

СНЯТИЕ ОБОЛОЧЕК ОБЛУЧЕННЫХ ТВЭЛОВ

Готовчиков В.Т., Макаров В.И., Орехов В.Т., Рыбаков А.Г., Середенко В.А. (ВНИИХТ)

Рост энергопотребления сопровождается все более пристальным вниманием к экологическим последствиям использования традиционных видов первичных источников энергии (угля, газа, нефти, воды). Их природные запасы заметно сокращаются. С учетом этих обстоятельств должна возрастать роль ядерной энергетики. Ядерная составляющая в энергетическом балансе в настоящее время составляет около 10% потребления всех мировых первичных источников энергии, что сопровождается накоплением отработавшего ядерного топлива. По оценкам МАГАТЭ в реакторы всех АЭС мира было загружено около 200 тыс. т ядерного топлива, и ежегодно эта цифра возрастает на 10—12 тыс. т, в том числе за счет России примерно на 800 т [1].

Отработавшее топливо перерабатывается на заводах после длительной выдержки в хранилищах для снижения интенсивности излучения радионуклидов, отрицательно влияющего на химическую стойкость реагентов и конструкционных материалов. Длительное хранение (охлаждение) вносит значительный вклад в стоимость топливного цикла. Именно поэтому актуальна разработка неводной технологии регенерации малоохлажденного отработавшего топлива. Неводные методы рассматриваются как наиболее перспективные, в первую очередь для регенерации отработавшего ядерного топлива с малой выдержкой.

Одним из направлений неводных методов переработки отработавших твэлов является сочетание операций снятия оболочки путем растворения в металлических расплавах с дальнейшей обработкой топлива окислительно-щелочным расплавом для очистки урана и плутония от основной массы продуктов деления и переводом урана и плутония в оксиды (с экстракционным переделом или без него) для изготовления вторичного ядерного топлива. Разработка этого направления была начата во ВНИИХТе в конце 70-х годов прошлого века — были проведены исследования на имитаторах и отрезках облученных твэлов реакторов БОР-60 и СМ-2 с разной степенью выгорания тяжелых атомов и охлаждения на период опытов [2].

Растворение оболочек. Анализ и экспериментальная проверка показали, что в металлическом расплаве цинк (основа)—3—5% по массе сурьмы селективно растворяется материал оболочки твэла, не затрагивая топлива (табл. 1). С увеличением концентрации материала оболочки вязкость расплава повышается. Поэтому массовая доля коррозионно-стойкой стали в расплаве должна быть не более 20%, циркониевого сплава — 9%.

Т а б л и ц а 1. Растворение оболочек твэлов в расплаве цинк—3—5% по массе сурьмы при 800 °С

Параметры	Материал оболочки		
	Сталь ЭИ 847	Сталь ЭИ 852	Сплав 110
Средняя скорость растворения, кг/(м ² ·ч)	60,3	13,9	10,8
Массовая доля материала оболочки, %	28,8	34,2	11,6

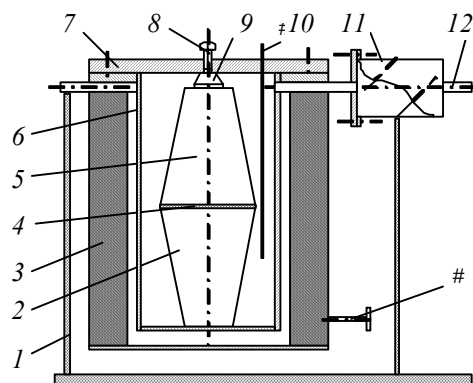
Металлический расплав может быть регенерирован методом вакуумной дистилляции при 750—900 °С и остаточном давлении ≈ 133 Па. Потери сплава-растворителя с остатком не превышают 5% массы растворенной оболочки при 750 °С. Извлечение цинка и сурьмы из расплава и их возвращение на повторную операцию расчехловки может достигать 99,9% в случае проведения процесса дистилляции при 900 °С и остаточном давлении ≤ 133 Па.

Проведены эксперименты по удалению стальной оболочки облученных твэлов БОР-60 и СМ-2 (табл. 2).

Т а б л и ц а 2. Характеристика облученных образцов

Реактор	Топливо	Выгорание, % тяж. атом	Выдержка на период опытов, мес.
БОР-60	Диоксид урана 90%-ного обогащения по ^{235}U	4,9	18—24
		8,4	10—18
		9	10
		10	9
СМ-2	Диоксид урана 90%-ного обогащения по ^{235}U (80%) и плутония (20%)	7,4	16

Облученные образцы представляли собой отрезки длиной 10—30 мм, вырезанные из активной части твэлов штатных пакетов. Их обрабатывали расплавом цинк—3—5% по массе сурьмы при 800 °С в течение 30 мин на установке, смонтированной в горячей камере и обслуживаемой дистанционно (см. рисунок). Отрезки твэлов и слиток сплава-растворителя загружали в реакционный корундовый тигель, на него ставили разделительную сетку из вольфрам-рениевого сплава ВР-20 и приемный тигель. После герметизации, нагрева и выдержки сборку поворачивали на 180° вокруг оси конденсатора. При этом расплав из реакционного тигля перетекал в приемный тигель, освобожденное от оболочки топливо оставалось на сетке.



Аппарат для отделения топлива от оболочек твэлов: 1 — подставка; 2 — реакционный тигель; 3 — печь; 4 — сетка; 5 — приемный тигель; 6 — реактор; 7, 8 — крышка и ручка реактора; 9 — поджимной винт; 10 — чехол термопары; 11 — конденсатор; 12 — штуцер вакуумной системы; 13 — поворотная ручка

Вакуумную дистилляцию выполняли после отделения топлива в том же аппарате при 900 °С и остаточном давлении 133—665 Па.

Во всех опытах оболочка полностью растворялась. Визуальный осмотр показал, что поверхность топлива свободна от расплава, но наряду с целыми втулками на сетке присутствует крошка с размером отдельных кусочков 1—3 мм. Крошка напоминала колотые таблетки. Можно предположить, что причиной измельчения топлива послужили механические воздействия, оказываемые на твэл при его резке на части.

Анализ проб металла-растворителя и тигельных остатков после вакуумной дистилляции показал отсутствие в них урана и плутония. Ядерное топливо отделялось от

металлического расплава. Прямое извлечение составило 99,99%. Массовая доля сплава-растворителя в отходах дистилляции, представляющих собой порошок серого цвета и состоящих, в основном, из компонентов стали, не превышала 4%. Дистиллят в конденсаторе собирался плотным слоем и при нагревании в инертной атмосфере до 500 °С стекал в приемный тигель, образуя слиток, который повторно использовали на следующих операциях удаления оболочки.

В процессе растворения оболочки происходило частичное распределение отдельных радионуклидов. ^{54}Mn и ^{60}Co , образующиеся в стальной оболочке в период реакторной кампании, а также некоторое количество ^{106}Ru и $^{134,137}\text{Cs}$ переходили в металлический расплав. При вакуумной дистилляции изотопы марганца, кобальта и рутения оставались в остатке, в то время как цезий частично возгонялся и переходил в дистиллят. Однако накопления цезия в сплаве не происходило, при повторном использовании сплава цинк—сурьма цезий ввиду высокой химической активности отшлаковывался в остаток. ^{95}Nb , ^{95}Zr и ^{144}Ce полностью оставались в топливе. В продуктах, полученных после отделения топлива от оболочки, отсутствовали газообразные радионуклиды, поскольку их удаление произошло при разгерметизации твэла во время резки, а также в результате радиоактивного распада в период хранения. Предполагается, что в период реакторной кампании, а также при последующей выдержке в течение 30 сут тритий почти полностью удалится из твэла. Криптон и ксенон, пройдя через расплав, будут собираться в свободном пространстве аппарата над расплавом. Поведение иода при снятии оболочки труднопредсказуемо вследствие неопределенности его химического состояния в топливе. Предполагается, что иод будет находиться в элементном состоянии, а также в виде CsI . Эксперименты показали, что при пропускании паров иода через расплав цинк—5% сурьмы температурой 800 °С происходит частичное взаимодействие иода с цинком. Образующийся ZnI_2 ($T_{\text{пл}} = 446$ °С, $T_{\text{кип}} = 624$ °С) удаляется из расплава. Контроль с помощью ловушки с активированным углем на линии откачки газов показал незначительное повышение фона. За период проведения опытов освобождено от оболочки и передано для последующих исследований около 106 г облученного ядерного топлива.

На основании экспериментальных данных разработана опытно-промышленная установка для отработки технологии расчехловки отработавшего топлива. Установка изготовлена из стали 0Х18Н10Т, внутренняя поверхность рабочего аппарата плакирована вольфрамом, коррозионно-стойким к воздействию расплава цинк—сурьма. Единовременная загрузка твэлов в аппарат составляет до 5 кг по топливу.

Результаты исследований по растворению оболочек твэлов в расплаве на основе цинка планируется использовать при разработке проекта пристанционной реакторной установки БРЕСТ-ОД-300.

Другой разработкой ВНИИХТа в направлении развития неводных методов является переработка металлического и оксидного отработавшего топлива [3].

Ядерное топливо на основе металлического урана, содержащего в своем составе кремний и/или алюминий, расплавляют в вакуумной плавильной печи, расплав выдерживают в присутствии кислорода при остаточном давлении в печи ниже равновесного давления летучих оксидов низших степеней валентности кремния и/или алюминия.

Твэлы ВВЭР-1000 погружают в двухфазный расплав (металл + соль). Диоксид урана взаимодействует с солью, материал оболочки (цирконий или сталь) переходит в металлическую фазу. В качестве плавильных используют индукционные печи с холодным тиглем.

Таким образом, разработанные во ВНИИХТе способы позволяют отделять отработавшее топливо с малым сроком охлаждения от материала оболочки и могут быть рекомендованы для использования на пристанционных установках.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Сафутин В., Завадский М., Кирсанов А. и др. Национальная индустрия услуг по обращению с ОЯТ. — Журн. Ядерного общества, 2000, № 5—6, с. 57.
2. Макаров В.И. Исследование пирохимических способов отделения облученного ядерного топлива от оболочки и предварительной очистки его от продуктов деления. Дис. на соискание ученой степени канд. техн. наук. М., 1977 (ВНИИХТ).
3. Готовчиков В.Т., Борзунов А.И., Середенко В.А. и др. Способ переработки ядерного топлива на основе металлического урана. Патент РФ № 2190671. — Бюлл. «Открытия. Изобретения», 2002, № 28.

Поступила в Редакцию 8.06.05

УДК 621.039.7+666.1.055.3

СИНТЕЗ И ИСПОЛЬЗОВАНИЕ БОРАТОВ МНОГОАТОМНЫХ СПИРТОВ ПРИ ПОДГОТОВКЕ ЖИДКИХ ВЫСОКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ К ВКЛЮЧЕНИЮ В БОРФОСФАТНОЕ СТЕКЛО

Ремизов М.Б., Богданов А.Ф., Вдовкина И.И., Бирюкова М.А. (ПО «Маяк»)

Наиболее разработанным и надежным методом локализации жидких высокоактивных отходов является их перевод в стеклообразное состояние. На «ПО «Маяк» процесс остекловывания реализован путем электроварки фосфатного стекла в печах прямого электрического нагрева, что позволяет все необходимые компоненты (отходы, флюсующие добавки, восстановитель) вводить только в жидком виде, исключая из технологии сложные системы сухой дозировки.

В настоящее время совместными усилиями ПО «Маяк», ИФХ РАН, ВНИИНМ им. А.А. Бочвара разработан состав борфосфатного стекла [1], имеющего преимущества по сравнению с фосфатным, используемым на ПО «Маяк», а именно низкая кристаллизационная способность, широкая область стеклообразования, высокое удельное удержание компонентов отходов. Переход на оптимизированную борфосфатную матрицу требует изменения схемы подготовки стеклообразующего раствора и его флюсования. Прежде всего необходимо было разработать способ подачи бора в печь в жидком виде. Известный способ флюсования азотно-кислого раствора отходов введением в него кислородных соединений бора в виде раствора ортоборной кислоты или водного тетраборно-кислого натрия (буры) в гидроксиде натрия требует серьезного изменения схемы подготовки стеклообразующего раствора и снижает производительность печи из-за разбавления раствора отходов. Другим способом, представляющим практический интерес, может быть подача борсодержащего реагента в печь в виде растворов на основе органических восстановителей — этиленгликоля или глицерина.