

КАРЕЛИН А.И.<sup>1</sup>, КАРЕЛИН В.А.<sup>2</sup>, ДОМАШЕВ Е.Д.<sup>3</sup>

<sup>1</sup> *Радиевый институт им. В.Г. Хлопина, Россия*

<sup>2</sup> *Северский технологический институт, Россия*

<sup>3</sup> *Институт технической теплофизики НАН Украины*

## **О ЦЕЛЕСООБРАЗНОСТИ СЖИГАНИЯ ПЛУТОНИЯ В РЕАКТОРАХ НА ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНАХ И ВОЗМОЖНОСТИ ФТОРИДНОЙ ПЕРЕРАБОТКИ ОТРАБОТАВШЕГО ТОПЛИВА**

Подана проблема накоплення плутонію в атомній енергетиці. Запропоновано спосіб спалювання плутонію в реакторах на теплових нейтронах. Обґрунтована можливість фторидної переробки ядерних відходів.

Показана проблема накопления плутония в атомной энергетике. Предложен способ сжигания плутония в реакторах на тепловых нейтронах. Обоснована возможность фторидной переработки ядерных отходов.

The problem of plutonium accumulation in nuclear power engineering is shown. A method of plutonium burning in heat neutrons reactors is proposed. The possibility of fluoride treatment of nuclear waste is grounded.

К середине 90-х годов в 31 стране насчитывалось более 440 действующих атомных электростанций. Доля ядерной энергетики в мире возросла примерно до 17 %, и годовое производство составляет порядка 2200 ТВт·час. Доля ядерной энергии в производстве электричества (по состоянию на 1997 год) в различных странах неодинакова. Так, ядерной электроэнергии вырабатывается: в Литве – 83,4 %, Бельгии – 57,2 %, Швеции – 52,4 %, Швейцарии – 44,5 %, Украине – 43,8 % (в этом году ожидается свыше 50 %), Германии – 30,3 %, США – 21,9 %, России – 13,1 % [1]. При этом проблема обращения с образующимися в уран-плутониевом ядерном топливном цикле радиоактивными отходами до сих пор не решена. Накопление долгоживущих (с периодом полураспада  $10^3 \pm 10^6$  лет и более) радиоактивных элементов продлится [1-4].

По данным МАГАТЭ в 1995 году суммарное инвентарное количество отработанного топлива в мире составляло около 30 тыс. т тяжелых металлов. Согласно оценочным данным, на рубеже веков этот показатель увеличится в шесть раз и в грядущем столетии будет неуклонно возрастать даже при достигнутом 17 % уровне ядерной энергетики.

К 1990 г. в мире накоплено 902 т плутония, в том числе 248 т оружейного плутония, 122 т энергетического плутония выделенного и 532 т невыделенного из отработанного ядерного топлива.

Темпы накопления плутония и трансплутониевых элементов становятся “камнем преткновения” в развитии атомной энергетики [1]. Такое положение в мире стало возможным потому, что широкое промышленное освоение реакторов на быстрых нейтронах, в которых предполагалось сжигать наработанный плутоний, по самым оптимистичным прогнозным оценкам можно ожидать лишь после 2050 г. [2], и то лишь в случае преодоления множества трудностей технического характера при изготовлении смешанного топлива на основе высокофонового плутония и трансплутониевых элементов, а также обеспечения экономической рентабельности этого ядерного топливного цикла.

За это время, до 2050 г., при мировой мощности ядерной энергетики свыше 440 ГВт, произойдет дополнительное накопление высокофонового плутония до 5000 т. И даже использование высокофонового плутония в смешанном топливе (МОХ - топливе) за этот период приведет также к значительному накоплению радиоактивных материалов.

Кроме того, будут накоплены большие количества урана, загрязненного изотопами  $^{232}$ ,  $^{234}$ ,  $^{236}\text{U}$  (600 000 т – без рецикла и 40 000 т – в случае осуществления 5 рециклов плутония, что мало вероятно) [2].

При ныне действующих 14 атомных энергоблоках Украины, хотим мы того или нет, будет ежегодно образовываться примерно 2,56 т высокофонового плутония (не считая нептуния и трансплутониевых элементов) [5]. За период с 1990 по 2050 г. (до появ-

ления бридеров) произойдет накопление свыше 150 т высокофонового плутония.

Таким образом, несмотря на актуальность проблемы, вопросы обращения с нарабатываемыми в уран-плутониевом ядерном топливном цикле долгоживущими радионуклидами, в частности с плутонием, не решены [6].

В качестве одного из методов обращения с плутонием, мы предлагаем рассмотреть метод сжигания плутония не только в реакторах на быстрых нейтронах (которые появятся после 2050 г.), но и в реакторах на тепловых нейтронах. В качестве ядерного топлива в таких реакторах может служить металлическая интерметаллидная композиция (Pu-Th-Al) без введения в ее состав урана-238. В этом случае в ядерном реакторе на тепловых нейтронах будут выгорать плутоний и, образующийся из тория-232, уран-233. Прототипом таких реакторов могут служить ядерные реакторы типа КН-3 [3, 7, 8] с интерметаллидным урановым топливом с обогащением по урану-235 до 65 %, которые широко используются на подводных лодках и прошли более чем сорокалетние испытания на надежность и безопасность.

Однако, после выгорания определенной доли плутония в интерметаллидной Pu-Th-Al композиции (или урана – в U-Al композиции) естественно встает вопрос о переработке отработанного топлива и повторном сжигании плутония (или урана-235). В настоящее время отработанное ядерное топливо судовых ядерных энергетических установок перерабатывается в промышленном масштабе исключительно водными способами с применением для очистки от примесей экстракционных процессов. Водные методы хорошо отработаны и удовлетворяют всем требованиям по очистке ядерного топлива от долгоживущих нуклидов трансураниевых элементов и продуктов деления [9]. Тем не менее, при переработке отработанного металлического интерметаллидного топлива (U-Al или Pu-Th-Al) образуются большие количества водных и органических отходов, загрязненных радиоактивными элементами. Эти отходы требуют сложной переработки и приводят к образованию больших объемов отверженных радиоактивных отходов для захоронения.

В Арагонской Национальной лаборатории (США) ведутся исследования безводного способа переработки отработанного металлического топлива экспериментального быстрого реактора EBR-II [10, 11]. Отработанное топливо после снятия металлической оболочки подвергают электролитическому рафинированию в расплаве хлоридных солей при температуре 450-500 °С. Выделившийся на катоде порошок металлического урана захватывает с собой часть электролита в виде расплава хлоридных солей и часть радиоактивных примесей. Хлориды солей отделяют от металлического порошка урана отгонкой в вакууме (1 мм рт. ст.) при температуре 1200 °С. В связи с недостаточной очисткой катодного порошка

урана от радиоактивных примесей, последний подвергается разбавлению очищенным ураном. Хлоридные соли, загрязненные продуктами деления и плутонием, подвергают иммобилизации в твердую матрицу из цеолита или другой керамики.

Приведенный в [10, 11] безводный способ переработки отработавшего металлического ядерного топлива обладает рядом серьезных недостатков. Главные из них следующие:

- 1) использование расплава хлоридных солей при высокой температуре (1200 °С);
- 2) низкие коэффициенты очистки металлического урана от радиоактивных примесей;
- 3) отверждение радиоактивных примесей в виде хлоридов.

Первый приводит к высокой коррозии оборудования, второй – к необходимости разбавления катодного порошка урана большим количеством очищенного и обогащенного урана, а, следовательно, к незамыканию топливного цикла, третий – к выщелачиванию природными водами хлоридов радиоактивных элементов из твердой матрицы.

Нами предлагается другой безводный способ переработки отработавшего металлического ядерного топлива, свободный от указанных недостатков.

Этот способ заключается в анодном растворении отработавшего металлического интерметаллидного топлива (U-Al, Pu-Th-Al) в расплаве фторидной соли при температуре  $\leq 100$  °С. Фторидный расплав отработавшего топлива фторируют элементарным фтором при температуре  $\geq 350$  °С. Процесс фторирования сильно экзотермичный, поэтому температуру поддерживают на заданном уровне путем отвода тепла через встроенный теплообменник. В связи с использованием низких температур, оборудование для анодного растворения и фторирования элементарным фтором изготавливают из обычной углеродистой (или нержавеющей) стали. Газовую фазу летучих фторидов фильтруют на пористом интерметаллидном фильтре (Ni-Al) и конденсируют в теплообменнике. Конденсат фторидов подвергают хорошо отработанной в промышленном масштабе ректификационной очистке от радиоактивных примесей и плутония. Очищенный практически до природной чистоты гексафторид урана подвергают дальнейшей переработке также по хорошо отработанной в промышленном масштабе технологии с получением ядерного топлива в виде оксида или металлического интерметаллидного урана. Фторидные соли от анодного растворения отработавшего металлического топлива и фториды примесей процесса ректификации подвергают отверждению в виде фторидных стекол в матрицу из цеолита или керамики. Принципиальная технологическая схема предлагаемого безводного способа переработки отработавшего металлического интерметаллидного ядерного топлива приведена на рис. 1.

Практически вся предлагаемая технология строится на хорошо отработанных в промышленности

процессах, поэтому при необходимости может быть быстро реализована.

Рассматривая фторидные технологии переработки отработавшего топлива, нельзя не остановиться еще на одном аспекте обращения с отходами отработанного ядерного топлива.

В атомной промышленности при осуществлении уран-плутониевого ядерного топливного цикла происходит постоянное образование и накопление на складах огромных количеств обедненного (отвального) гексафторида урана.

При производстве ядерной энергии полезно используется не более 0,5 % природного урана, остальное количество попадает в так называемый отвальный гексафторид урана. Отвальный гексафторид урана представляет твердое кристаллическое вещество с очень большой упругостью паров при комнатной температуре, хорошо гидролизуется влагой из воздуха с выделением фтористого водорода. Он хранится в герметичных емкостях, изготовленных из углеродистой стали. К настоящему времени в мире накоплено более миллиона тонн этого вещества. Долговременное хранение отвального гексафторида урана приводит к коррозии и растрескиванию стальных емкостей, требует постоянных финансовых затрат на эксплуатацию хранилищ и емкостей, приводит к омертвлению использования одного из ценных компонентов элементарного фтора. Особую опасность представляет долговременное хранение отвального гексафторида урана как потенциального источника возможного загрязнения окружающей среды радиоактивным легколетучим веществом (диверсии, падение снаряда в хранилище, падение самолета и др. непредвиденные воздействия).

В различных странах мира выполнено множество научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ по обращению с отвальным гексофторидом урана, но все усилия оказались тщетными и не привели к положительному конечному результату.

Водные способы переработки отвального гексафторида, основанные на его гидролизе водой, не приводят к полезному извлечению фтора. Восстановление гексафторида урана водородом в факеле позволяет полезно извлечь только часть фтора в виде безводного фтористого водорода. Извлечение остальной части фтора слишком дорого. Восстановление гексафторида урана в водородно-кислородном пламени требует больших избытков водорода и кислорода и, как следствие, сильному разбавлению безводного фтористого водорода водой и фактическому его обесцениванию [12].

Встает вопрос, а что же делать с обедненным отвальным гексафторидом урана? Нельзя же его постоянно накапливать и хранить бесконечно долгое время!

Предлагаемый нами способ переработки отвального гексафторида урана свободен от указанных выше недостатков. Он заключается в следующем. Отвальный гексафторид урана испаряют из стальных

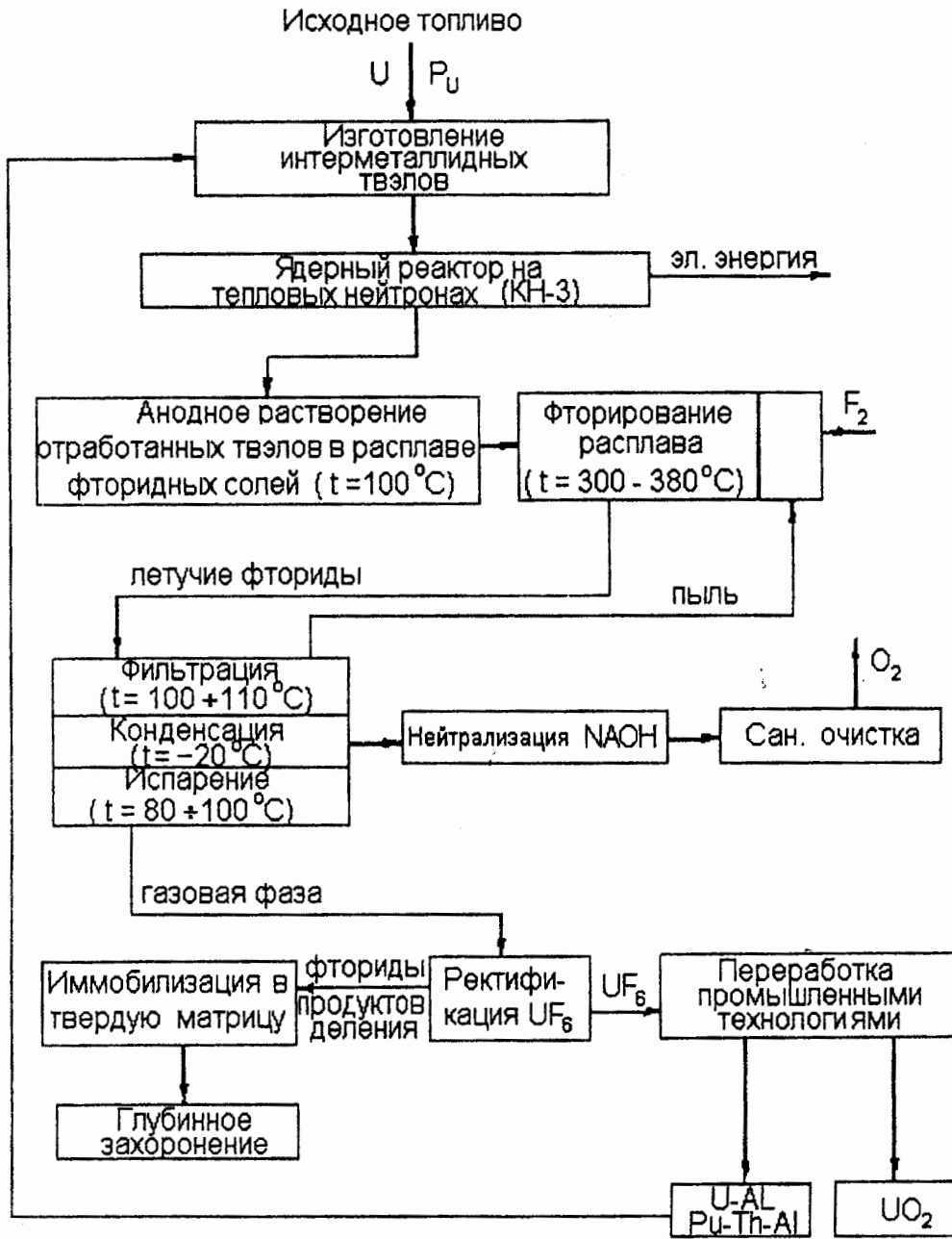
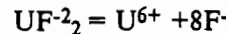
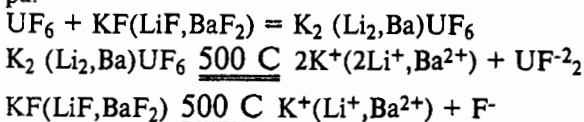
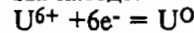


Рис. 1. Принципиальная технологическая схема сжигания и безводного способа переработки отработавшего металлического интерметаллидного ядерного топлива.

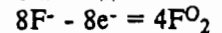
емкостей и подают в газовой фазе в электролизер под слой электролита. Гексафторид урана хорошо растворяется в предложенном электролите. Электролит представляет собой расплав низкоплавкой эвтектики фторидных солей щелочных и щелочно-земельных металлов ( $t_{пл} = 472 \text{ }^\circ\text{C}$ ). В электролизе протекают реакции с выделением на катоде порошка урана, а на графитовом аноде – элементарного фтора:



На катоде:



На аноде:



В качестве катода можно использовать стальной лист или жидкий катод на основе цинка и кадмия.

По аналогии с электролизом алюминия на жидком катоде выделяют порошок урана, который, как более тяжелый металл, тонет в цинке на дно электролизера и периодически сливается вместе с частью цинка. Цинк отгоняют из порошка урана в вакууме (1 мм. рт. ст.) при 400 °С.

Порошок урана может использоваться в качестве товарной продукции или безопасно долговременно

храниться в виде слитков до возникновения потребности. Такая потребность в обедненном металлическом уране имеется уже в настоящее время. Металлический обедненный уран может быть использован при изготовлении сплавов стали или других сплавов со специфическими свойствами. Так, добавка в углеродистую сталь 0,1-0,3 % урана резко повышает ее морозостойкость и может быть использована для прокатки рельсов и изготовления металлоконструкций, работающих при низких температурах (например, нефте- и газодобывающих вышек в районах Крайнего Севера).

Элементарный фтор, выделенный на аноде, может быть использован в качестве реагента как сильнейший окислитель при фторидной переработке природных ильменитовых, рутиловых, танталий-колумбитовых, молибденитовых, вольфрамитовых, шеелитовых и других концентратов редких металлов.

Для Украины, создающей свою национальную атомную промышленность с ядерным топливным циклом, внедрение этих новейших способов позволит существенно ускорить освоение сложнейших процессов ядерных перерабатывающих технологий.

#### Литература

1. Карелин А.И., Домашев Е.Д., Абубекеров Р.А. Атомная энергетика на пороге XXI века// Пром. теплотехника.- 1998.- Т. 20.- № 5.- С. 37-46.
2. Карелин А.И. Проблемы и перспективы развития ядерной энергетики.- СПб.- Радиохимия.- 1996.- Т. 38.- Вып. 4.- С.289-299.
3. Домашев Е.Д. О возможности развития атомной энергетики в Украине// Пром. теплотехника.- 1998.- Т. 20.- №3.- С. 42-49.
4. Абубекеров Р.А., Банников Ю.А., Домашев Е.Д., Счастливы Г.Г. Есть ли перспективы развития атомной энергетики в Украине// Вісник УБНТЗ.- 1998.- № 5.- С.23-27.
5. Карелин А.А. На основе достижений науки и техники// Деловая Украина.- № 98(350).- декабрь 1995.
6. Технологические аспекты ядерных энергетических систем с воспроизводством топлива.-М.: Энергоатомиздат, 1998.-280 с.
7. Гладков Г.А. Создание реакторной установки для подводных лодок// Атомная энергия.- 1992.- Т. 73.- № 4.- С. 319-321.
8. Инвестиционный проект ПАТЭС в Приморье.- ЦНИИ им акад. А.Н. Крылова.- 1994.- Т. 1, 2.- 109 с.
9. Земленухин В.И., Ильенко Е.И. и др. Радиохимическая переработка ядерного топлива АЭС.-М.: Энергоатомиздат, 1989.- 280 с.
10. Benedict R.W., Lineberry M.J., Mc Farlane H.F., Rigg R.H. " Hot Startup Experience with Electrometallurgical Treatment of Spent Nuclear Fuel." //Global' 97 Conference.- Vol. 1.- p. 469-474.- Jokohame Jpan (Oct. 1997).
11. Mariani R.D. and Vaden D. "Initial Electrorefining Operation with Spent Fuel from EBR-II at ANL-West"// Transactions of the American Nuclear Society.- Vol. 76, 70.- 1997.
12. Раков Э.Г., Тесленко В.В. Пирогидролиз неорганических фторидов.- М.: Энергоатомиздат, 1987.- 152 с.

Получено 30.11.98 г.