

Авторы Карелин А.И., Карелин В.А., Абубекеров Р.А.

5

СПОСОБ ПЕРЕРАБОТКИ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА И УСТАНОВКА ДЛЯ ЕГО ОСУЩЕСТВЛЕНИЯ.

Предлагаемые изобретения относятся к технологии производства ядерного
10 топлива, а именно, к способам и устройствам для изготовления топлива из продуктов
переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ).

В настоящее время наиболее широко распространенной технологией
переработки отработавшего ядерного топлива является процесс "Пурекс". При
переработке отработавшего ядерного топлива по методу "Пурекс" отработанное
15 ядерное топливо, содержащее уран и плутоний, растворяют в азотной кислоте, после
чего раствор азотной кислоты обрабатывают органической фазой, полученной при
разбавлении экстрагирующего агента ТБФ (трибутилфосфата) додеканом, выделяя из
раствора, а затем и очищая уран и плутоний, которые переходят в органическую фазу
легче, чем большинство других продуктов распада. Технология переработки ОЯТ по
20 методу "Пурекс" описана, например, в японской заявке JP 09-138297. При переработке
ОЯТ по этому способу отработавшее ядерное топливо растворяют в азотной кислоте и
полученный раствор затем обрабатывают на установке для так называемой совместной
очистки, на которой совместно очищаемые от продуктов распада уран и плутоний
экстрагируют из раствора азотной кислоты, используя для этого органический раствор
25 разбавленного в додекане ТБФ. Полученный в результате совместной очистки урана и
плутония от продуктов распада с помощью органического раствора экстракт, в котором
содержатся уран и плутоний, обрабатывают затем на так называемой
распределительной (разделительной) установке, на которой уран отделяют от плутония.
При этом раствор, в котором вначале содержались уран и плутоний и в котором
30 остались продукты распада, обрабатывается как обладающие высокой
радиоактивностью жидкие отходы. На распределительной установке органический
раствор, содержащий уран и плутоний, смешивают с раствором азотной кислоты, при
этом плутоний, который восстанавливается до трехвалентного плутония, переходит

обратно из органической фазы в раствор азотной кислоты. Осуществляют разделение плутония и урана, который при этом остается в органической фазе. Разделенные на распределительной установке уран и плутоний затем по отдельности подвергают очистке, после которой очищенный плутоний и очищенный уран опять можно

5 использовать в качестве ядерного топлива.

Описанный в заявке JP 09-138297 способ переработки отработанного ядерного топлива по методу "Пурекс" отличается от традиционных способов более простой технологией и более высокой экономичностью, что позволяет снизить количество образующихся при переработке отработанного ядерного топлива жидких (радиоактивных) отходов,

10 однако и он не позволяет создать замкнутый технологический процесс - производству ядерного топлива из ОЯТ.

Наиболее близким к предлагаемому способу по технической сущности является способ переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ), включающий его обработку фтором или фторсодержащим соединением [Патент Российской Федерации

15 на изобретение № 2226725, МПК 7 G21C19/44, Дата публикации: 2004.04.10]. Описанный способ основан на фторидно-экстракционной переработке ОЯТ - так называемый фтор-аква-процесс. Это комбинация фторидной и экстракционной технологий.

Недостатком и описанного способа является то, что он не позволяет создать

20 замкнутый технологический процесс - использование ядерного топлива и последующую переработку ОЯТ в новое ядерное топливо. Это, в частности, обусловлено тем, что:

- к настоящему времени не разработаны устройства для фторирования порошков ОЯТ в радиохимическом исполнении;
- 25 - плутоний и оставшийся уран в огарке после фторирования очень трудно растворяются в азотной кислоте, практически не фильтруются, из-за присутствия в огарке продукта деления – фторида циркония в виде тонкодисперсной твердой фазы (в виде взвеси).

Наиболее близким к предлагаемой установке по технической сущности является установка для переработки ОЯТ, содержащая пульт управления, защитную камеру, в

30 которой установлены дистанционно управляемые устройства для механической разделки отработавших топливных таблеток (ТТ), приводные механизмы которых соединены с пультом управления /Дружинский И.А., Новиков Г.Н. Обработка радиоактивных материалов в атомной промышленности. - М.: Энергоатомиздат. - 1987. - С.41-49/.

Недостаток описанной установки состоит в ее ограниченных технологических возможностях, поскольку она предназначена лишь для механической разделки ТВЭЛов и ТС и не обеспечена средствами для переработки ОЯТ в новое ядерное топливо.

5 В основу предлагаемых изобретений поставлена задача создания такого способа и установки для переработки ОЯТ, которые позволили бы создать замкнутый технологический процесс, включающий использование ядерного топлива на АЭС и последующую переработку ОЯТ на территории АЭС в новое ядерное топливо, например, для той же АЭС. Эта задача решается путем создания условий для
10 круговорота (рецикла) элементного фтора.

Поставленная задача решается предлагаемым способом, который, как и известный способ переработки ОЯТ, включает его обработку фтором или фторсодержащим соединением, а, согласно изобретению, обработку таблеток отработавшего ядерного топлива производят газообразным обратным фтором в две
15 стадии с отгонкой 85-90% гексафторида урана на первой стадии фторирования и смеси гексафторидов урана и плутония на второй стадии при температуре 300-800°C в аппарате колонного типа с внутренним отводом тепла химических реакций за счет отбора части газовой фазы продуктов реакций фторирования, охлаждения этой части газовой фазы теплоносителем и возврата (циркуляции) в аппарат фторирования,
20 дальнейшего выделения кислорода, образовавшегося в процессах первой стадии фторирования оксидов ядерного топлива, за счет использования разности температур кипения кислорода и образовавшихся фторидов, ректификационной очистки фторидов делящихся элементов актиноидов от фторидов продуктов деления, электролитического восстановления фторидов делящихся элементов актиноидов в расплаве низкоплавкой
25 эвтектики тройных фторидных солей щелочных элементов при температуре 500-550 °C с одновременным выделением элементного фтора на инертном аноде и делящихся элементов актиноидов в виде порошка на расплавленном жидком катоде из цинка, вакуумной отгонки цинка от полученных металлических порошков актиноидов, окислением выделившихся делящихся актиноидов воздухом до оксидов, изготовления
30 таблеток смешанного уран-плутониевого топлива, иммобилизации всех газообразных и нелетучих фторидов продуктов деления в расплав кремния при температуре 1420-1450 °C.

Поставленная задача решается и в предлагаемой установке, которая, как и известная установка для переработки ОЯТ, содержит пульт управления, защитную

камеру, в которой установлены дистанционно управляемые устройства для механической разделки отработавших топливных таблеток, приводные механизмы устройств для механической разделки которых соединены с пультом управления, а, согласно изобретению, установка дополнительно снабжена устройством для

5 изготовления таблеток оксидного и смешанного уран-плутониевого топлива, устройством вакуумной отгонки цинка от металлических порошков актиноидов, электролизером, предназначенным для электролитического восстановления фторидов с получением металлических порошков и газообразного элементного фтора, а также аппаратом фторирования, который включает реактор фторирования колонного типа с

10 кипящим слоем материала топливных таблеток, соединенный с фильтром тонкой очистки газовой фазы от пыли, соединенный с теплообменником для охлаждения газов и с конденсатором для сублимации фторидов и выделения инертных газов, соединенный с ректификационной колонной для очистки фторидов делящихся элементов от примесей, выход которого предназначенный для очищенных фторидов и

15 актиноидов соединен со входом электролизера, а выход электролизера для суспензии расплава цинка и металлических порошков актиноидов соединен с устройством вакуумной отгонки цинка от этих порошков, выход которого соединен с устройством рефабрикации, выход которого соединен с устройством для изготовления таблеток оксидного и смешанного уран-плутониевого топлива, а установка снабжена

20 устройствами для регенерации цинка и окисления выделившихся делящихся актиноидов воздухом до оксидов.

Установка, кроме того, снабжена системой пневмотранспорта порошков, побудителем расхода газов, контрольными приборами и системой автоматического управления технологическим процессом.

25 По предлагаемому способу окислительно-восстановительные реакции проводятся без использования водной фазы и органических соединений.

Образовавшиеся при этом композиты кремний-силициды, продукты деления силициды америция и кюрия-диоксид кремния упаковывают в герметичные керамические ампулы из нитрида бора, борида титана или борида кремния с

30 установкой последних в герметичные керамические контейнеры из карбида или нитрида кремния и направляют в подземные пристанционные сухие хранилища для захоронения.

Предлагаемые изобретения позволяют создать эффективную и экологически безопасную технологию переработки ОЯТ с возможностью многократного использования делящихся материалов, выделением радиоактивных продуктов деления и их иммобилизацией, в виде силицидов, карбидов, боридов в нерастворимой форме кремний содержащего композита. В конечном итоге изобретения предполагают создание единого автоматизированного энергетического комплекса "ядерный реактор, сжигающий делящиеся материалы на тепловых или быстрых нейтронах - линия пристанционный радиохимический завод с его расположением под землей в металлическом корпусе с герметизацией всех вводов и выводов коммуникаций, всех входов и выходов технического персонала по хорошо отработанному способу герметизации подводной лодки".

В предлагаемом способе используют в качестве основного реагента-окислителя элементный фтор без примеси фтороводорода, промежуточных продуктов - безводных фторидов актиноидов, лантаноидов и др., а в качестве восстановителя - постоянный электрический ток с использованием электролитических процессов в низкоплавких расплавах фторидных солей.

Указанные неорганические вещества обладают радиационной и нейтронной стойкостью, не образуют взрывоопасных смесей. Новые подходы к выбору компоновочных решений технологических процессов, оборудования и автоматизация их работы приведут к созданию экологически чистой, экономически выгодной технологии при полном замыкании ЯТЦ в пределах производственной площадки каждой атомной станции.

Предлагаемые изобретения создают возможность переработки ОЯТ при полном замыкании ЯТЦ в пределах производственной площадки каждой атомной станции с исключением транспортировки делящихся материалов и высокорadioактивных веществ на большие расстояния наземным и водным транспортом. Создание единых автоматизированных энергетических комплексов "ядерный реактор, сжигающий делящиеся материалы - пристанционный радиохимический завод с его расположением под землей в металлическом корпусе с герметизацией всех вводов и выводов коммуникаций и технического персонала по хорошо отработанному способу подводной лодки" позволяет создать необходимое количество барьеров безопасности и полностью исключить возможность его разрушения как за счет техногенных (наводнение, землетрясение, смерч и др.), непреднамеренных (падение самолета и др.) и преднамеренных террористических воздействий. Этот результат обусловлен

следующими отличительными особенностями.

Во-первых, в заявляемом комплексе технических технологических процессов, который можно охарактеризовать как сухую фторидную технологию переработки отработавшего ядерного топлива, исключая использование радиационно
5 нестойких водных растворов и органических веществ, в отличие от способа с использованием "PUREX-процесса", образующих под воздействием радиации огромные количества взрывоопасных водород-кислородных газов. Это позволяет отделять и перерабатывать фториды продуктов деления в концентрированном виде без их разбавления вентиляционным воздухом, а также в твердом состоянии в виде
10 нелетучих фторидов.

Во-вторых, фторирование ведут обратным элементным фтором без измельчения таблеток отработавшего топлива, что позволяет исключить пыление радиоактивных веществ и герметизировать технологическое оборудование. Процесс фторирования осуществляют в температурном интервале 300-800°C. Съем
15 выделяющегося при фторировании оксидов тепла осуществляют не через стенки оборудования, а внутри объема колонного реактора за счет отбора части газовой фазы продуктов реакций окисления, ее охлаждения и возврата (циркуляции через внешний теплообменник) и возврата ее в аппарат фторирования со стационарным слоем таблеток отработавшего топлива, как это показано на рис. 2.

Еще одной отличительной особенностью заявляемого способа переработки ОЯТ является электролитическое восстановление фторидов продуктов деления в расплаве
20 низкоплавкой эвтектики фторидных солей при 500-550°C до металлов делящихся элементов в виде порошка на расплавленном жидком катоде из цинка. Новой является сама электролитическая система, которая состоит из расплава эвтектики тройных
25 фторидных солей щелочных металлов LiF-KF-NaF с температурой плавления 472-500°C, т.е. химических соединений, содержащих фтор, и насыщение этого расплава осуществляют газообразными гексафторидами урана, плутония и нептуния, т.е. химическими соединениями, которые также содержат фтор.

Таким образом, электролитическая система состоит только из фторидных
30 соединений. Это позволяет в одной стадии получить на катоде электролитически чистые металлические продукты деления (уран, плутоний), а на аноде - чистый элементный фтор, себестоимость которых значительно ниже, чем себестоимость этих веществ, полученных по известным технологиям и способам.

В конкретных случаях реализации изобретения расплав эвтектики фторидных солей LiF-KF-NaF насыщают газообразными гексафторидами урана, плутония, нептуния в пределах 2-20 % по сумме фторидов. При этом параметр ниже 2 % требует подачи большого количества энергии (в кулонах), а параметр выше 20 % приводит к
5 повышению температуры плавления эвтектики фторидных солей, что является также нежелательным. Эффективность электролиза возрастает, если насыщение расплава эвтектики тройной системы фторидных солей щелочных металлов осуществлять барботированием газообразных солей гексафторидов урана, плутония и нептуния в расплав. Это имеет место потому, что барботированием под слой расплава эвтектики
10 достигается полное поглощение смеси гексафторидов и их равномерное насыщение расплавленного электролита высшими фторидами исходных элементов из газовой смеси.

Отличительной особенностью заявляемого способа является и то, что для выделения продуктов переработки не нужно останавливать процесс электролиза, вывод
15 металлических порошков делящихся элементов в смеси с расплавом электролита и расплавом цинка (жидкого катода) может производиться в непрерывном режиме. Непрерывному выводу суспензии металлических порошков делящихся элементов и цинка способствует еще и то, что плотность металлических порошков превышает плотность расплава цинка более, чем в 2-2,5 раза, поэтому поверхность жидкого
20 расплава катода непрерывно очищается. Газообразный элементный фтор, который выделяется с анодов, непрерывно удаляется и направляется на повторное использование для фторирования исходных таблеток отработавшего ядерного топлива. Из суспензии металлических порошков делящихся элементов и расплава цинка, последний отделяется методом вакуумной термической отгонки при температуре 500-
25 700°C. Отогнанный цинк возвращают в электролизер для восполнения жидкого катода, а металлические порошки используют при изготовлении ТВЭЛ и ТВС.

Технологические температурные параметры заявляемого способа были получены экспериментальным путем на основе опытных исследований на необлученных материалах, а также на основе анализа результатов экспериментов и
30 собственного опыта осуществления аналогичных процессов с достижением поставленной задачи и технического результата.

Так обработку ОЯТ производят газообразным оборотным фтором при температуре 300-800°C, поскольку при температуре ниже 300⁰C происходит налипание нелетучих фторидов (фторидного огарка) на внутреннюю поверхность стенок реактора

фторирования, а при температуре выше 800°C отмечены случаи прогорания стенок реактора фторирования. Электролитическое восстановление фторидов делящихся элементов актиноидов в расплаве низкоплавкой эвтектики тройных фторидных солей щелочных элементов осуществляют при температуре 500-550°C. Поскольку при 5 температуре ниже 500°C происходит затвердевание эвтектики фторидных солей, а при температуре выше 550°C давление паров фторидов, содержащихся в эвтектике, возрастает более чем до 50 мм рт.ст., из-за чего часть фторидов делящихся актиноидов загрязняет элементарный фтор, выделяющийся на аноде в процессе электролиза, что делает невозможным повторное использование фтора. Процесс иммобилизации всех 10 газообразных и нелетучих фторидов продуктов деления в расплав кремния производят при температуре 1420-1450°C, поскольку при температуре ниже 1420°C происходит затвердевание образующегося расплава, а при температуре выше 1450°C степень улавливания газообразных и нелетучих фторидов продуктов деления существенно уменьшается (примерно в 5 раз).

15 Иммобилизация продуктов деления в расплав кремния, упаковка образовавшегося композита в керамические ампулы и контейнеры также осуществлялись на основе результатов экспериментов авторов с необлученными материалами.

Представленные в заявке способ и установка отвечают требованию "единства 20 изобретения", поскольку направлены на решение одной задачи - более эффективной переработки ОЯТ путем создания условий для круговорота (рецикла) элементного фтора. Кроме того, создают возможность возврата элементного фтора, выделяющегося при электролизе, в технологический процесс фторирования исходных таблеток отработавшего ядерного топлива, что решает проблему утилизации отходов вредных 25 веществ, исключает их выброс в атмосферу, а поэтому отпадает необходимость в их обезвреживании и очистке.

Таким образом, заявляемая последовательность технологических операций предлагаемого способа и совокупность существенных признаков предлагаемой 30 установки связаны между собой настолько, что они образуют единый общий изобретательский замысел и между ними существует техническая взаимосвязь.

Заявляемые изобретения иллюстрируются прилагаемыми чертежами, при этом:

на фиг. 1 - схематически представлен один из вариантов технологического процесса переработки отработавшего МОХ-топлива на пристанционном заводе - технологический процес переработки ОЯТ реактора ВВЭР-1000 и изготовления ТВЭЛ и ТВС в соответствии с предлагаемым способом;

на фиг. 2 - представлена схема, поясняющая этап фторирования таблеток ОЯТ элементным фтором с внутренним отводом выделяющегося тепла;

на фиг. 3 - представлена схема электролизера для получения металлических порошков делящихся элементов и элементного фтора.

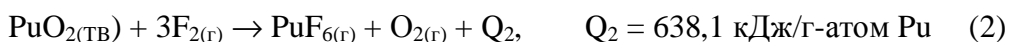
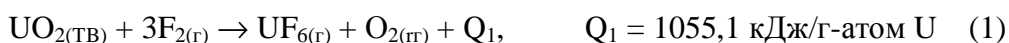
Предлагаемая установка для переработки ОЯТ содержит пульт управления, защитную камеру, в которой установлены дистанционно управляемые устройства для механической разделки отработавших топливных таблеток (ТТ), приводные механизмы устройств для механической разделки которых соединены с пультом управления /не показано/. Установка снабжена аппаратом фторирования, который включает реактор 1 фторирования колонного типа с кипящим слоем материала таблеток, побудитель расхода 2, теплообменник 3 для охлаждения газов, фильтр 4 тонкой очистки газовой фазы от пыли, которые объединены в единую технологическую цепочку. При этом реактор 1 фторирования колонного типа с кипящим слоем материала таблеток содержит устройство для загрузки ТТ, штуцер, снабженный задвижкой, для ввода элементного фтора, штуцер, снабженный задвижкой, для вывода и вакуумной транспортировки нелетучих фторидов на упаковку и захоронение и штуцер, снабженный задвижкой, для вывода летучих фторидов ПД, UF_6 , PuF_6 , NpF_6 , $F_{2(изб)}$, O_2 и их направления на фильтр 4 тонкой очистки, один выход которого предназначен для направления на конденсацию UF_6 , PuF_6 , NpF_6 , летучих фторидов ПД, а второй, снабженный задвижкой, соединен со входом теплообменника 3 для охлаждения газов, выход которого соединен со входом побудителя расхода 2, выход которого соединен со входом для ввода элементного фтора в реактор 1. Аппарат фторирования соединен с конденсатором фторидов актиноидов и ПД при температуре $-60\text{ }^{\circ}C$, снабженном специальными ловушками, охлаждаемые жидким азотом, где фториды актиноидов, летучие и низколетучие фториды ПД подвергают 2-х ступенчатой ректификационной очистке /не показано/. Поскольку газовая смесь продуктов фторирования ТТ имеет большую теплоемкость, установка имеет в своем составе автоматическое устройство для регулирования процессов охлаждения для снятия тепла, в зависимости от заданной температуры в аппарате фторирования ТТ. Установка снабжена пневмотранспортным

устройством, предназначенным для передачи на упаковку в герметичные капсулы из керамических конструкционных порошков диборида титана (TiB₂) или нитрида бора (BN).

Установка снабжена электролизером для электролитического восстановления очищенных от ПД фторидов актиноидов до порошков металлов в расплаве эвтектики фторидных солей при температуре 500-550 °С. Электролизер содержит корпус 5, в котором установлен анод графитовый 6. На корпусе 5 установлен токоподвод анодный 7. В корпусе 5 размещен жидкий цинковый анод 8, а на корпусе 5 - токоподвод катодный 9 и узел электроизоляции и отвода F₂ - 10. Корпус 5 снабжен узлом электроизолированной опоры 11. В корпусе 5 имеется под графитовый 12. На корпусе 5 установлен штуцер 13 для слива жидкого катода в емкость 14 и испаритель цинка 15. Кроме перечисленных элементов, установка также включает систему автоматического управления технологическими процессами и устройство для изготовления топливных таблеток смешанного уран-плутониевого топлива из получаемых порошковых материалов. Определяющими операциями, от которых зависят свойства готовых таблеток, являются прессование и спекание. В предлагаемой установке используется известное устройство, содержащее одноочковые матрицы с двухсторонним приложением давления прессования. Этот процесс осуществляется на высокопроизводительном полностью автоматизированном прессе. Пресс имеет вращающуюся столешницу, в которой находится 10 гнезд-пресс-форм, сгруппированных в секции. В пресс-форме каждой секции, проходящих определенные позиции пресса, выполняются последовательно операции загрузки пресс-порошка, подпрессовка, прессование и извлечение топливных таблеток (см. Разработка, производство и эксплуатация тепловыделяющих элементов энергетических реакторов. Кн.1. Под редакцией С.Г. Решетникова. - М.: Энергоатомиздат, 1995 г., с. 292-296) /не показаны/.

Пример осуществления способа.

В основе фторидной технологии регенерации отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) лежит способность основных компонентов топливных композиций - урана и плутония - образовывать высшие фториды - гексафториды урана и плутония по реакциям:



Гексафториды урана и плутония обладают высокой летучестью при сравнительно невысокой температуре (для UF_6 $t_{пл} = 64,02$ °C (под давлением), $t_{кип} = 56,6$ °C; для PuF_6 $t_{пл} = 50,6$ °C, $t_{кип} = 62,3$ °C). При этом основная масса радионуклидов - ПД (щелочные, щелочно-земельные, редкоземельные элементы и др.) образует нелетучие или малолетучие фториды, которые легко выводятся из процесса в твердом виде на начальной стадии переработки ОЯТ. Различия в летучести фторидных соединений позволяют осуществить глубокую очистку урана и плутония от всех ПД.

Технология и оборудование должны быть пригодны для использования при переработке ОЯТ ядерных реакторов на тепловых нейтронах типа ВВЭР, РБМК, РWR, ВWR, АGR, НТGR и быстрых нейтронах типа LMFBR. На фиг.1 схематически представлен один из вариантов технологического процесса переработки отработавшего МОХ-топлива на пристанционном заводе.

При работе атомной станции в составе 2-х водо-водяных реакторов с электрической мощностью 1ГВт (например, ВВЭР-1000) при выгорании 27000-40000 Мвт·сут/т U переработке подлежит 22 т ОЯТ в год с каждого реактора. Из 151 топливной сборки (кассеты) реактора ВВЭР-1000 ежегодно выгружают на переработку 50 штук сборки или $(50 \text{ шт/год}) / (300 \text{ шт/год}) = 0,166$ шт/сутки. Следовательно, одну сборку необходимо переработать за $(1 \text{ шт}) / (0,166 \text{ шт/сут}) = 6$ суток или с 2-х реакторов АЭС нужно переработать 1 топливную сборку за трое суток. Это действительно минирадиохимический пристанционный завод.

Приводим краткое описание технологического процесса и расчет годового баланса радиоактивных материалов при переработке отработавшего МОХ- топлива реактора ВВЭР-1000.

В табл. 1 приведен состав актиноидов осколочных элементов в годовой выгрузке реактора ВВЭР.

Состав ОЯТ с одного реактора ВВЭР-1000 в год, подлежащего переработке на
пристанционном заводе *

Элемент	Количество, кг/год	Элемент	Количество, кг/год	Элемент	Количество, кг/год
^{235}U	176,00	^{238}Pu	3,70	^{237}Np	9,90
^{236}U	99,94	^{239}Pu	116,60	$^{241+243}\text{Am}$	3,12
^{238}U	20680,00	^{240}Pu	47,08	$^{242+244}\text{Am}$	0,86
		^{241}Pu	24,20		
		^{242}Pu	7,48		

5

Продукты деления (ПД)

Элемент	Количество в год	Элемент	Количество в год	Элемент	Количество в год
$^3\text{H(T)}$	$0,013\text{ м}^3$	^{99}Tc	18,37 кг	РЗМ	110,74 кг
^{85}Kr	$2,20\text{ м}^3$	(Rh, Pd)	36,61 кг	^{90}Sr	20,97 кг
^{136}Xe	$37,85\text{ м}^3$	Ru	50,16 кг	^{137}Cs	60,85 кг
^{129}I	6,2 кг				

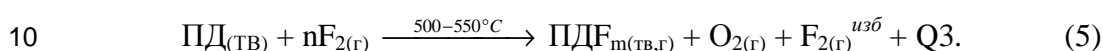
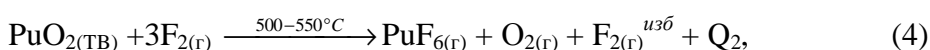
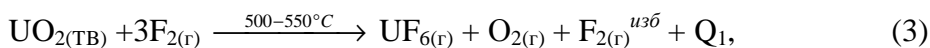
* Выдержка 90 сут, выгорание 33 ГВтхсут/т

После выдержки в течение 3-6 месяцев сборка ТВС поступает в герметичную камеру на расчехловку сборки, отрезку хвостовиков, заглушек и резку ТВЭЛов. 10
Металлические части сборки, хвостовики и куски оболочек ТВЭЛов в количестве 19,7 т/год переплавляют с разделением на чистые слитки металла и примерно 5 % мае. загрязненных шлаков (≤ 1 т/год). Шлаки упаковывают в герметичные керамические ампулы и контейнеры, которые хранят в пристанционных сухих подземных отсеках. 15
Часть газообразных продуктов деления (ПД) из камеры разделки и резки подают на отделение стабильного ксенона, который используют по прямому назначению, остальные ПД закачивают и хранят в баллонах. Всего подлежит хранению газообразных ПД не более $2,5\text{ м}^3/\text{год}$ с одного реактора ВВЭР-1000.

Таблетки облученного топлива в количестве 440 кг направляют в реактор 1 20
фторирования обратным элементным фтором. В качестве реактора 1 фторирования используют аппарат, изготовленный из нержавеющей стали, который изнутри покрыт

тонкой плотной пленкой никеля. Реактор 1 имеет ложное днище, на которое насыпают стационарный слой топливных таблеток (ТТ) без их предварительного измельчения. Под ложное днище подают оборотный элементный фтор с 15-20 % мае. избытком относительно стехиометрически необходимого количества и осуществляют процесс

5 фторирования по реакциям:



Реакции (3-5) являются автогенными, для их проведения не требуется подвода тепла, наоборот необходимо отводить выделяющееся тепло ($\text{Q}_1 + \text{Q}_2 + \text{Q}_3$). Отвод тепла осуществляют принудительно за счет отбора части газового потока ($\text{UF}_{6(\text{г})}$, $\text{PuF}_{6(\text{г})}$, $\text{NpF}_{6(\text{г})}$, $\text{F}_{2(\text{г})}^{\text{изб}}$, $\text{O}_{2(\text{г})}$) после реактора фторирования, его охлаждения и циркуляции через слой фторируемых ТТ. Газовая смесь продуктов фторирования ТТ имеет большую теплоемкость, ее объем для циркуляции, охлаждения для снятия тепла регулируется автоматически, в зависимости от заданной температуры в аппарате фторирования ТТ. Схема аппарата фторирования ТТ с системой отвода избыточного тепла приведена на

20 фиг.2.

При фторировании 440 кг ТТ образуется 5,75 кг нелетучих фторидов (фториды Cs, Sr, РЗМ, Am, Cm и др.). Процесс фторирования ТТ осуществляют в две стадии в две стадии с отгонкой 85-90 % гексафторида урана на первой стадии фторирования и смеси гексафторидов урана и плутония на второй стадии при температуре 300-800 °С. После

25 проведения второй стадии фторирования процесс останавливают. Нелетучие фториды элементов передают с помощью пневмотранспорта на упаковку в герметичные капсулы из керамических конструкционных порошков диборида титана (TiB_2) или нитрида бора (BN).

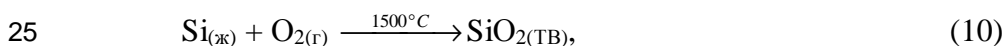
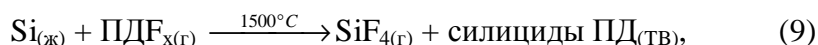
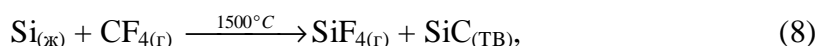
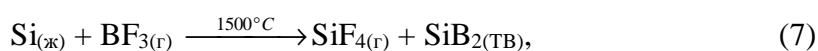
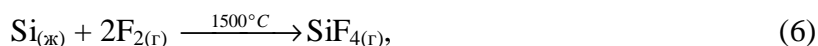
30 Капсулы с нелетучими фторидами ПД устанавливают в герметичные керамические контейнеры из карбида или нитрида кремния (SiC или Si_3N_4) и направляют на захоронение в подземные сухие хранилища. Всего в год образуется и направляется на захоронение ~0,3 т нелетучих фторидов.

Газовую фазу из реактора 1 фторирования после тонкой фильтрации на фильтре тонкой очистки 4 направляют на конденсацию фторидов актиноидов и ПД при -60°C в специальные ловушки, охлаждаемые жидким азотом. Фториды актиноидов, летучие и низколетучие фториды ПД подвергают 2-х ступенчатой ректификационной очистке.

Очищенные от ПД фториды актиноидов подают на электролитическое восстановление до порошков металлов в расплаве эвтектики фторидных солей при $500-550^{\circ}\text{C}$, порошок актиноидов выводят из электролизера (фиг.3) в смеси с частью расплавленного цинка.

Из суспензии отделяют цинк методом вакуумной дистилляции. Цинк возвращают в электролизер для пополнения жидкого катода, а металлические порошки окисляют воздухом и направляют на изготовление ТВЭЛ и ТВС. Для осуществления процесса электролиза металлических порошков актиноидов на производительность пристанционного мини завода необходим лишь один электролизер с электрической нагрузкой 12,5 кА.

Несконденсированные фториды ПД (BF_3 , CF_4 и др.), кислород, выделившийся на стадии фторирования ТТ, избыток фтора со стадии фторирования, летучие и низколетучие фториды ПД с 1-ой и 2-ой стадий ректификационной очистки фторидов актиноидов направляют на поглощение в расплаве кремния. В этом расплаве происходит поглощение всех вышеуказанных газообразных веществ по реакциям:



Образовавшийся композит $\text{Si-SiB}_2\text{-SiC-SiO}_2$ -силициды ПД в количестве 22,313 т/год упаковывают в герметичные керамические ампулы из BN , TiB_2 или SiB_2 и керамические контейнеры из SiC или Si_2N_4 . Композиционный материал ПД в керамических ампулах и контейнерах направляют в подземное пристанционное хранилище для захоронения.

Газообразный тетрафторид кремния, выделившийся по реакциям (6-9), электролитически восстанавливают с получением порошка кремния и элементарного фтора. Элементарный фтор с инертных анодов всех электролизеров используют в рецикле для фторирования ТТ, а расплав кремния - для улавливания фторидов ПД.

- 5 В табл. 2 приведен годовой баланс радиоактивных и делящихся материалов при переработке оксидного уран-плутониевого топлива одного реактора ВВЭР-1000 описанным выше способом.

Таблица 2

Материал	Приход, т/год	Расход, т/год
1. Отработавшее оксидное уран-плутониевое топливо	22,0	-
2. Слабообогатенный уран (3,5-5,0 % мае.) для равновесной загрузки	0,313	-
3. Топливные таблетки	-	22,0
4. Нелетучие фториды (Cs, Sr, РЗМ, Am, Cm и др.)	-	0,193
5. Композит (Si + SiC + SiB ₂ и др. (по содержанию ¹⁴ C, ¹¹ B и др. ПД))	-	0,120
ИТОГО	22,313	22,313

- 10 Использование предлагаемой фторидной технологии позволяет создать компактный перерабатывающий радиохимический мини завод в одном комплексе с двумя реакторами ВВЭР-1000.

В результате осуществления предложенной фторидной технологии достигаются следующие преимущества:

- 15 - фторидная технология является практически *безреагентной*, поскольку основной химический реагент для вскрытия отработавшего оксидного топлива - элементарный фтор, выделяющийся на анодах в процессе электролиза, многократно используется в собственном рецикле при фторировании ТТ;
- 20 - радиоактивные ПД полностью извлекаются в концентрированном виде в твердой нерастворимой форме в количестве 0,193 т/год, газообразном состоянии в объеме 2,2 м³/год и в виде летучих и среднелетучих фторидов ПД в количестве 0,120

т/год при переработке облученного топлива с одного реактора ВВЭР-1000, которые могут быть безопасно захоронены в пристанционном сухом хранилище с использованием новых конструкционных керамических материалов BN, TiB₂, TiSi₂, SiC и Si₃N₄;

5 - на всех стадиях переработки облученного топлива исключается наработка, выделение и использование делящихся материалов военного назначения, поэтому обеспечивается режим нераспространения ядерных материалов;

 - в технологических процессах радиохимической переработки ТТ исключается образование и использование взрывоопасных газообразных, жидких и твердых веществ
10 и их смесей;

 - обеспечивается ядерная безопасность, т.к. во всех аппаратах масса делящихся материалов меньше критической;

 - замкнутый цикл реактора ВВЭР-1000 - пристанционный радиохимический мини завод исключает дорогостоящую и опасную транспортировку ОЯТ, необходима
15 только поставка со стороны незначительного количества (~0,5 т/год с учетом компенсации образующихся четных изотопов радионуклидов) слабообогатенного гексафторида урана (3,5-5,0 % по ²³⁵U) для обеспечения одного реактора ВВЭР-1000;

 - предлагаемый пристанционный радиохимический мини завод по фторидной переработке облученного уран-плутониевого оксидного топлива может быть
20 спроектирован и создан в настоящее время, а не в отдаленной перспективе, поскольку в технологии используются обычные, широко применяемые в химическом и металлургическом производствах, аппараты несложной конструкции;

 - использование вышеуказанных преимуществ по определению обеспечивает низкие удельные капитальные затраты на создание замкнутого *ЯТЦ* и низкую
25 себестоимость рефабрикации уран-плутониевого оксидного топлива;

Из вышеизложенного описания совокупности и последовательности технологических процессов является очевидным, что все они могут быть осуществлены в промышленном масштабе при создании радиохимического мини завода для переработки ТВЭЛ и замыкании топливного цикла в пределах промплощадки каждой
30 атомной станции и решения поставленной задачи предлагаемыми изобретениями.

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ), который включает его обработку фтором или фторсодержащим соединением, *отличающийся* тем, что обработку таблеток отработавшего ядерного топлива производят газообразным обратным фтором в две стадии с отгонкой 85-90% гексафторида урана на первой стадии фторирования и смеси гексафторидов урана и плутония на второй стадии при температуре 300-800°C в аппарате колонного типа с внутренним отводом тепла химических реакций за счет отбора части газовой фазы продуктов реакций фторирования, охлаждения этой части газовой фазы теплоносителем и возврата (циркуляции) в аппарат фторирования, дальнейшего выделения кислорода, образовавшегося в процессах первой стадии фторирования оксидов ядерного топлива, за счет использования разности температур кипения кислорода и образовавшихся фторидов, ректификационной очистки фторидов делящихся элементов актиноидов от фторидов продуктов деления, электролитического восстановления фторидов делящихся элементов актиноидов в расплаве низкоплавкой эвтектики тройных фторидных солей щелочных элементов при температуре 500-550 °С с одновременным выделением элементарного фтора на инертном аноде и делящихся элементов актиноидов в виде порошка на расплавленном жидком катоде из цинка, вакуумной отгонки цинка от полученных металлических порошков актиноидов, окислением выделившихся делящихся актиноидов воздухом до оксидов, изготовления таблеток смешанного уран-плутониевого топлива, иммобилизации всех газообразных и нелетучих фторидов продуктов деления в расплав кремния при температуре 1420-1450 °С.

25 2. Установка для переработки отработавшего ядерного топлива, содержащая пульт управления, защитную камеру, в которой установлены дистанционно управляемые устройства для механической разделки отработавших топливных таблеток, приводные механизмы устройств для механической разделки которых соединены с пультом управления, *отличающаяся* тем, что установка дополнительно снабжена устройством для изготовления таблеток оксидного и смешанного уран-плутониевого топлива, устройством вакуумной отгонки цинка от металлических порошков актиноидов, электролизером, предназначенным для электролитического восстановления фторидов с получением металлических порошков и газообразного элементарного фтора, а также аппаратом фторирования, который включает реактор

фторирования колонного типа с кипящим слоем материала топливных таблеток, соединенный с фильтром тонкой очистки газовой фазы от пыли, соединенный с теплообменником для охлаждения газов и с конденсатором для сублимации фторидов и выделения инертных газов, соединенный с ректификационной колонной для очистки

5 фторидов делящихся элементов от примесей, выход которого предназначенный для очищенных фторидов и актиноидов соединен со входом электролизера, а выход электролизера для суспензии расплава цинка и металлических порошков актиноидов соединен с устройством вакуумной отгонки цинка от этих порошков, выход которого соединен с устройством рефабрикации, выход которого соединен с устройством для

10 изготовления таблеток оксидного и смешанного уран-плутониевого топлива, а установка снабжена устройствами для регенерации цинка и окисления выделившихся делящихся актиноидов воздухом до оксидов.

**СПОСОБ ПЕРЕРАБОТКИ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА
(С.) И УСТАНОВКА ДЛЯ ЕГО ОСУЩЕСТВЛЕНИЯ (У.).**

Предлагаемые изобретения относятся к технологии производства ядерного топлива, а именно, к способам и устройствам для изготовления топлива из продуктов переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ). С. включает обработку ОЯТ фтором или фторсодержащим соединением, а, согласно изобретению, обработку таблеток ОЯТ производят газообразным обратным фтором в две стадии с отгонкой 85-90% гексафторида урана на первой стадии фторирования и смеси гексафторидов урана и плутония на второй стадии при температуре 300-800°C в аппарате колонного типа с внутренним отводом тепла химических реакций за счет отбора части газовой фазы продуктов реакций фторирования, охлаждения этой части газовой фазы теплоносителем и возврата (циркуляции) в аппарат фторирования, дальнейшего выделения кислорода, образовавшегося в процессах первой стадии фторирования оксидов ядерного топлива, за счет использования разности температур кипения кислорода и образовавшихся фторидов, ректификационной очистки фторидов делящихся элементов актиноидов от фторидов продуктов деления, электролитического восстановления фторидов делящихся элементов актиноидов в расплаве низкоплавкой эвтектики тройных фторидных солей щелочных элементов при температуре 500-550 °C с одновременным выделением элементного фтора на инертном аноде и делящихся элементов актиноидов в виде порошка на расплавленном жидком катоде из цинка, вакуумной отгонки цинка от полученных металлических порошков актиноидов, окислением выделившихся делящихся актиноидов воздухом до оксидов, изготовления таблеток смешанного уран-плутониевого топлива, иммобилизации всех газообразных и нелетучих фторидов продуктов деления в расплав кремния при температуре 1420-1450 °C. Предлагаемая У. содержит пульт управления, защитную камеру, в которой установлены дистанционно управляемые устройства для механической разделки отработавших топливных таблеток, приводные механизмы устройств для механической разделки которых соединены с пультом управления, а, согласно изобретению, установка дополнительно снабжена устройством для изготовления таблеток оксидного и смешанного уран-плутониевого топлива, устройством вакуумной отгонки цинка от металлических порошков актиноидов, электролизером, предназначенным для электролитического восстановления фторидов с получением металлических порошков и газообразного элементного фтора, а также аппаратом фторирования, который

включает реактор фторирования колонного типа с кипящим слоем материала топливных таблеток, соединенный с фильтром тонкой очистки газовой фазы от пыли, соединенный с теплообменником для охлаждения газов и с конденсатором для сублимации фторидов и выделения инертных газов, соединенный с ректификационной колонной для очистки фторидов делирующихся элементов от примесей, выход которого предназначенный для очищенных фторидов и актиноидов соединен со входом электролизера, а выход электролизера для суспензии расплава цинка и металлических порошков актиноидов соединен с устройством вакуумной отгонки цинка от этих порошков, выход которого соединен с устройством рефабрикации, выход которого соединен с устройством для изготовления таблеток оксидного и смешанного уран-плутониевого топлива, а установка снабжена устройствами для регенерации цинка и окисления выделившихся делирующихся актиноидов воздухом до оксидов. В основу предлагаемых изобретений поставлена задача создания замкнутого технологического процесса, включающего использование ядерного топлива на АЭС и последующую переработку ОЯТ на территории АЭС в новое ядерное топливо, например, для той же АЭС. Эта задача решается путем создания условий для круговорота (рецикла) элементного фтора.

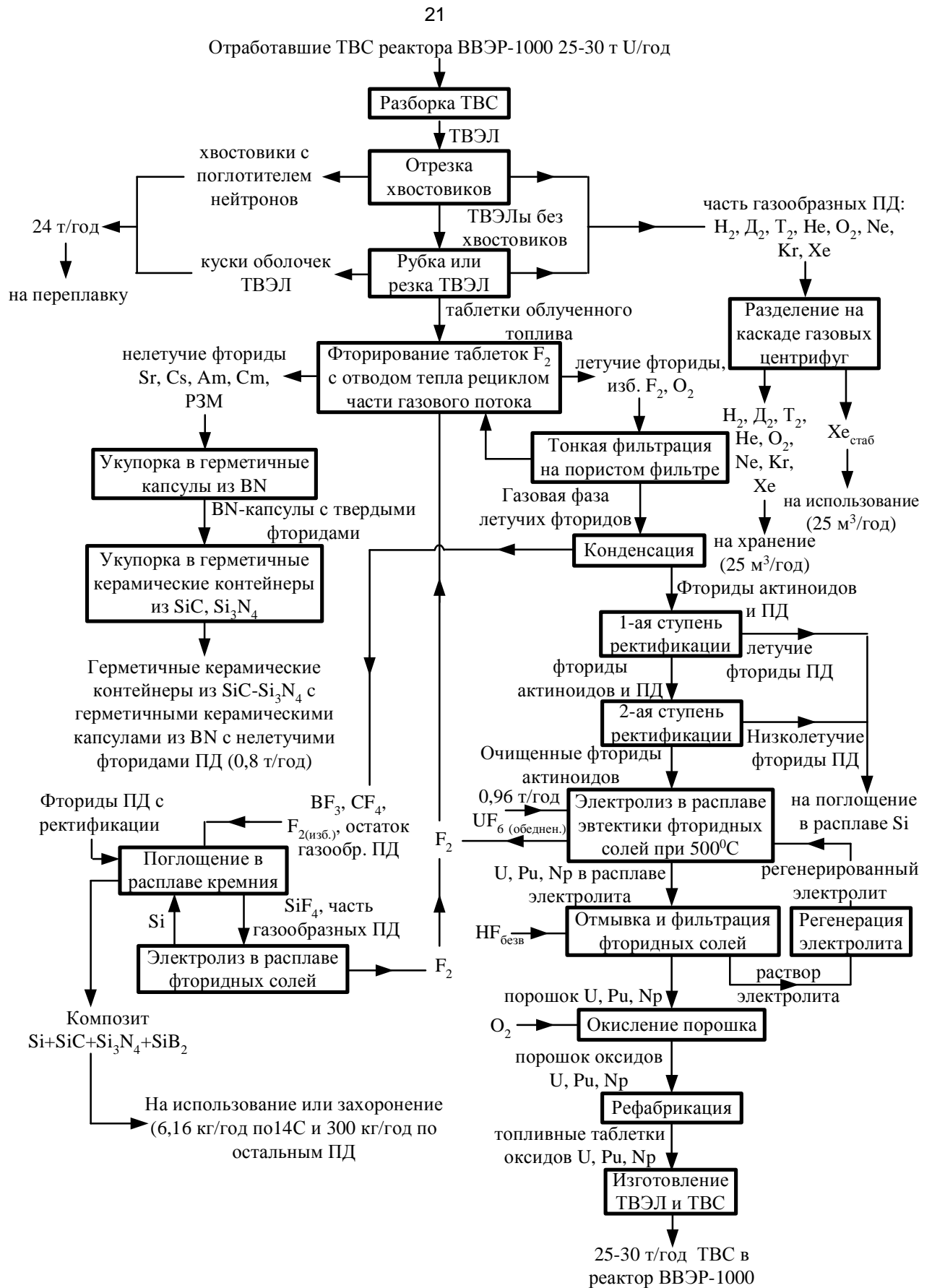
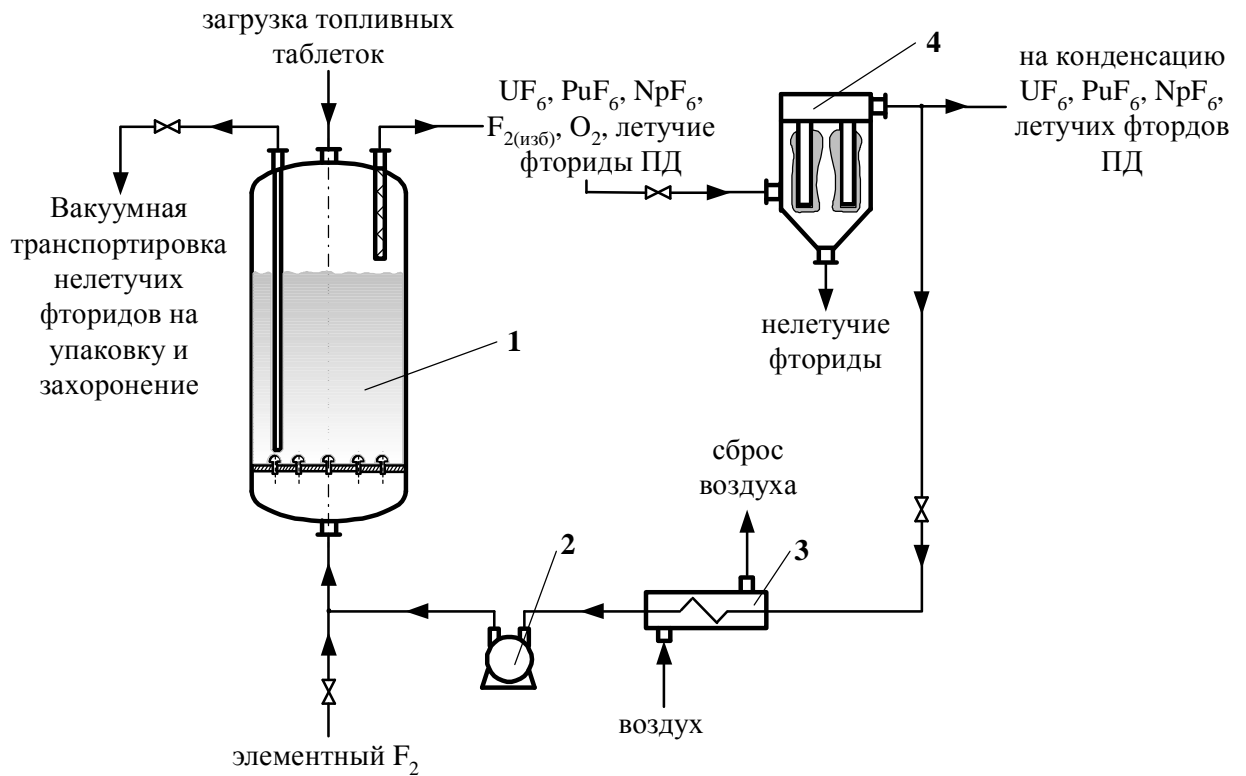


Рис.1 Принципиальная технологическая схема (блок-схема) фторидной переработки ОЯТ на радиохимическом минизаводе



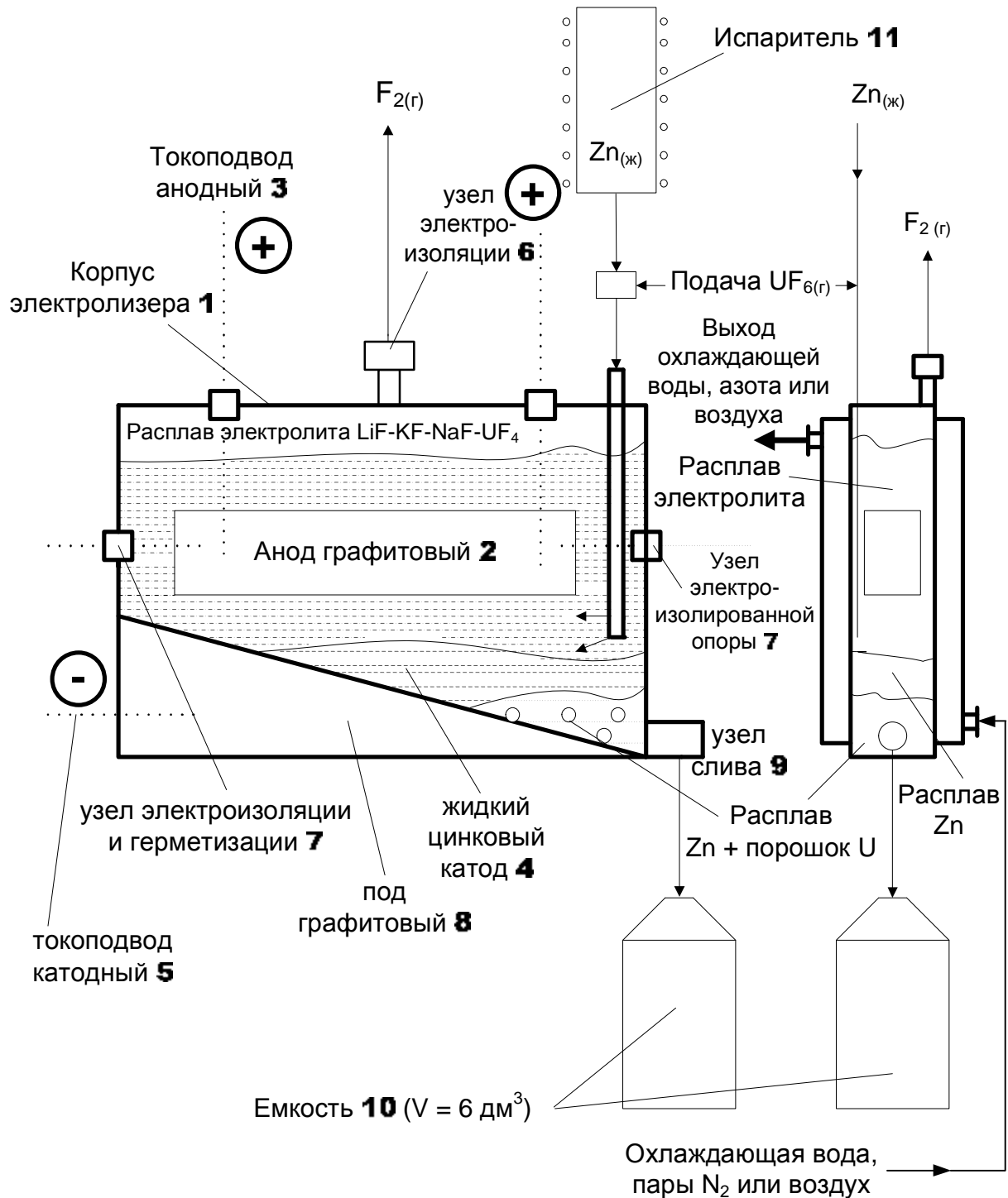
1 - реактор фторирования; 2 - побудитель расхода; 3 - теплообменник для охлаждения газов; 4 - фильтр тонкой очистки газовой фазы

5

Рис. 2 Схема фторирования топливных таблеток (ТТ) в аппарате со стационарным слоем

10

15



- 1 – корпус электролизера; 2 – анод графитовый; 3 – токоподвод анодный; 4 – жидкий цинковый катод; 5 – токоподвод катодный; 6 – узел электроизоляции и отвода F₂; 7 – узел электроизолированной опоры; 8 – под графитовый; 9 – узел слива жидкого катода; 10 – емкость 10; 11 – испаритель цинка

Рис. 3 Схема электролизера с жидким цинковым катодом для получения порошка U во фторидном электролите