metal fuel development for closing actinide fuel cycle with reduced waste burden / T. Koyama, Y. Sakamura, T. Ogata // Proceedings of Global 2009. – Paris, France, September 6–11. – 2009. – P. 9247.
44. Yatabe S. Canadian experience in irradiation and testing of MOX fuel / S. Yatabe, M. Floyd, F. Dimayuga // Journal of Nuclear Materials. – 2018, April. – Vol. 502. – P. 177–190.
45. Oxidative dissolution of unirradiated Mimas MOX fuel (U/Pu oxides) in carbonated water under oxic and anoxic conditions / M. Odorowski, C. Jégou, L. De Windt et al. // Journal of Nuclear Materials. – 2016, January. – Vol. 468. – P. 17–25.
46. Magnin M. Oxidizing dissolution mechanism of an irradiated MOX fuel in underwater aerated conditions at slightly acidic pH / M. Magnin, C. Jégou, R. Caraballo // Journal of Nuclear Materials. – 2015, July. – Vol. 462. – P. 230–241.
47. Tanaka K. Effects of interaction between molten zircaloy and irradiated MOX fuel on the fission product release behavior / K. Tanaka, S. Miwa, I. Sato // Journal of Nuclear Science and Technology. – 2014, August. – Vol. 51. – Issue 7–8. – P. 876–885.
48. Chen J. Head-end process for the reprocessing of HTGR spent fuel / J. Chen, M. Wen // International Nuclear Fuel Cycle Conference, GLOBAL 2013: Nuclear Energy at a Crossroads. – 2013. – Vol. 2. – P. 891–895.



49. Penneman R.A. Actinide Separation / R.A. Penneman, R.G. Haire, M.N. Lloyd // Intern. Conf. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management "Record 87", Paris, 23-27 aug. 1987. – Paris : SFEN, 1987. – P. 221–246.
50. Kleykamp H. The Composition of Residues from the Dissolution of Irradiated LWR Fuels in Nitric Acid / H. Kleykamp // Proc. of the Intern. Conf. Nuclear Power and its Fuel Cycle. IAEA-CN/36. – 1977. – Vol. 1–3. – P. 583–586.
51. Glatz J.-P. Development of Pyrochemical Separation Processes for Recovery of Actinides from Spent Nuclear Fuel in Molten LiCl-KCl / J.-P. Glatz, R. Malmbeck, P. Souček // Molten Salts Chemistry. – 2013, August. – P. 541–560.
52. Wymer R.G. Uranium-Aluminum Alloy Dissolution / R.G. Wymer, R.E. Blanco // Industrial and Engineering Chemistry. – 1957, January. – Vol. 49. – Issue 1. – P. 59–61.
53. Volkovich V.A. A spectroscopic study of uranium species formed in chloride melts / V.A. Volkovich, A.I. Bhatt, I. May // Journal of Nuclear Science and Technology. – 2002, November. – Vol. 39. – P. 595–598.
54. Seo S. Transient modeling of spent nuclear fuel electrorefining with liquid metal electrode / S. Seo, S. Choi, B.G. Park // Journal of Nuclear Materials. – 2017, August. – Vol. 491. – P. 115–125.
55. Gonzalez M. Application of a one-dimensional transient electrorefiner model to predict partitioning of plutonium from curium in a pyrochemical spent fuel treatment process / M. Gonzalez, L. Hansen, D. Rappleye // Nuclear Technology. – 2015, November. – Vol. 192. – Issue 2. – P. 165–171.
56. Wu Z.-Q. Spent fuel batch dissolver enlarging design and hydraulics experimental investigation / Z.-Q. Wu, Y.-Q. Qin, Y. Liu // Yuanzineng Kexue Jishu / Atomic Energy Science and Technology. – 2016, August. – Vol. 50. – Issue 8, 20. – P. 1480–1485.
57. Takeuchi M. Development of high performance clarification system for FBR dissolver liquor / M. Takeuchi, T. Kitagaki, Y. Noguchi // World Academy of Science, Engineering and Technology. – 2011, September. – Vol. 81. – P. 382–388.
58. Carpentiero R. Processing of metal fuel by electrorefining at a pilot plant scale / R. Carpentiero, A. Dodaro, I. Sardo // Proceedings - 10th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, ICEM'05. – 2005. – Vol. 2005. – P. 1782–1784.
59. Veliscek-Carolan J. Separation of actinides from spent nuclear fuel / J. Veliscek-Carolan // Journal of Hazardous Materials. – 2016, November. – Vol. 318. – P. 266–281.
60. Bruchet A. Centrifugal microfluidic platform for radiochemistry: Potentialities for the chemical analysis of nuclear spent fuels / A. Bruchet, V. Taniga, S. Descroix // Talanta. – 2013. – Vol. 116. – P. 488–494.



ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ.....	3
1. ХАРАКТЕРИСТИКИ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА И ЗАДАЧИ РАДИОХИМИЧЕСКОЙ ТЕХНОЛОГИИ.....	6
1.1. Ядерный топливный цикл.....	6
1.2. Основные характеристики облученного ядерного топлива	10
1.3. Особенности и основные процессы переработки отработавшего ядерного топлива АЭС.....	14
2. ТРАНСПОРТИРОВАНИЕ И ХРАНЕНИЕ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА АЭС.....	19
2.1. Транспортирование облученного топлива	19
2.2. Хранение облученного топлива	33
3. ПОДГОТОВКА ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА К ЭКСТРАКЦИИ.....	39
3.1. Вскрытие облученных твэлов.....	39
3.1.1. Вскрытие с разделением материала оболочки и сердечника твэлов.....	39
3.1.2. Вскрытие твэлов без отделения материалов оболочки от материала сердечника.....	45
3.2. Дополнительные операции подготовки топлива к растворению.....	50
4. РАСТВОРЕНИЕ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА.....	53
4.1. Растворение топливных материалов без оболочек.....	54
4.1.1. Растворение металлического урана и диоксида урана.....	54
4.1.2. Растворение смешанного уран-плутониевого оксидного топлива	56
4.1.3. Растворение карбидного топлива.....	57
4.2. Совместное растворение топливных материалов и оболочек твэлов	58
4.2.1. Растворение уран-алюминиевого ядерного топлива.....	58
4.2.2. Растворение уран-циркониевого ядерного топлива.....	59
4.2.3. Растворение твэлов в оболочках из нержавеющей стали	60
4.2.4. Электрохимическое растворение	61
4.3. Оборудование для растворения ядерного топлива.....	62
4.3.1. Аппараты периодического действия.....	63
4.3.2. Аппараты непрерывного действия.....	65
4.3.3. Аппараты для электрохимического растворения	68
4.4. Обеспечение ядерной безопасности в процессе растворения.....	69
5. ПОДГОТОВКА РАСТВОРА ОЯТ К ЭКСТРАКЦИИ.....	70
5.1. Осветление.....	70
5.2. Корректировка состава исходного раствора	76
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	78



Учебное издание

КАРЕЛИН Владимир Александрович
СТРАШКО Александр Николаевич

ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

Учебное пособие

Корректурa *Д.В. Заремба*
Компьютерная верстка *Д.В. Сотникова*
Дизайн обложки *Т.В. Буланова*

Подписано к печати 07.09.2018. Формат 60×84/16. Бумага «Снегурочка».
Печать CANON. Усл. печ. л. 5,18. Уч.-изд. л. 4,68.
Заказ 176-17. Тираж 100 экз.



Издательство

ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ

