

ФЕДЕРАЛЬНОЕ АГЕНТСТВО ПО ОБРАЗОВАНИЮ
МОСКОВСКИЙ ИНЖЕНЕРНО-ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ
(ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ)

В.А. Апсэ А.Н. Шмелев

ЯДЕРНЫЕ ТЕХНОЛОГИИ

*Рекомендовано УМО «Ядерные физика и технологии»
в качестве учебного пособия
для студентов высших учебных заведений*

Москва 2008

УДК 621.039.5(075)

ББК 31.46я7

А77

Апсэ В.А., Шмелев А.Н. **Ядерные технологии:** Учебное пособие. М.: МИФИ, 2008. – 128 с.

Представлено краткое описание основных технологий современного ядерного топливного цикла: от добычи урановой руды и до захоронения радиоактивных отходов. Главное внимание уделено базовым принципам, заложенным в каждую технологию, описанию используемого оборудования и условиям осуществления технологического процесса. Дан анализ значимости каждой технологии для поддержания режима нераспространения ядерных материалов.

Пособие предназначено для студентов, специализирующихся в области учета, контроля ядерных материалов и физической защиты ядерно-опасных объектов, для методического обеспечения магистерской образовательной программы «ФЗУ и К ЯМ» направления «Техническая физика», подготовки инженеров-физиков по специальности 651000 направления «Ядерные физика и технологии» и будущих специалистов ядерного топливного цикла.

Пособие подготовлено в рамках Инновационной образовательной программы.

Рецензент д-р физ.-мат. наук Ю.Е. Титаренко

ISBN 978-5-7262-1031-5

© Московский инженерно-физический институт
(государственный университет), 2008

ОГЛАВЛЕНИЕ

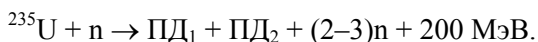
Введение	4
Глава 1. Концепция ядерного топлива	7
Глава 2. Концепция ядерного топливного цикла	19
Глава 3. Добыча и первичная обработка природных ЯМ	35
Глава 4. Изотопное обогащение урана.....	47
Глава 5. Технологии изготовления твэлов и ТВС.....	71
Глава 6. Технология использования топлива в ядерных реакторах	79
Глава 7. Транспортировка облученного топлива	87
Глава 8. Технологии переработки облученного ядерного топлива	89
Глава 9. Технологии переработки радиоактивных отходов.....	111
Список литературы	127

ВВЕДЕНИЕ

Предметом курса являются ядерные технологии, или технологии обращения с ядерными материалами (ЯМ), к которым принято относить те вещества, без которых невозможно инициирование и протекание двух самоподдерживающихся ядерных реакций, сопровождающихся выделением большого количества энергии.

1. Цепная реакция деления ядер тяжелых изотопов.

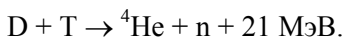
Например, при делении изотопа ^{235}U нейтронами образуются два продукта деления, 2–3 нейтрона, способных продолжить реакцию и выделяется примерно 200 МэВ тепловой энергии:



Поэтому к ЯМ относят изотопы урана и тория (из естественных элементов), изотопы искусственных трансурановых элементов (в основном, плутония, а также изотопы Np, Am, Cm, Bk Cf). Сюда же относится ^{233}U , искусственный изотоп урана, который может быть получен нейтронным облучением тория.

2. Реакция термоядерного синтеза ядер легких изотопов.

Например, при взаимодействии дейтерия и трития образуются ядра гелия, нейтроны и выделяется примерно 21 МэВ тепловой энергии:



Поэтому к ЯМ относят изотопы водорода: дейтерий и тритий. В природном водороде содержится 0,015% дейтерия. Трития нет в природном водороде из-за его быстрого распада (период полураспада $T_{1/2} = 12,3$ г.). К ЯМ отнесены также тяжелая вода (D_2O) и литий, потому что изотоп лития ${}^6\text{Li}$ способен интенсивно производить тритий в реакции ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$. Сечение (n, α) -реакции ${}^6\text{Li}$ для тепловых нейтронов – 940 барн. Содержание ${}^6\text{Li}$ в природном литии – 7,5%.

Таким образом, ЯМ включают:

1) исходные ЯМ – урановые и ториевые руды, природный уран и торий, обедненный уран (уран с пониженным содержанием ^{235}U);

2) специальные ЯМ – обогащенный уран (уран с повышенным содержанием ^{235}U), плутоний любого изотопного состава и ^{233}U ;

3) трансурановые элементы (Np, Am, Cm, Bk, Cf);

4) тяжелую воду, дейтерий, тритий, литий.

Три первые категории ЯМ связаны с ядерной энергетикой, основанной на реакции деления тяжелых ядер нейтронами, а четвертая – с термоядерной реакцией легких изотопов. Поскольку создание энергетических установок, основанных на этой реакции, остается пока нерешенной проблемой, основное внимание в курсе будет уделено технологиям, основанным на ЯМ первых трех категорий.

Ядерные технологии включают технологии производства ЯМ, их хранения, использования, транспортировки, переработки, возможного повторного использования регенерированных ЯМ или их захоронения в случае невозможности дальнейшего применения.

Большое внимание в курсе будет уделяться связи ядерных технологий с вопросами безопасного обращения с ЯМ. Термин «безопасность» в отношении ЯМ может использоваться в широком смысле, включая радиационную безопасность, ядерную безопасность и безопасность относительно распространения ядерного оружия.

Под **радиационной безопасностью** понимается защищенность от поражающих факторов прямого облучения всеми видами ионизирующего излучения.

Под **ядерной безопасностью** понимается недопущение критического состояния системы, содержащей ЯМ, т.е. недопущение возникновения самоподдерживающейся цепной реакции деления. Результатом нарушения ядерной безопасности может стать ядерный взрыв, тепловой взрыв или, как минимум, вспышка излучения и переоблучение персонала.

Под **безопасностью в отношении распространения ЯМ** понимается защищенность от хищений ЯМ с целью создания ядерных взрывных устройств или радиологического оружия. В настоящее время в МАГАТЭ для обозначения этого типа безопасности используется термин «Ядерная физическая безопасность» («Nuclear security») в отличие от термина «Nuclear safety», означающего упомянутую выше ядерную безопасность.

Основное внимание в настоящем курсе будет уделено описанию ядерных технологий и их анализу с точки зрения обеспечения не-

распространения ЯМ, т.е. с точки зрения ядерной физической безопасности. Нераспространение ЯМ может быть гарантировано, если при работе с ними будут созданы такие условия, чтобы хищение и использование ЯМ в незаконных целях стало настолько затруднительно и опасно, а риск обнаружения подобных действий столь высок, что потенциальные нарушители были бы вынуждены отказаться от своих намерений.

Это означает, что ядерные технологии должны быть обеспечены такой системой физической защиты, учета и контроля ЯМ, чтобы:

- а) добраться до ЯМ и похитить их было очень трудно;
- б) любое хищение малого количества ЯМ персоналом установки быстро обнаруживалось, и дальнейшие попытки хищений пресекались;

- в) санкционированное хищение ЯМ легко обнаруживалось национальными или международными инспекционными органами.

Итак, основная тема курса – ядерные технологии с точки зрения нераспространения ЯМ.

Ниже будут рассмотрены следующие основные вопросы:

1. Ядерный топливный цикл (ЯТЦ). Обзор основных стадий ЯТЦ от добычи природных ЯМ до захоронения радиоактивных отходов (РАО).

2. Технологии добычи и первичной обработки природных ЯМ.

3. Запасы в месторождениях природных ЯМ и темпы их добычи.

4. Технологии обогащения ЯМ для изготовления ядерного топлива. Обогащательные технологии с точки зрения нераспространения.

5. Методика расчета трудоемкости и энергоемкости обогащательных технологий. Разделительные работы. Энергоемкость разделительных работ в разных технологиях.

6. Технологии изготовления ядерного топлива, твэлов и ТВС.

7. Технологии использования ЯМ в ядерных реакторах. Стратегии перегрузочных работ.

8. Временное хранение облученного ядерного топлива (ОЯТ) на АЭС и его транспортировка.

9. Технологии химической переработки ОЯТ. Технологии переработки с повышенной защищенностью от распространения ЯМ.

10. Технологии переработки и захоронения РАО. Проекты создания хранилищ РАО в геологических формациях.

Глава 1. КОНЦЕПЦИЯ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

Ядерным топливом называется ЯМ, содержащий нуклиды, которые делятся при взаимодействии с нейтронами. Делящимися нуклидами являются:

- 1) естественные изотопы урана и тория;
- 2) искусственные изотопы плутония (продукты последовательного захвата нейтронов изотопами, начиная с ^{238}U);
- 3) изотопы трансурановых элементов (Np, Am, Cm, Bk, Cf);
- 4) искусственный изотоп ^{233}U (продукт захвата нейтронов торием-232).

Как правило, изотопы урана, плутония и тория с четным массовым числом («четные» изотопы ^{238}U , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{232}Th) делятся только нейтронами с высокой энергией (порог реакции деления для них составляет примерно 1,5 МэВ). В то же время изотопы урана и плутония с нечетным массовым числом («нечетные» изотопы ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{233}U) делятся нейтронами любых энергий, включая тепловые нейтроны. Причем чем ниже энергия нейтронов, тем выше микросечения деления нечетных изотопов.

Спектр нейтронов, испускаемых в процессе деления, – это спектр быстрых нейтронов (средняя энергия $\sim 2,1$ МэВ), быстро замедляющихся ниже порога реакции деления четных изотопов. Это означает, что цепную реакцию деления на четных изотопах трудно осуществить, так как лишь малая доля нейтронов имеет энергию выше порога деления этих изотопов. В то же время для поддержания цепной реакции на нечетных изотопах желательно замедлить нейтроны деления до тепловой энергии, что вполне реально.

Ядерное топливо, содержащее только природные делящиеся изотопы (^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th), называется первичным. Ядерное топливо, содержащее делящиеся нуклиды, полученные искусственным путем (^{233}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu), называется вторичным.

Изотопы ^{238}U и ^{232}Th представляют собой природные ЯМ, мало-пригодные для использования в качестве ядерного топлива, так как они делятся только быстрыми нейтронами. Но эти изотопы могут использоваться для получения искусственных делящихся нуклидов

(^{233}U , ^{239}Pu), т.е. для воспроизводства вторичного ядерного топлива. Эти нуклиды часто называют воспроизводящими изотопами.

На современном этапе ядерная энергетика базируется на природном уране, который состоит из трех изотопов:

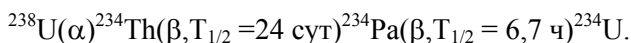
1) ^{238}U ; содержание – 99,2831%; период полураспада $T_{1/2} = 4,5 \cdot 10^9$ лет;

2) ^{235}U ; содержание – 0,7115%; период полураспада $T_{1/2} = 7,1 \cdot 10^8$ лет;

3) ^{234}U ; содержание – 0,0054%; период полураспада $T_{1/2} = 2,5 \cdot 10^5$ лет.

Кстати, возраст Земли (примерно 6 млрд. лет) сопоставим с периодом полураспада ^{238}U .

Интересно, что ^{234}U является продуктом одного α -распада ^{238}U и двух β -распадов промежуточных изотопов. Эту цепочку изотопных переходов можно записать в следующем виде:



Все изотопы урана радиоактивны, испускают α -частицы с энергией 4,5–4,8 МэВ, а также могут спонтанно делиться с испусканием нейтронов (например, ~ 13 н/с с 1 кг ^{238}U).

Изотоп ^{235}U является единственным природным ЯМ, который может делиться нейтронами любых энергий (включая тепловые нейтроны) с образованием избыточного количества быстрых нейтронов. Именно благодаря этим избыточным нейтронам становится возможным осуществление цепной реакции деления. Но в природном уране изотоп ^{235}U содержится только на уровне 0,71%. Большинство ныне действующих энергетических реакторов работает на уране, обогащенном изотопом ^{235}U до 2–5%. Быстрые реакторы используют уран с обогащением 15–25%. Исследовательские реакторы часто используют уран среднего и высокого обогащения (до 90%). В настоящее время МАГАТЭ рекомендует странам-участницам постепенно перевести свои исследовательские реакторы на топливо с обогащением не более 20%. Критическая масса урана, обогащенного до 20%, составляет ~ 830 кг, а хищение такого количества урана с исследовательских реакторов практически невозможно.

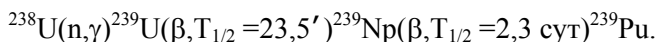
Обогащенный уран – это уран, содержащий ^{235}U в количестве, превышающем его концентрацию в природном уране. Различают уран:

- 1) низкообогащенный – $X_5 < 5\%$;
- 2) среднеобогащенный – X_5 от 5 до 20%;
- 3) высокообогащенный – X_5 от 20 до 90%;
- 4) сверхобогащенный (оружейный) – $X_5 > 90\%$.

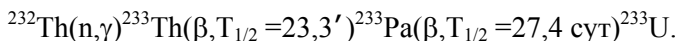
При производстве обогащенного урана в качестве побочного продукта образуется обедненный уран, т.е. уран с содержанием ^{235}U ниже природного уровня. Современные обогатительные технологии сопровождаются образованием обедненного урана, содержание ^{235}U в котором обычно находится на уровне 0,2–0,3%.

Содержание ^{235}U в природном уране (0,71%) не всегда было таким, если рассматривать геологические масштабы времени. Период полураспада ^{235}U примерно в 6 раз короче, чем ^{238}U (0,7·10⁹ лет против 4,5·10⁹ лет). Поэтому раньше обогащение природного урана было больше, чем 0,71%. На урановом руднике в Окло (Габон) в 1973 г. был обнаружен уран с аномально малым содержанием ^{235}U , только 0,44%. До этого никогда и нигде не наблюдалось какого-либо отклонения содержания ^{235}U от стандартного значения 0,71%. Расчетные исследования показали, что примерно 1,8 млрд лет назад, когда обогащение природного урана составляло около 3%, при наличии замедлителя, например легкой воды, внутри урановой руды возникла и поддерживалась примерно 600 тыс. лет цепная реакция деления, или природный ядерный реактор «Окло», в результате работы которого произошло выгорание ^{235}U . По расчетным оценкам, средняя тепловая мощность «Окло» составляла 25 кВт при нейтронном потоке $\sim 4 \cdot 10^8$ н/см²·с. Полная энерговыработка «Окло» за 600 тыс. лет составила 15 ГВт·год, что эквивалентно энерговыработке ЛАЭС за 2,5 года.

Основной изотоп природного урана ^{238}U при захвате нейтронов превращается во вторичное ядерное топливо, изотоп ^{239}Pu , после двух последовательных β -распадов:



Аналогично происходит накопление изотопа ^{233}U при облучении природного тория нейтронами. При захвате нейтронов ^{232}Th переходит в ^{233}U после двух β -распадов:



Но чтобы осуществить эти превращения в ядерном реакторе, там должно размещаться первичное ядерное топливо, т.е. изотоп ^{235}U , способный инициировать самоподдерживающуюся цепную реакцию деления, сопровождающуюся генерацией избыточных нейтронов, которые можно использовать для наработки вторичного ядерного топлива в реакциях захвата нейтронов воспроизводящими изотопами. Наличие в топливе тепловых энергетических реакторов большого количества воспроизводящего изотопа ^{238}U (95–97%) позволяет осуществлять частичное воспроизводство ядерного топлива.

Применяются следующие виды ядерного топлива:

- 1) чистые металлы, сплавы металлов, интерметаллические соединения;
- 2) керамика (оксиды, карбиды, нитриды);
- 3) металлокерамика (керметы-частицы металлического топлива диспергированы в керамической матрице);
- 4) дисперсное топливо (микрочастицы топлива в защитной оболочке диспергированы в инертной, например графитовой, матрице).

Основной конструкционной формой топлива в ядерном реакторе является тепловыделяющий элемент (ТВЭЛ). Он состоит из активной части, в которой содержатся топливные и воспроизводящие ЯМ, и наружной герметической оболочки. Обычно оболочка изготавливается из металла (нержавеющие стали, циркониевые сплавы), а в шаровых ТВЭЛАх ВТГР топливные микрочастицы покрываются слоями карбида кремния и пиролитического углерода.

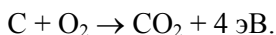
Топливная загрузка реактора размещается в большом количестве ТВЭЛОВ. Типичные размеры стержневых, наиболее распространенных ТВЭЛОВ: 5–10 мм в диаметре, 2,5–6 м в длину, т.е. $h/d \sim 500$. Типичное количество ТВЭЛОВ в реакторе: ВВЭР-440 содержит примерно 44 000 ТВЭЛОВ, ВВЭР-1000 – 48 000 ТВЭЛОВ, РБМК-1000 – 61 000 ТВЭЛОВ. ТВЭЛЫ объединяются в тепловыделяющие сборки (ТВС): от нескольких штук до нескольких сотен ТВЭЛОВ в одной ТВС. В ТВС ТВЭЛЫ жестко дистанционируются, создаются условия для надежного отвода тепла от ТВЭЛОВ и для компенсации температурного расширения их материалов.

Комплект всех ТВС, размещенных в реакторе, образует активную зону, в которой происходит управляемая цепная реакция деления ядер нейтронами, сопровождающаяся преобразованием ядерной энергии в тепловую. Эта тепловая энергия отводится теплоносителем для дальнейшего преобразования в электрическую. Получается, что активная зона ядерного реактора играет ту же роль, что и обычный тепловой котел, в котором сжигается органическое топливо. Эта аналогия и позволяет использовать привычные термины «топливо», «сжигание», «выгорание», хотя никакого горения или сжигания в традиционном смысле в ядерном реакторе не происходит.

Имеются существенные различия между процессами выделения тепловой энергии при сжигании органического и ядерного топлива.

1. Значительно более высокая калорийность ядерного топлива.

При сгорании одного атома углерода (окисление его кислородом) выделяется примерно 4 эВ энергии, т.е.



При делении ядра ^{235}U нейтронами выделяется примерно 200 МэВ энергии, т.е.



С учетом разных атомных масс урана и углерода (235:12) энерговыделение реакции деления превышает энерговыделение реакции сжигания углерода (на единицу массы) примерно в $2,5 \cdot 10^6$ раз. Это различие отражает тот факт, что внутриядерная энергия существенно выше энергии химических процессов. Высокая калорийность ядерного топлива позволяет существенно сократить массу и объем топлива, требующегося для производства энергии. Как следствие, сокращаются затраты на транспортировку и хранение топлива, что создает новый важный фактор: независимость места размещения АЭС от районов добычи и изготовления ядерного топлива. Это свойство ядерного топлива позволяет исправить «несправедливость» природы, выражающуюся в крайне неравномерном географическом распределении органических и ядерных энергоресурсов.

2. Невозможность полного «сжигания» всех делящихся нуклидов за однократное облучение.

В течение всего периода работы реактора на мощности, в его активной зоне необходимо всегда иметь критическую массу топлива. Поэтому за один период работы реактора можно сжечь только ту часть топлива, которая превышает критическую массу и обеспечивает надкритичность, или запас реактивности, необходимый для компенсации эффектов, связанных с выгоранием делящихся изотопов и накоплением продуктов деления (ПД).

Обычно выгорание ядерного топлива измеряется либо в количестве накопленных ПД, отнесенного к массе топлива (например, 10% выгорания означает, что 10% топлива сгорело и превратилось в ПД), либо в количестве выделенной тепловой энергии, тоже отнесенного к массе топлива (МВт·сут/т). Можно показать, что 1% выгорания примерно эквивалентен энерговыработке 10 ГВт·сут/т.

Действительно, одна тонна урана содержит примерно $2,55 \cdot 10^{27}$ ядер. Если все эти ядра разделятся с выделением 200 МэВ при каждом делении, то, во-первых, исчезнет одна тонна урана, полностью превратившись в ПД и, во-вторых, будет произведена энергия $E = 2,55 \cdot 10^{27} \times 200 \text{ МэВ} = 5,1 \cdot 10^{29} \text{ МэВ}$. Известно, что $1 \text{ эВ} = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ Дж} = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ Вт·с}$. Тогда выделившуюся энергию можно выразить в более удобных для нас единицах: $E = 8,2 \cdot 10^{16} \text{ Вт·с} = 8,2 \cdot 10^{10} \text{ МВт·с} = 0,95 \cdot 10^6 \text{ МВт·сут} \approx 10^3 \text{ ГВт·сут}$. Следовательно, 100% выгорание уранового топлива сопровождается удельным энерговыделением $\sim 10^3 \text{ ГВт·сут/т}$, а 1% выгорания – соответственно $\sim 10 \text{ ГВт·сут/т}$.

Типичные значения выгорания: для тяжеловодных реакторов типа CANDU – 10–12 ГВт·сут/т (или 1–1,2%); для легководных реакторов типа ВВЭР, PWR, BWR – 30–40 ГВт·сут/т (или 3–4%); для быстрых реакторов типа LMFBR – до 100 ГВт·сут/т (или до 10%).

После исчерпания запаса реактивности, необходимо заменить ОЯТ на свежее топливо. Но ОЯТ содержит большое количество ценных делящихся и воспроизводящих изотопов. Одна тонна ОЯТ с реактора ВВЭР-440 содержит, кроме 30 кг ПД, около 950 кг ^{238}U , 12 кг ^{235}U и 6,5 кг делящихся изотопов плутония (^{239}Pu и ^{241}Pu). Специальные технологии и технические средства создаются для

транспортировки и переработки ОЯТ, для выделения этих изотопов. Таким образом, можно сформулировать еще одну особенность ЯТ, а именно:

3. Возможность повторного использования (рецикла) делящихся и воспроизводящих изотопов.

Рецикл делящихся и воспроизводящих изотопов может снизить потребность в природном уране и в мощностях по его обогащению.

4. Возможность воспроизводства делящихся нуклидов.

Воспроизводство делящихся нуклидов осуществляется в любом ядерном реакторе, содержащем наряду с делящимися нуклидами воспроизводящие изотопы ^{238}U или ^{232}Th . При захвате нейтронов изотопом ^{238}U образуется делящийся нуклид ^{239}Pu , а при захвате нейтронов ^{232}Th образуется делящийся нуклид ^{233}U . Общепринятой характеристикой воспроизводства топлива является отношение скорости накопления вторичного ядерного топлива к скорости сгорания первичного ядерного топлива. Это отношение называют коэффициентом воспроизводства (КВ). В зависимости от его величины происходит частичное ($\text{КВ} < 1$), полное ($\text{КВ} = 1$) или расширенное ($\text{КВ} > 1$) воспроизводство ядерного топлива.

Накопление вторичного топлива приводит к замедлению спада реактивности, к продлению срока работы реактора на мощности и к дополнительному энергоснабжению, связанному с делением вторичного топлива. В установившемся режиме эксплуатации легководного реактора, когда в его активной зоне находятся и свежие, и частично выгоревшие ТВС, суммарное тепловыделение на 60% связано с делением ^{235}U и на 40% с делением ^{239}Pu .

В силу ряда нейтронно-физических особенностей, наилучшие условия для расширенного воспроизводства топлива реализуются в быстрых реакторах-размножителях, работающих на смешанном уран-плутониевом топливе. В быстрых реакторах плутоний может быть накоплен в количестве, достаточном не только для удовлетворения топливной потребности самого реактора-производителя, но и для создания начальной топливной загрузки вновь строящихся реакторов. Если имеются большие запасы дешевого урана или нет стимулов для интенсивного развития ядерной энергетики, то быстрые реакторы могут работать в режиме самообеспечения топливом ($\text{КВ} \sim 1$).

Аналогична ситуация и с уран-ториевым топливом. Хорошие нейтронно-физические свойства делящегося нуклида ^{233}U и большие запасы природного тория вызывают неизменный интерес к развитию реакторов на уран-ториевом топливе. Но технология изготовления и переработки этого топлива имеет ряд специфических трудностей и до сих пор не развита в промышленном масштабе.

5. «Сжигание» ядерного топлива не требует окислителя.

Сжигание органического топлива на обычных ТЭС требует примерно 3-кратного по массе количества кислорода, забираемого из воздуха, и сопровождается непрерывным выбросом в атмосферу продуктов сгорания (дым и зола). Сжигание ядерного топлива вообще не требует окислителя, а радиоактивные ПД и ОЯТ, которые могут рассматриваться как РАО, длительное время сохраняются в твэлах и ТВС реактора и удаляются в хорошо защищенные хранилища после соответствующей обработки.

Оценим потребности в топливе угольной ТЭС и АЭС одинаковой электрической мощности, например 1 ГВт. Известно, что при сжигании одного атома углерода выделяется 4 эВ энергии ($1 \text{ эВ} = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ Вт} \cdot \text{с}$, или $1 \text{ Вт} \cdot \text{с} = 6,25 \cdot 10^{18} \text{ эВ}$).

Тогда суточная энерговыработка электростанций составит: $1 \text{ ГВт(э)} \cdot \text{сут.} = 4 \text{ ГВт(т)} \cdot \text{сут.}$ (при $\eta=25\%$) $= 4 \cdot 10^9 \text{ Вт} \cdot 24 \cdot 3600 = 3,5 \cdot 10^{14} \text{ Вт} \cdot \text{с} = 2,2 \cdot 10^{33} \text{ эВ}$.

Количество ядер углерода и молекул кислорода, сжигаемых при этом, составит $2,2 \cdot 10^{33} \text{ эВ} / 4 \text{ эВ} = 5,5 \cdot 10^{32}$ ядер углерода и столько же молекул кислорода.

Масса углерода $= (5,5 \cdot 10^{32} / 6 \cdot 10^{23}) \cdot 0,012 \approx 10^7 \text{ кг} \approx 10^4 \text{ т}$, а это 2–3 железнодорожных состава (60 вагонов по 60 т) в день.

Масса кислорода $= (5,5 \cdot 10^{32} / 6 \cdot 10^{23}) \cdot 0,032 \approx 2,5 \cdot 10^4 \text{ т}$. Такое количество кислорода производится в день лесом площадью 2000 км^2 (площадь круга с радиусом $\sim 25 \text{ км}$).

Если же использовать энергию деления ^{235}U , то для получения $2,2 \cdot 10^{33} \text{ эВ}$ энергии потребуется $2,2 \cdot 10^{33} \text{ эВ} / 200 \text{ МэВ} \approx 10^{25}$ ядер ^{235}U , или масса $^{235}\text{U} = (10^{25} / 6 \cdot 10^{23}) \cdot 0,235 \approx 4 \text{ кг } ^{235}\text{U}$.

Табл. 1 содержит данные по потреблению топлива и накоплению отходов на угольной ТЭС мощностью 1 ГВт(э) и на АЭС с реактором ВВЭР-1000, т.е. при одинаковой мощности.

Потребление топлива и накопление отходов на электростанциях

Электростанция	Расход
ТЭС	Уголь – $2,3 \cdot 10^6$ т/год Кислород – $6,2 \cdot 10^6$ т/год
АЭС	^{235}U – 1,0 т/год
	Отходы
ТЭС	CO_2 – $8,5 \cdot 10^6$ т/год Зола – $2,3 \cdot 10^5$ т/год Отходы сбрасываются в атмосферу
АЭС	Радиоактивные отходы – 1,0 т/год Облученное топливо – 35–40 т/год Отходы находятся в твэлах и ТВС

Известный Киотский протокол о глобальном потеплении климата Земли предлагает ввести экологические ограничения на выброс CO_2 в атмосферу угольными электростанциями и установить экономические санкции за превышение этих ограничений на уровне ~ 60 долларов (или ~ 40 евро) за тонну углекислого газа. Можно оценить масштаб этих штрафов, исходя из масштабов угольной электроэнергетики.

6. Накопление радиоактивных ПД. Остаточное тепловыделение в остановленном реакторе. Радиоактивность конструкционных материалов и теплоносителя.

При делении ядерного топлива образуются ПД, представляющие собой изотопы с массовыми числами от 72 до 161. Акт деления, как правило, несимметричен, т.е. вместо образования пары осколков с примерно равными массами ядер в действительности образуются изотопы с соотношением масс 2:3, например 95:140. Общий вид зависимости выхода ПД для основных делящихся нуклидов и для разных энергий нейтронов примерно одинаков и имеет форму симметричной двугорбой кривой (рис. 1). Темп накопления ПД в ядерной энергетике составляет примерно 1 т/ГВт(э)-год.

ПД включают примерно 200 радиоактивных изотопов 36 элементов, а также дочерние изотопы их радиоактивного распада. Периоды полураспада этих радионуклидов покрывают очень широкий диапазон: от 10^{-3} с до миллионов лет. В зависимости от длительно-

сти периода полураспада различают короткоживущие (КрПД), среднеживущие (СПД) и долгоживущие (ДПД) радионуклиды. Основной тип распада ПД это β -распад. Каждый радиоактивный ПД является начальным изотопом цепочки 4–5 последовательных β -распадов, заканчивающейся стабильным изотопом.

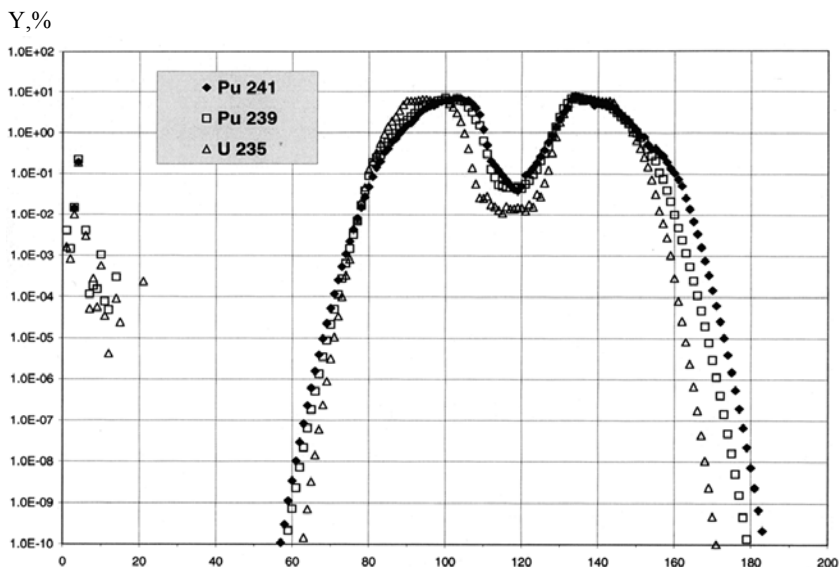


Рис. 1. Зависимость выхода ПД от их атомной массы A

После извлечения из реактора ОЯТ выдерживается в течение 3–10 лет. За это время состав ПД существенно меняется в результате распада КрПД. Например, после 150 суток выдержки остается примерно 130 изотопов 34 элементов, а изотопный и элементный состав ПД можно охарактеризовать следующим образом. Будем считать стабильными изотопы с периодом полураспада $T_{1/2}$ более 10^{10} лет, КрПД – изотопы с периодом полураспада менее 1 года, СПД – изотопы с периодом полураспада $1 \text{ год} < T_{1/2} < 87 \text{ лет}$ (^{151}Sm), а ДПД – изотопы с периодом полураспада более 65000 лет (^{79}Se). В таких предположениях имеем следующий изотопный состав ПД: стабильные изотопы – 85 вес. %; КрПД – 1 вес. %; СПД – 6 вес. %, ДПД – 9 вес. %.

ДПД – 8 вес. %. Для оценки элементного состава ПД разобьем их на 4 группы: 1) ПД, содержащие только стабильные изотопы; 2) ПД, содержащие только стабильные изотопы и КрПД; 3) ПД, содержащие только стабильные изотопы, КрПД и СПД; 4) ПД, содержащие ДПД. Тогда эти группы распределятся так: группа 1 (стабильные ПД) – 51 вес. %; группа 2 (стабильные и КрПД) – 17 вес. %; группа 3 (стабильные, КрПД и СПД) – 7 вес. %; группа 4 (ДПД) – 25 вес. %.

Кроме ПД, в ОЯТ находятся трансурановые элементы, являющиеся источниками α и β -излучения. Особого внимания требуют младшие актиниды (МА): это изотопы ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm и ^{245}Cm . Их химические свойства схожи со свойствами редкоземельных ПД, и при химической переработке ОЯТ и отделении ПД, МА уходят вместе с ними. Образуется специальная категория отходов – отходы, содержащие трансурановые элементы. Часть МА являются делящимися или воспроизводящими изотопами. Поэтому, МА должны контролироваться для предотвращения распространения ЯМ.

Основными каналами накопления МА в ядерных реакторах являются следующие реакции:

- 1) $^{235}\text{U}(n,\gamma)^{236}\text{U}(n,\gamma)^{237}\text{Np}$;
- 2) $^{241}\text{Pu}(\beta, 14 \text{ лет})^{241}\text{Am}(n,\gamma)^{242\text{m}}\text{Am}(n,\gamma)^{243}\text{Am}(n,\gamma)^{244}\text{Cm}(n,\gamma)^{245}\text{Cm}$;
- 3) $^{242}\text{Pu}(n,\gamma)^{243}\text{Am}(n,\gamma)^{244}\text{Cm}(n,\gamma)^{245}\text{Cm}$.

Темп накопления МА приведен в табл. 2 для реакторов, загруженных традиционным урановым оксидным топливом (UOX) и смешанным уран-плутониевым оксидным (MOX) топливом.

Таблица 2

Темп накопления младших актинидов в ядерных реакторах

Изотоп	$T_{1/2}$, год	Накопление МА, кг/ГВт(э)·год	
		UOX	MOX
^{237}Np	$2,1 \cdot 10^6$	20,4	15,1
^{241}Am	432	1,3	6,0
^{243}Am	7380	2,5	21,8
^{244}Cm	18,1	0,9	15,6
^{245}Cm	8500	0,1	1,7
Всего:	–	25,2	60,2

Суммарная удельная активность ОЯТ после выдержки (100 суток) может быть охарактеризована следующими цифрами.

1. Тепловой реактор на природном уране для производства плутония.

Выгорание 0,3 ГВт·сут/т.

Суммарная β и γ -активность топлива – 0,1 МКи/т.

2. Тепловой энергетический реактор на низкообогащенном уране.

Выгорание 20 ГВт·сут/т.

Суммарная β и γ -активность топлива – 2,2 МКи/т.

3. Быстрый энергетический реактор на плутониевом топливе с обогащением 20%.

Выгорание 100 ГВт·сут/т.

Суммарная β и γ -активность топлива – 30 МКи/т.

Однако значительная часть β и γ -активности ОЯТ обусловлена короткоживущими изотопами. Поэтому активность ОЯТ быстро падает после его извлечения из реактора по закону Вэя–Вигнера:

$$A(t) \sim A(t_0) \cdot (t_0/t)^{-1,2};$$

где t – время после извлечения (часы). Уравнение справедливо для значений $t \leq 100$ дней.

Остаточное тепловыделение ОЯТ в активной зоне и в бассейне выдержки обусловлено процессами распада ПД и МА. Временное поведение остаточного тепловыделения примерно такое же, как и у суммарной активности, т.е. быстрое экспоненциальное спадение с выходом на плато, составляющее проценты от номинальной мощности реактора и обусловленное радиоактивным распадом ДПД и МА.

Наведенная радиоактивность стальных внутриреакторных конструкций определяется, главным образом, накоплением радиоактивных изотопов ^{63}Ni ($T_{1/2} = 100$ лет), ^{60}Co ($T_{1/2} = 5,3$ года) и ^{55}Fe ($T_{1/2} = 2,7$ года) при облучении элементов, входящих в состав стали. Суммарная активность стальных конструкций легководных реакторов составляет ~ 50 МКи (кипящий реактор типа BWR) и ~5 МКи (реактор с водой под давлением типа PWR) на момент остановки перед выводом из эксплуатации. Суммарная активность после

остановки реактора постепенно уменьшается и примерно через 20–30 лет выходит на плато (1 МКи для реакторов типа BWR и 0,1 МКи для реакторов типа PWR, примерно 2% от активности на момент останова).

Проблема наведенной радиоактивности металлоконструкций энергетических реакторов станет особенно актуальной по мере исчерпания ресурса работы существующих АЭС. Принятая оценка срока коммерческой эксплуатации АЭС составляет 30–40 лет. Поэтому ожидается массовое снятие АЭС с эксплуатации. По оценкам, к 2010 г. потребуются вывести из эксплуатации примерно 160 энергоблоков на АЭС, построенных в 1970-х годах.

Глава 2. КОНЦЕПЦИЯ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВНОГО ЦИКЛА

В процессе изготовления, использования и переработки ядерное топливо проходит ряд последовательных стадий, которые могут быть объединены в общее понятие ядерного топливного цикла (ЯТЦ).

Основные стадии ЯТЦ

1. Добыча урановой руды и извлечение из нее урана.
2. Изготовление ядерного топлива:
 - а) получение уранового концентрата в виде U_3O_8 (окта-оксид урана);
 - б) конверсия U_3O_8 в UF_6 (гексафторид урана);
 - в) обогащение урана изотопом ^{235}U ;
 - г) изготовление твэлов и ТВС.
3. Использование ядерного топлива в ядерных реакторах различного типа (промышленных, энергетических, исследовательских).
4. Временное хранение облученных ТВС (ОТВС) на АЭС.
Далее возможны два варианта: открытый ЯТЦ или замкнутый ЯТЦ. В случае открытого ЯТЦ:
 - 5а. Транспортировка и захоронение ОТВС в геологических формациях.В случае замкнутого ЯТЦ:
 - 5б. Транспортировка и химическая переработка ОТВС.

6. Выделение радиоактивных отходов (РАО), их переработка и захоронение.

7. Многократный возврат (рецикл) регенерированного урана и вторичного ядерного топлива на стадию изготовления твэлов и ТВС.

Существует две точки зрения на замыкание ЯТЦ:

1. Замыкание ЯТЦ нецелесообразно, поскольку оно предполагает химическую переработку ОЯТ, выделение, транспортировку и использование регенерированного урана и вторичных делящихся нуклидов для рефабрикации ядерного топлива. Тем самым замыкание ЯТЦ создает ряд сложных технологических и политических проблем:

а) возможность хищения расщепляющихся ЯМ террористическими группами для создания ядерных взрывных устройств;

б) сложность и опасность переработки ОЯТ;

в) сложность и опасность переработки и захоронения РАО.

Этой точки зрения придерживается правительство США. Решениями администраций президентов Форда и Картера в конце 1970-х годов переработка ОЯТ коммерческих АЭС в США запрещена, но научные исследования в этой области продолжаются, хотя и в ограниченном объеме. ОТВС рассматриваются как окончательная форма РАО, пригодная для захоронения в геологических формациях. Однако эти хранилища предполагается оборудовать средствами извлечения контейнеров ТВС для переработки на случай возможного изменения приоритетов в ядерной политике США.

2. Другая точка зрения рассматривает ОЯТ не как отходы, пригодные только для захоронения, а как ценный ЯМ, содержащий первичное и вторичное ядерное топливо, которое можно извлечь и многократно использовать для производства энергии. Развитие замкнутого ЯТЦ рассматривается как основной стратегический путь обеспечения национальных энергетических потребностей, т.е. для обеспечения национальной независимости в энергетических ресурсах.

Технологические проблемы переработки ОЯТ и захоронения РАО оцениваются как сложные и радиологически опасные, но вполне разрешимые на базе уже существующих методов и оборудования.

Признается возможность хищения и несанкционированного использования ЯМ в замкнутом ЯТЦ. Однако эта проблема также

может быть успешно решена с помощью национальных и международных систем контроля за нераспространением ЯМ.

Этой точки зрения придерживаются Франция, Япония, Россия. Яркий пример – Япония, страна, практически не имеющая собственных месторождений органического топлива и поэтому неспособная создать независимую энергетику на базе угля, газа или нефти. У Японии есть ряд существенных причин для неприятия ядерной энергетики вообще. Япония – это единственная страна мира, пострадавшая от ядерной бомбардировки. Япония – это густонаселенная страна, размещенная на сравнительно узкой территории, которая к тому же обладает повышенной сейсмичностью. Аварии Кыштымского или Чернобыльского типа в Японии способны затронуть почти всю страну. Тем не менее развитие ядерной энергетики, основанной на быстрых реакторах-размножителях с расширенным воспроизводством топлива в замкнутом ЯТЦ, открывает путь к энергетической независимости Японии, к ее топливному самообеспечению при очень ограниченных поставках естественного урана.

Перед США не стоят проблемы создания системы независимого энергообеспечения. В США имеются крупные месторождения органического топлива, имеются также и большие запасы природного урана. Ядерная энергетика США состоит из 104 энергоблоков суммарной электрической мощностью 100 ГВт (20% всей энергетики США). Вся ядерная энергетика мира в 1999 г. – это 430 энергоблоков мощностью 350 ГВт, – т.е. примерно четверть ядерной энергетики мира находится в США. Более 20 лет в США не строятся новые АЭС. Кроме того, большинство АЭС в США являются коммерческими предприятиями и находятся в частной собственности. Так что с точки зрения США нет ни экономических, ни политических стимулов к замыканию ЯТЦ, да это и опасно по отношению к режиму нераспространения ЯМ.

Ядерная энергетика Японии в 1999 г. – это 53 энергоблока суммарной мощностью 44 ГВт (35% всей энергетики Японии), она строит еще 4 энергоблока на 4,5 ГВт, а на стадии проектирования и получения лицензий находится еще 9 энергоблоков суммарной мощностью 11 ГВт. Так что Япония жизненно заинтересована в замыкании ЯТЦ для самообеспечения энергоресурсами.

Итак, существует три варианта ЯТЦ.

А. Открытый (разомкнутый) ЯТЦ

Его основные стадии:

1. Добыча урановой руды.
2. Производство окта-оксида урана U_3O_8 .
3. Конверсия U_3O_8 в UF_6 .
4. Обогащение UF_6 .
5. Изготовление ядерного топлива (ТВЭЛы и ТВС).
6. Использование ядерного топлива в ядерных реакторах.
7. Хранение ОЯТ в приреакторных хранилищах.
8. Окончательное захоронение ОЯТ в геологических формациях.

Б. Замкнутый ЯТЦ с рециклом выделенного урана

Его основные стадии:

1. Добыча урановой руды.
2. Производство окта-оксида урана U_3O_8 .
3. Конверсия U_3O_8 в UF_6 .
4. Обогащение UF_6 .
5. Изготовление ядерного топлива (ТВЭЛы и ТВС).
6. Использование ядерного топлива в ядерных реакторах.
7. Хранение ОЯТ в приреакторных хранилищах.
8. Переработка ОЯТ с выделением урана, плутония и РАО.
9. Возвращение выделенного урана на стадии конверсии и обогащения.
10. Размещение плутония в специальных хранилищах.
11. Окончательное захоронение РАО в геологических формациях.

В. Замкнутый ЯТЦ с рециклом выделенного урана и плутония

Его основные стадии:

1. Добыча урановой руды.
2. Производство окта-оксида урана U_3O_8 .
3. Конверсия U_3O_8 в UF_6 .
4. Обогащение UF_6 .
5. Изготовление ядерного топлива (ТВЭЛы и ТВС).
6. Использование ядерного топлива в ядерных реакторах.
7. Хранение ОЯТ в приреакторных хранилищах.
8. Переработка ОЯТ с выделением урана, плутония и РАО.

9. Возвращение выделенного урана и плутония на стадию изготовления смешанного уран-плутониевого оксидного топлива (МОХ-топлива).

10. Окончательное захоронение РАО в геологических формациях. На рис. 2 представлены схемы трех вариантов ЯТЦ.

В настоящее время только 7 государств могут перерабатывать ОЯТ: США, Великобритания, Франция, Россия, Китай (ядерные державы), Япония и Индия. Но США не перерабатывают ОЯТ коммерческих АЭС, а только хранят его до тех пор, пока не будет развита технология переработки, эффективная и безопасная с точки зрения нераспространения.

Ядерные технологии имеют дело с делящимися ЯМ, которые могут быть использованы в качестве заряда ядерного взрывного устройства. Поэтому одной из главных задач развития и эксплуатации ядерных технологий является контроль за ЯМ на всех стадиях ЯТЦ с целью недопущения их использования в незаконных целях.

Представляются возможными три пути переключения ЯМ с гражданского, главным образом, энергетического использования на применение в военных целях.

1. Насильственное хищение ЯМ в результате террористической атаки извне на ядерный объект или транспортное средство. Для предотвращения насильственного хищения ЯМ создаются системы их физической защиты. Физическая защита ядерных объектов включает следующие системы:

а) физических барьеров, препятствующих проникновению на территорию объекта и в помещения, где находятся ЯМ;

б) датчиков проникновения через внешний периметр ограждения объекта и через внутренние барьеры, препятствующие прохождению нарушителей к хранилищам ЯМ;

в) ТВ-наблюдения за зоной, прилегающей к внешнему периметру объекта, за внутренними помещениями в зоне размещения или использования ЯМ;

г) специальных средств, замедляющих продвижение нарушителей по территории объекта (выброс химических газов, быстро твердеющей полимерной пены);

д) вооруженной охраны для обнаружения, перехвата и задержания нарушителей.

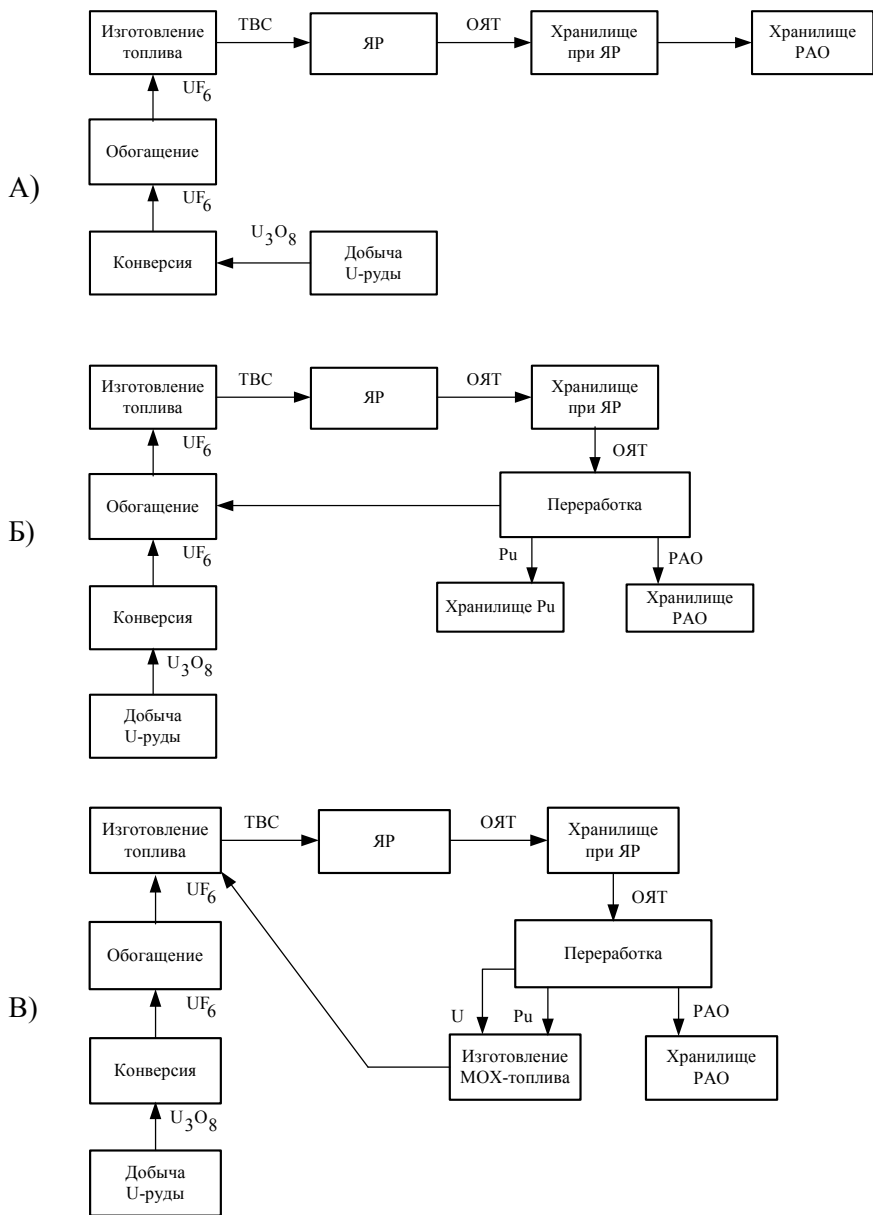


Рис. 2. Схемы открытого (А) и двух вариантов замкнутого (Б, В) ЯТЦ

2. Скрытое хищение ЯМ персоналом объекта, например постепенным изъятием небольших количеств ЯМ в течение длительного времени. Для предотвращения скрытого хищения ЯМ создаются системы учета и контроля ЯМ. Эти системы включают:

а) видеонадзор за ЯМ в виде учетных единиц хранения (контейнеры);

б) административные меры контроля за доступом в хранилища ЯМ (например, правило двух);

в) разбиение объекта на зоны материального баланса с системой датчиков, контролирующих перемещения ЯМ между этими зонами;

г) компьютеризированная система учета ЯМ с удаленными терминалами в ключевых точках зон материального баланса и с центральной ЭВМ, куда сходятся данные с терминалов и которая оснащена средствами защиты информации;

д) периодическая физическая инвентаризация ЯМ в учетных единицах хранения и в балк-форме; использование индикаторов попытки вскрытия для проверки целостности контейнеров; выборочный контроль содержимого контейнеров и ЯМ в балк-форме методами разрушающего и неразрушающего анализа.

3. Скрытое переключение ЯМ на военные цели, санкционированное национальным правительством. Для предотвращения переключения ЯМ, санкционированного государством, существует система международных договоров, контролирующих мирное использование ЯМ. Эта система включает:

а) Договор о нераспространении ядерного оружия (ДНЯО), вступивший в силу в 1970 г. и бессрочно продленный в 1995 г.; каждые 5 лет на конференциях участников обсуждается выполнение Договора;

б) региональные договоры о нераспространении ядерного оружия (договоры Тлателолко, Раротонга, система гарантий Евратома);

в) Комитет Цангера («Группа Ядерных Поставщиков»), контролирующая экспорт и импорт ЯМ, технологий и оборудования с точки зрения нераспространения ядерного оружия.

Основной механизм контроля на государственном уровне – это периодические инспекции ядерных объектов экспертами МАГАТЭ, которые осуществляют независимую проверку количества ЯМ на объектах, находящихся под юрисдикцией МАГАТЭ.

Рассмотрим основные факторы привлекательности ЯМ для хищения на различных стадиях ЯТЦ.

1. Количество и качество ЯМ; их сравнение с количеством и качеством материалов, необходимых для создания ядерных взрывных устройств.

Критмасса 100% ^{235}U – 50 кг.

Критмасса 100% ^{239}Pu – 15 кг.

Критмасса 100% ^{233}U – 17 кг.

Эти критмассы получены для металлической сферы без отражателя. Отражатель снижает критмассу примерно в 2 раза. Поэтому МАГАТЭ ввело специальную единицу измерения количества ЯМ - «значимое количество», Significant Quantity (SQ). Обнаружение хищения ЯМ в количестве 1 SQ является причиной для проведения специального расследования и, при необходимости, обращения в Совет Безопасности ООН для применения санкций. Величина SQ примерно в 2 раза ниже критмассы материала в виде металлической сферы без отражателя:

$$1 \text{ SQ } (^{239}\text{Pu}, ^{233}\text{U}) = 8 \text{ кг}; 1 \text{ SQ } (^{235}\text{U}) = 25 \text{ кг}.$$

Критмасса оксидов урана и плутония примерно в 1.5 раза выше критмассы металлов.

2. Простота хищения ЯМ, вероятность обнаружения хищений.

3. Простота превращения похищенного ЯМ в заряд ядерного взрывного устройства. Достаточна ли здесь механическая или химическая обработка? Или необходимо изотопное разделение?

Эти факторы определяют:

1) интервал времени, необходимый для создания ядерного взрывного устройства нарушителями и для принятия соответствующих контрмер службами безопасности;

2) объем материальных, промышленных и финансовых ресурсов, требующихся для производства ядерных взрывных устройств.

Все эти факторы должны учитываться при анализе и оценке различных стадий ЯТЦ и различных ядерных технологий с точки зрения их привлекательности для хищения ЯМ с целью создания ядерного взрывного устройства. Трудно дать количественную оценку стадий ЯТЦ и ядерных технологий по привлекательности для потенциальных похитителей ЯМ, но некоторые качественные оценки были сделаны экспертами США, которые и привели к мораторию на переработку ОЯТ в США. Рис. 3 дает качественную оценку привлекательности различных стадий ЯТЦ для хищения ЯМ.

Количество точек на соответствующих этапах ЯТЦ характеризует привлекательность этого этапа. Фактически, стадии ЯТЦ оценены по 4-балльной системе. Видно, что наиболее привлекательны этапы, связанные с обогащением урана, переработкой ОЯТ, выделением плутония, изготовлением смешанного уран-плутониевого топлива и повторным использованием его в реакторе.

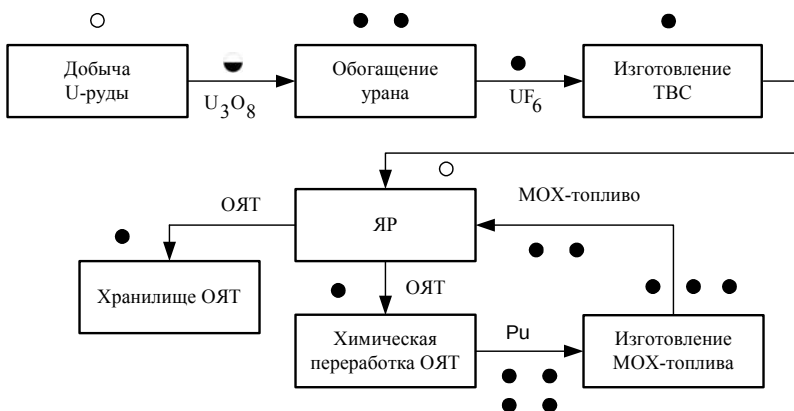


Рис. 3. Привлекательность стадий ЯТЦ с точки зрения возможности хищения ядерных материалов

Рассмотрим основные стадии ЯТЦ с точки зрения нераспространения ядерного оружия.

1. Добыча и первичная обработка урановой руды.

Уязвимость к краже (УК): для производства 25 кг оружейного урана надо около 5000 кг природного урана или 5000 т урановой руды. Трудно украсть незаметно такое большое количество урановой руды. Поэтому уязвимость низкая.

Уязвимость к переключению персоналом (УПП): урановые рудники и предприятия по первичной обработке урановой руды находятся вне гарантий МАГАТЭ. Поэтому уязвимость велика.

Риск распространения ядерного оружия (РР): низкий из-за невозможности использования природного урана в ядерном взрывном устройстве.

2. Перевод в гексафторид урана для обогащения.

УК: мала, как и при добыче урановой руды.

УПП: от низкой до высокой в зависимости от постановки предприятий под гарантии МАГАТЭ, т.е. Н/В(МАГАТЭ).

РР: низкий из-за невозможности использования природного урана в ядерном взрывном устройстве.

3. Обогащение урана изотопом ^{235}U .

УК: велика. Для создания ядерного взрывного устройства достаточно 25 кг оружейного урана (90–95% ^{235}U). С таким весом может справиться даже один человек.

УПП: зависит от постановки предприятий под гарантии МАГАТЭ.

РР: высокий. Группа ядерных поставщиков наложила неофициальное эмбарго на экспорт обогатительных технологий.

4. Изготовление ядерного топлива (ТВЭЛы, ТВС).

УК: низкая. Одна ТВС весит 300–500 кг. Потребуется специальный транспорт для перевозки даже одной ТВС.

УПП: зависит от постановки предприятий под гарантии МАГАТЭ.

РР: меняется от низкого до высокого в зависимости от обогащения топлива для различных типов ядерных реакторов.

5. Использование ядерного топлива в ядерных реакторах.

УК: низкая. Это связано с весом ТВС, ее радиоактивностью и размещением внутри корпуса ядерного реактора.

УПП: зависит от постановки АЭС или реактора под гарантии МАГАТЭ.

РР: меняется от низкого до высокого в зависимости от обогащения топлива и от наличия установок для переработки ОЯТ.

6. Хранилище ОЯТ.

УК: низкая. Это связано с весом, радиоактивностью и остаточным тепловыделением ТВС.

УПП: зависит от постановки хранилища под гарантии МАГАТЭ.

РР: меняется от низкого до высокого в зависимости от обогащения топлива и от наличия установок для переработки ОЯТ.

7. Переработка ОЯТ.

УК: высокая. Технология переработки ОЯТ имеет дело с сильно радиоактивным и тепловыделяющим материалом. Поэтому используется дистанционное оборудование, отделяющее персонал от ядерных материалов. Однако могут быть участки, где плутоний-

содержащие материалы более доступны для кражи. Например, баллоны с Pu-раствором (2,5 кг Pu-раствора, вес баллона – 14 кг).

УПП: зависит от постановки перерабатывающей установки под гарантии МАГАТЭ.

РР: высокий. На перерабатывающих установках может производиться плутоний: либо оружейного изотопного состава, либо энергетический плутоний несколько худшего изотопного состава, который тем не менее может быть использован в ядерных взрывных устройствах уменьшенной мощности. Группа ядерных поставщиков наложила неофициальное эмбарго на экспорт перерабатывающих технологий.

8. Захоронение радиоактивных отходов.

УК: низкая. Это связано с высокой радиоактивностью и тепловыделением РАО, с малым содержанием делящихся материалов.

УПП: низкая из-за малого содержания делящихся материалов.

РР: низкий. Это связано с высокой радиоактивностью и тепловыделением РАО, с малым содержанием делящихся материалов.

Опасность основных стадий ЯТЦ показана в табл. 3.

Таблица 3

Опасность стадий ЯТЦ

Стадия ЯТЦ	Уязвимость к краже	Уязвимость к переключению	Риск распространения
Добыча руды	Низкая	Высокая	Низкий
Конверсия в UF_6	Низкая	Н/В(МАГАТЭ)	Низкий
Обогащение	Высокая	Н/В(МАГАТЭ)	Высокий
Изготовление ТВС	Низкая	Н/В(МАГАТЭ)	Н/В(обогащение)
АЭС	Низкая	Н/В(МАГАТЭ)	Н/В(обогащение)
Хранение ОТВС	Низкая	Н/В(МАГАТЭ)	Н/В(обогащение)
Переработка ОЯТ	Высокая	Н/В(МАГАТЭ)	Высокий
Захоронение РАО	Низкая	Низкая	Низкий

Кроме различных стадий ЯТЦ, различные типы ядерных реакторов также обладают разной привлекательностью с точки зрения хищения ЯМ. Поскольку сопоставление различных типов реакторов трудно выразить в количественной форме, оно может быть

только качественным. Сравним две характеристики ядерных реакторов, влияющие на их привлекательность:

- 1) количество и качество загружаемого ядерного топлива;
- 2) количество и качество производимого ядерного топлива.

Начнем с реакторов, использующих урановое топливо высокого обогащения (90% ^{235}U и более).

1. Исследовательские реакторы. В ряде исследовательских реакторов до сих пор используется высокообогащенное урановое топливо (90% ^{235}U и более) в металлическом виде и в сплавах. Однако тепловая мощность таких реакторов не велика (несколько мегаватт). Поэтому количество ^{235}U в них не превышает 5–10 кг.

В соответствии с рекомендациями МАГАТЭ в настоящее время осуществляется программа перевода исследовательских реакторов на среднеобогащенное урановое топливо с содержанием ^{235}U не более 20%. Для справки: критмасса урана с обогащением 20% составляет 830 кг. Снижение обогащения топлива приводит к расширению активной зоны и увеличению количества ядерного топлива в реакторе, но масса ^{235}U при этом остается примерно той же или даже уменьшается за счет лучшей экономии нейтронов в активной зоне большего размера (меньше утечка нейтронов).

Вторичное топливо практически не производится на исследовательских реакторах из-за малого количества воспроизводящего материала и низких потоков нейтронов.

2. Высокотемпературные реакторы с газовым охлаждением (реакторы типа HTGR). В таких реакторах используется высокообогащенное дисперсное урановое топливо (93% ^{235}U) и торий в качестве воспроизводящего материала. Реакторы типа HTGR используют топливные микрочастицы (500-800 мкм) в 2- или 3-слойных оболочках из пиролитического углерода и карбида кремния. Эти микрочастицы диспергируются в графитовой матрице, которая служит основой для последующей фабрикации шаровых или стержневых твэлов.

Микрочастицы типа TRISO: топливный сердечник покрыт 3-слойной оболочкой (пиролитический углерод (PyC), карбид кремния, PyC).

Микрочастицы типа BISO: сердечник из воспроизводящего материала покрыт 2-слойной оболочкой из PyC с разной плотностью.

Проект реактора типа HTGR мощностью 770 МВт(э) предполагает, что начальная загрузка реактора состоит из 8,1 т ^{232}Th в виде

ThO₂ в BISO-частицах и 0,7 т ²³⁵U в виде UC в TRISO-частицах. В конце цикла облучения в реакторе находится: 7,5 т ²³²Th, 40 кг ²³⁵U и около 180 кг ²³³U (вторичного топлива). В пересчете на 1 ГВт(э)·год реакторы типа HTGR способны производить ~ 200 кг ²³³U/ГВт(э)·год.

3. Легководные реакторы.

3а. Реакторы типа ВВЭР. В энергетических легководных реакторах используется низкообогащенное (3–5% ²³⁵U) урановое оксидное топливо. Начальная загрузка реактора мощностью 1 ГВт(э) составляет примерно 100 т UO₂. Нарботка вторичного ядерного топлива составляет примерно 200 кг плутония на ГВт(э)·год.

Однако изотопный состав плутония далек от оптимального с точки зрения создания ядерного взрывного устройства. Типичный оружейный плутоний содержит в основном делящийся изотоп ²³⁹Pu и не более 7% ²⁴⁰Pu. Типичный плутоний, выделяемый из ОЯТ энергетического легководного реактора, т.е. энергетический или реакторный плутоний, содержит примерно 60% ²³⁹Pu, 25% ²⁴⁰Pu, 11% ²⁴¹Pu и 4% ²⁴²Pu, т.е. около 71% делящихся нуклидов (60% ²³⁹Pu + 11% ²⁴¹Pu). Критмасса реакторного плутония в металлическом виде примерно в 1,5 раза выше, чем у оружейного (23 кг против 15 кг). Но не это главное. Реакторный плутоний содержит примерно в 4 раза больше ²⁴⁰Pu, чем оружейный, а это может резко (примерно в 30 раз) снизить мощность ядерного взрывного устройства. Дело в том, что ²⁴⁰Pu является сильным источником нейтронов спонтанного деления. Эти нейтроны могут стать причиной преждевременной инициации цепной реакции (эффект предетонации) при срабатывании взрывного устройства. В результате мощность ядерного взрыва может оказаться на уровне 3% от номинальной мощности устройства. По оценкам, бомба с номинальной мощностью 20 кт (как в Хиросиме), в случае ее изготовления из реакторного плутония, вероятнее всего даст взрыв мощностью ~600 т ТНТ (около 3% номинала). Но и это достаточно большая мощность. Как известно, заряды обычной взрывчатки типа ТНТ, взорванные в Москве и приведшие к человеческим жертвам, не превышали 100 кг.

3б. Реакторы типа РБМК. Иногда эти реакторы также называют реакторами «Чернобыльского» типа. В реакторах типа РБМК (Реактор Большой Мощности, Канальный) в качестве замедлителя

используется графит, а в качестве теплоносителя – легкая вода. Вода циркулирует по вертикальным технологическим каналам, пронизывающим графитовую кладку активной зоны (диаметр кладки ~ 12 м, высота ~ 7 м). Внутри канала устанавливается тепловыделяющая кассета, представляющая собой две последовательно соединенные ТВС длиной 3,5 м каждая.

В реакторах типа РБМК используется низкообогащенное (1,8–2% ^{235}U) урановое оксидное топливо. Начальная загрузка реактора мощностью 1 ГВт(э) составляет примерно 150–180 т UO_2 . Нарботка вторичного ядерного топлива составляет примерно 250 кг плутония на ГВт(э)-год. Изотопный состав плутония, выделяемого из ОЯТ реакторов типа РБМК хуже, чем у ВВЭР, и по содержанию делящихся изотопов, и по содержанию ^{240}Pu . Типичный изотопный состав плутония из ОЯТ-РБМК: 45% ^{239}Pu , 36% ^{240}Pu , 11% ^{241}Pu и 8% ^{242}Pu , т.е. около 56% делящихся нуклидов.

Особая опасность реакторов типа РБМК с точки зрения нераспространения обусловлена возможностью непрерывных перегрузок топлива без остановки реакторов. Поэтому длительность облучения топлива может быть сделана достаточно короткой, чтобы получить плутоний с хорошим изотопным составом, пригодным для создания эффективного ядерного взрывного устройства.

4. Тяжеловодные реакторы типа CANDU. Реакторы типа CANDU используют природный уран в качестве топлива. Начальная загрузка реактора мощностью 1 ГВт(э) составляет примерно 100 т UO_2 . Ежегодная выгрузка плутония – 350 кг/ГВт(э)-год.

Изотопный состав плутония из реакторов типа CANDU близок к изотопному составу плутония из реакторов типа ВВЭР: примерно 66% ^{239}Pu , 27% ^{240}Pu , 5% ^{241}Pu и 2% ^{242}Pu , т.е. те же 71% делящихся нуклидов (66% ^{239}Pu + 5% ^{241}Pu) и почти такое же содержание ^{240}Pu (25% в ВВЭР и 27% в CANDU).

Как и в реакторах типа РБМК, важной особенностью тяжеловодных реакторов является режим непрерывных перегрузок топлива, т.е. изотопный состав накапливаемого плутония может быть получен сколь угодно близким к оружейному простым подбором длительности облучения. К тому же, ежедневные перегрузки топлива «на ходу», без остановки реактора, ставят дополнительные трудности перед инспекционными органами, контролирующими использование первичного и накопление вторичного ядерного топлива.

Кстати, плутоний для первых атомных бомб, взорванных в июле 1945 г. в США и в августе 1945 г. над Японией, был накоплен в тяжеловодных реакторах примерно за полгода.

5. Быстрые реакторы-размножители. В настоящее время быстрые реакторы-размножители используют урановое топливо, а не смешанное уран-плутониевое топливо. Это среднеобогащенный уран (15-25% ^{235}U) в виде диоксида UO_2 . Загрузка реактора мощностью 1 ГВт(э) составляет 10–15 т, т.е. в реакторе находится 2–3 т делящегося изотопа. Ежегодная наработка плутония составляет около 1500 кг/(ГВт(э)·год) в открытом топливном цикле. При замыкании топливного цикла около 80% накопленного плутония будет рециклировано, и «чистая» наработка плутония составит примерно 250 кг/(ГВт(э)·год).

Быстрые реакторы допускают глубокое выгорание топлива на уровне 80–100 ГВт·сут/т, что примерно в 3 раза больше, чем в тепловых легководных реакторах. Поэтому плутоний, накопленный в активной зоне быстрого реактора, содержит большую долю высших изотопов и мало пригоден для создания ядерного взрывного устройства оружейного класса.

В табл. 4 представлены данные по количеству и качеству загружаемого и производимого топлива в ядерных реакторах различных типов.

Таблица 4

Загружаемое и производимое топливо ядерных реакторов

Тип реактора	Загружаемое топливо	Производимое топливо, кг/ГВт·год	Примечание
ИРТ	5–10 кг (90% ^{235}U)	–	Малая мощность
HTGR-770	8,1 т ThO_2 0,7 т UC (93% ^{235}U)	200	–
ВВЭР-1000	100 т UO_2 (3–5% ^{235}U)	200 (25% ^{240}Pu)	–
РБМК-1000	150–180 т UO_2 (1,8–2% ^{235}U)	250 (36% ^{240}Pu)	Непрерывные Перегрузки
CANDU-600	100 т UO_2 (0,7% ^{235}U)	350 (27% ^{240}Pu)	Непрерывные перегрузки
LMFBR-1000	10–15 т UO_2 (15–25% ^{235}U)	1500–ОТЦ 250–ЗТЦ	–

Основные предприятия ЯТЦ России

А. Производственное объединение «Маяк» (ранее Челябинск-40; 65, сейчас – Озерск)

ПО «Маяк» включает следующие производства.

1. Ядерные реакторы для производства оружейных материалов: четыре уран-графитовых и один тяжеловодный реактор для производства оружейного плутония, два уран-графитовых реактора для производства трития; два легководных исследовательских реактора. Сейчас все эти реакторы остановлены.
2. Завод РТ-1 по радиохимической переработке ОЯТ.
3. Завод по производству оружейных делящихся ЯМ: металлический уран и плутоний, ядерные боезаряды.
4. Завод по производству гранулированного МОХ-топлива.
5. Завод по стеклованию радиоактивных отходов.
6. Завод по производству источников нейтронного и гамма-излучения.
7. Завод по производству контрольно-измерительного оборудования для предприятий ядерной энергетики.

Б. Сибирский химический комбинат (ранее Томск-7, сейчас – Северск)

СХК включает:

1. Пять уран-графитовых реакторов для производства оружейного плутония, для тепло- и энергоснабжения заводов и города. Сейчас три реактора остановлены, два работают в энергетическом режиме.
2. Завод по производству окта-оксида урана U_3O_8 и его конверсии в гексафторид урана UF_6 .
3. Обоганительный завод по производству гексафторида урана с высоким содержанием ^{235}U .
4. Завод по радиохимической переработке ОЯТ.
5. Завод по производству металлического урана и плутония.

В. Горно-химический комбинат (ранее Красноярск-26, сейчас – Железногорск)

ГХК включает следующие производства:

1. Три подземных уран-графитовых реактора для производства оружейного плутония. В настоящее время два реактора остановлены, один работает в энергетическом режиме.
2. Завод по переработке ОЯТ (разделение урана, плутония и ПД).
3. Строящийся крупный завод РТ-2 по переработке ОЯТ. В 1985 г. сдана первая очередь – хранилище облученных ТВС.

Глава 3. ДОБЫЧА И ПЕРВИЧНАЯ ОБРАБОТКА ПРИРОДНЫХ ЯМ

Для начала – некоторые исторические данные, связанные с открытием природных ЯМ – урана и тория.

Считается, что уран был открыт в 1789 г. немецким ученым Клапротом, который обнаружил черный порошок (урановую смолку) в железо-цинковых рудах, добытых в рудниках г. Якимова (Чехия). Клапрот принял этот порошок за новый химический элемент и назвал его ураном в честь только что открытой планеты Уран. В 1841 г. француз Пелиго впервые получил металлический уран и доказал, что вещество, обнаруженное Клапротом, является оксидом урана. Пелиго оценил атомную массу урана в 120 а.е.м. В 1869 г. Д.И. Менделеев установил более точную атомную массу урана в 240 а.е.м. и расположил уран в конце своей периодической таблицы. Менделеев предрекал большое будущее урану, призывал к тщательному изучению его соединений и отмечал выдающуюся роль урана в своем открытии периодического изменения химических свойств элементов.

Шведский ученый Берцелиус открыл торий в 1828 г. и назвал его в честь скандинавского бога войны Тора. Торий в чисто ториевых рудах на 100% состоит из изотопа ^{232}Th . Торий α -активен, его период полураспада – $1,4 \cdot 10^{10}$ лет (примерно в 3 раза дольше, чем у ^{238}U). По геологическим оценкам запасы тория в недрах земли в 3–5 раз превышают запасы урана. Распространенность урана в зем-

ной коре составляет, по разным оценкам, от 2 до 4 ppm, а тория – 12–15 ppm.

Вследствие высокой химической активности урана и тория, они не встречаются в природе в чистом металлическом виде, а только в виде химических соединений. Всего обнаружено около 200 урановых и ториевых минералов. Имеются также совместные месторождения уран-ториевых руд. Интересно, что в уран-ториевых рудах, наряду с основным изотопом ^{232}Th , может содержаться другой изотоп тория – ^{230}Th (ионий) с периодом полураспада $7,5 \cdot 10^4$ лет. Ионий является продуктом α -распада ^{234}U , содержащегося в природном уране (0,0054%, $T_{1/2} = 2,5 \cdot 10^5$ лет). Чем меньше доля тория в уран-ториевом месторождении, тем больше содержание ^{230}Th в тории (до 10%). При облучении смеси ^{232}Th - ^{230}Th нейтронами ионий может стать источником накопления радиоизотопа ^{232}U с периодом полураспада 69 лет. ^{232}U является начальным изотопом цепочки радиоактивных распадов, сопровождающихся интенсивным испусканием жесткого гамма-излучения. Это излучение может обеспечить радиационную защиту вторичного ядерного топлива - изотопа ^{233}U . Разделить смесь ^{233}U - ^{232}U химическим путем невозможно, разделить изотопно – значительно труднее, чем смесь ^{235}U - ^{238}U из-за в 3 раза меньшей разности атомных масс. Эти трудности могут оказаться практически непреодолимыми для потенциальных похитителей ЯМ.

Из-за высокой химической активности урана и высокой растворимости урановых соединений в воде, что ведет к активному переносу урана, на земном шаре известно сравнительно немного мест, где обнаружены богатые залежи урановых руд. По оценкам геологов, в водах морей и океанов находится около $4 \cdot 10^9$ т урана (в среднем $3,3 \text{ мг/м}^3$, или примерно 0,003 ppm). Для сравнения, общие запасы урана в земной коре оцениваются в 10^{14} т при среднем содержании 2–4 ppm.

Урановые руды различаются по содержанию в них урана:

очень богатые руды – больше 1% урана;

богатые руды: 0,5–1% урана;

средние руды: 0,25–0,5% урана;

рядовые руды: 0,09–0,25% урана;

бедные руды: менее 0,09% урана.

В среднем, добываются руды с содержанием около 0,1% урана, т.е., в основном, бедные и рядовые руды.

Запасы урана оцениваются по двум стоимостным категориям:

дешевый уран – менее 80 долларов за 1 кг U_3O_8 ;

дорогой уран – более 80 долларов за 1 кг U_3O_8 .

Пороговая цифра (80 дол./кг U_3O_8) разграничивает области конкурентоспособности АЭС по сравнению с угольными ТЭС. Если добываемый уран дешевле 80 дол./кг U_3O_8 , то АЭС обеспечивают более дешевую электроэнергию, чем угольные ТЭС, и наоборот.

Ресурсы урана классифицируются по 4 категориям, характеризующимся степенью разведанности запасов:

- 1) достоверные запасы, т.е. разведанные месторождения;
- 2) вероятные запасы на флангах разведанных месторождений;
- 3) возможные запасы, получающиеся из геологических прогнозов;
- 4) предполагаемые запасы на породах схожих с уран-содержащими.

Ясно, что наибольшего доверия заслуживают первые две категории запасов. В табл. 5 и 6 приведены данные по мировым запасам урана (по состоянию на 2005 г.) и по добыче урана в 2002–2005 гг. Из этих таблиц видно, что объем достоверных запасов урана составляет $3,3 \cdot 10^6$ т, а вероятных – $1,4 \cdot 10^6$ т, т.е. всего около $4,7 \cdot 10^6$ т, из которых $3,8 \cdot 10^6$ т «дешевого» урана и $0,9 \cdot 10^6$ т «дорогого». Годовая потребность мировой ядерной энергетики в природном уране составляет около $6,7 \cdot 10^4$ т. Из этого следует, что запасов дешевого урана хватит примерно на 57 лет, а дорогого – еще на 13 лет, т.е. в сумме – примерно на 70 лет.

Около 90% достоверных и вероятных запасов урана находятся в 10 странах, расположенных в Америке (США, Канада, Бразилия), Австралии, Африке (ЮАР, Намибия, Нигер) и Евразии (Россия, Казахстан, Узбекистан). Аналогичная ситуация с добычей урана. Две страны (Канада и Австралия) производят более 50% урана в мире. Годовая добыча урана (40–41 тыс. т.) не покрывает потребности мировой ядерной энергетики (67 тыс. т). Дефицит природного урана покрывается за счет ранее добытой руды.

Таблица 5

Мировые запасы урана, тыс. тонн (на 2005 г.)

№ п/п	Страна	Достоверные		Вероятные	
		< 80 дол./кг	< 130 дол./кг	< 80 дол./кг	< 130 дол./кг
1	Австралия	714	747	360	396
2	Казахстан	378	514	228	302
3	Канада	345	345	99	99
4	Нигер	180	180	45	45
5	ЮАР	177	256	72	85
6	Бразилия	158	158	74	121
7	Намибия	151	183	86	100
8	Россия	132	132	41	41
9	США	102	342	—	—
10	Узбекистан	60	77	31	39
Σ(1–10)		2397 из 2643 (91%)	2934 из 3297 (89%)	1036 из 1161 (89%)	1228 из 1446 (85%)

Таблица 6

Производство урана, тыс. тонн

№ п/п	Страна	2002	2003	2004	2005
1	Канада	11,6	10,5	11,6	11,8
2	Австралия	6,9	7,6	9,0	9,0
3	Нигер	3,1	3,2	3,2	3,4
4	Россия	2,9	3,1	3,3	3,3
5	Казахстан	2,8	3,3	3,7	4,2
6	Намибия	2,3	2,0	3,0	3,0
7	Узбекистан	1,9	1,6	2,1	2,3
Σ(1–7)		31,5 из 36,0 (88%)	31,3 из 35,5 (88%)	35,9 из 40,3 (89%)	37,0 из 41,3 (90%)
Канада и Австралия		18,5 (51%)	18,1 (51%)	20,6 (51%)	20,8 (51%)

В табл. 7 приведены данные по мощности национальных ядерно-энергетических систем по состоянию на 2006 г. и по долям АЭС в производстве электроэнергии в перечисленных странах. Видно, что страны, располагающие основными месторождениями урановых руд, являются и основными производителями природного ура-

на, но не обязательно обладают развитой ядерной энергетикой (Австралия и вся Африка вообще не имеют АЭС). В то же время страны Азии (Япония, Южная Корея), практически не имеющие запасов природного урана и являющиеся его импортерами, входят в десятку стран с наиболее развитой ядерной энергетикой.

Таблица 7

Мировая ядерная энергетика в 2006 г.

№ п/п	Страна	Мощность, ГВт(э)	Доля АЭС, %
1	США	99,9	19
2	Франция	63,4	78
3	Япония	47,8	30
4	Россия	21,8	16
5	Германия	20,3	26
6	Южная Корея	17,5	39
7	Украина	13,1	48
8	Канада	12,6	16
9	Великобритания	11,0	19
10	Швеция	9,0	48
	Всего	316,4 из 370 (86%)	16

Что касается республик бывшего СССР, то к мощностям АЭС России и Украины следует добавить Армению (0,4 ГВт) и Литву (1,2 ГВт, 70% энергетики республики). В сумме это составит 36,5 ГВт.

Из 316 ГВт, производимых 10 странами с наиболее развитой ядерной энергетикой, около 112 ГВт приходится на страны Америки, 139 ГВт – на страны Европы и 65 ГВт – на страны Азии. Еще примерно 53 ГВт производятся в 22 странах, не входящих в первую десятку.

Содержание урана в рудах месторождений, находящихся в странах СНГ, составляет 0,05–0,1%. На территории России имеются два района, где разрабатываются урановые месторождения:

Стрельцовский (Читинская область);

Ставропольский.

Еще 6 месторождений разведаны, но не освоены:

Онежский район (Карелия);

Витимский район (Сибирь);
Зауральский район (г. Долматов);
Западно-Сибирский район;
Енисейско-Забайкальский район;
Дальневосточный район (берег Охотского моря).

Известны четыре основных способа добычи урана:

подземная (шахтная) добыча;
открытая (карьерная) добыча;
подземное выщелачивание;
добыча из морской воды.

После добычи урансодержащих минералов первыми двумя способами осуществляется гидрометаллургическая переработка урановой руды. Промышленная технология извлечения урана основана на хорошей растворимости оксидов урана в кислотных и щелочных растворах. Технологии, связанные с переводом металла из рудной массы в растворы, называются гидрометаллургическими.

Извлечение урана из рудной массы состоит из последовательно следующих процессов:

1) дробление и механическое обогащение руды путем удаления пустой породы;

2) выщелачивание (растворение) урана из рудной массы с помощью кислот или щелочей;

3) селективное (избирательное) выделение урана из растворов или пульп методами сорбции, экстракции или химического осаждения;

4) получение сухого уранового концентрата ($\sim 95\% \text{U}_3\text{O}_8$);

5) получение чистых соединений природного урана (аффинаж).

Существует несколько методов механического обогащения урановой руды за счет удаления пустой породы.

1. Радиометрическое обогащение, основанное на радиоактивности урановых руд. Руда дробится на куски размером 20–30 см. Измеряется гамма-активность отдельных кусков измельченной руды, и до 50% пустой породы отделяется с помощью сепарирующего устройства.

2. Гравитационное обогащение руды основано на разности плотностей урановых минералов ($6,5\text{--}10,5 \text{ г/см}^3$) и минералов пустой породы ($2,5\text{--}2,7 \text{ г/см}^3$). Руда измельчается на частицы размером

порядка 1 мм и засыпается в водный резервуар. Более тяжелые частицы опускаются на дно. Гравитационное обогащение в водной среде часто комбинируют с флотационным обогащением.

3. Флотационное обогащение. Флотационное обогащение основано на различной плотности и на различной смачиваемости частиц урановых минералов и частиц минералов пустой породы. Руда измельчается на частицы размером в доли миллиметра (0,07–0,15 мм) и загружается в водный резервуар, через который прокачивается воздух. Легкие частицы пустой породы прилипают к пузырькам воздуха и поднимаются на поверхность резервуара, а тяжелые частицы урановых минералов остаются в пульпе и постепенно оседают на дно. Для ускорения процесса в водную смесь добавляются флотационные реагенты, способные изменять природную смачиваемость минералов водой и лучше их разделять.

Следующий этап гидрометаллургической переработки – это выщелачивание урановых соединений из руды. В зависимости от химического состава руды применяется:

кислотное выщелачивание;

карбонатное выщелачивание.

Наиболее распространено кислотное выщелачивание. Для растворения урановых соединений применяются кислоты: серная (H_2SO_4), азотная (HNO_3) или соляная (HCl). Карбонатное выщелачивание применяется при высоком содержании в руде примесей, реагирующих с кислотами. Применяется сода (NaHCO_3), бикарбонат натрия (Na_2CO_3) и карбонат аммония – $((\text{NH}_4)_2\text{CO}_3)$.

После выщелачивания осуществляется селективное извлечение урановых соединений из кислотных или карбонатных растворов. Для этого применяются три метода:

сорбция на органических ионообменных смолах;

экстракция органической жидкостью, не смешивающейся с водой;

химическое осаждение из растворов.

Сорбция урана может осуществляться как из осветленных растворов, так и из пульп. Экстракция и химическое осаждение – только из хорошо осветленных растворов.

Осветление растворов производится:

отстаиванием в больших резервуарах – твердые частицы оседают на дно отстойника;

фильтрацией отстоянного раствора через слой песка, силикагеля, активированного угля.

Сорбционный метод извлечения урана из растворов основан на селективности отдельных ионообменных смол по отношению к урановым соединениям. Мелкие сферические гранулы смолы смешиваются с раствором и сорбируют на своей поверхности преимущественно урановые соединения. Смола легче раствора. Поэтому она легко может быть собрана с поверхности раствора и удалена для десорбции урановых соединений с поверхности гранул.

Процесс смывания урана с поверхности смолы называется десорбцией, или элюированием, а получаемый урановый раствор – элюатом. В качестве промывочной жидкости используют нейтральные или щелочные содовые растворы.

Другой метод извлечения урановых соединений из растворов – это **экстракция** органическими веществами. С химической точки зрения, экстракция основана на реакции сольватации, при которой различные молекулы объединяются в единое соединение (сольват). Простейший пример – это гидратация солей, при которой образуются достаточно прочные соединения (гидраты) в форме «соль + $n \cdot \text{H}_2\text{O}$ ». Экстракция основана на свойстве некоторых органических растворителей (экстрагентов), не смешивающихся с водой, образовывать с солями урана комплексные химические соединения, которые затем могут быть реэкстрагированы. Реэкстракция – это растворение комплексных уран-содержащих химических соединений в избытке растворителя и получение концентрированного уранового раствора.

При контакте осветленного раствора, полученного в процессе выщелачивания урановой руды, с органическим веществом уран распределяется между водной и органической фазой. Основная часть урана уходит в органическую фазу. Затем фазы разделяются, и уран реэкстрагируется из органической фазы. В качестве реэкстрагентов используется обычная вода или слабый раствор азотной кислоты HNO_3 . Экстракционный метод с несколькими ступенями экстракции позволяет извлекать до 99,7% урана.

Последний способ извлечения урана из раствора – это **химическое осаждение**. Он может использоваться при работе с осветленными растворами, полученными в процессе выщелачивания урановой руды, а также на стадиях реэкстракции или десорбции, когда образуются большие объемы низкоконцентрированных урановых растворов.

Осаждение химических соединений урана из раствора осуществляется добавлением в него соответствующих реагентов: перекись водорода H_2O_2 , аммиак NH_4OH , едкий натр $NaOH$, оксид магния MgO . В результате образуются малорастворимые гидраты оксидов урана $(UO_x) \cdot nH_2O$, которые выпадают в осадок на дно резервуара и могут быть отделены от жидкой фазы.

Осажденный и отделенный от водной фазы, просушенный концентрат урана представляет собой конечный продукт уранового гидрометаллургического завода.

Теперь вернемся немного назад, к методам добычи урановой руды. Итак, последовательность гидрометаллургических процессов переработки урановой руды, добытой подземным шахтным или наземным открытым способом, включает:

- 1) транспортировку руды;
- 2) измельчение и механическое обогащение руды;
- 3) выщелачивание урановых соединений;
- 4) сорбцию, экстракцию или химическое осаждение;
- 5) десорбцию, реэкстракцию и опять химическое осаждение.

Но существует способ, избавляющий от транспортировки, измельчения и механического обогащения руды. Это подземное выщелачивание. Способ подземного выщелачивания предполагает:

- 1) бурение системы закачных и откачных скважин в рудные тела урановых месторождений;
- 2) закачивание в пласты урановых руд жидких реагентов для растворения урановых соединений;
- 3) откачивание полученных растворов через откачные скважины после определенной выдержки.

Затем проводится уже известная переработка урановых растворов (сорбция-десорбция, экстракция-реэкстракция, химическое осаждение).

Глубина скважин, как правило, не превышает 100 м. Основная схема размещения скважин – это квадратная 5-скважинная ячейка с четырьмя закачными скважинами по вершинам квадрата и с одной откачной скважиной в центре. Шаг решетки скважин – до 30 м. В качестве растворителя применяются либо кислоты (при малом содержании карбонатов в руде), либо щелочные растворы (при высоком содержании карбонатов). Концентрация урана в откачных растворах не превышает 200 мг/л, т.е. 0,02% или 200 ppm.

Основные условия подземного выщелачивания:

- пласт урановой руды должен быть расположен между двумя водонепроницаемыми слоями, чтобы урановый раствор не уходил из зоны месторождения;

- пласт должен быть достаточно пористым, чтобы раствор мог глубоко проникать в толщу урановой руды.

Морская вода также может рассматриваться как слабоконцентрированный раствор урана. В ней содержится примерно $4 \cdot 10^9$ т урана, но при очень малой концентрации ($\sim 0,003$ мг/л, т.е. $3 \cdot 10^{-7}$ % или 0,003 ppm). Урана в морской воде примерно на три порядка больше, чем достоверных и вероятных запасов дешевого урана в земной коре ($4,7 \cdot 10^6$ т). Однако добыча урана из морской воды сталкивается со следующими трудностями:

- большие объемы прокачки морской воды;

- несмешивание потока свежей воды с водой, прошедшей через выделяющую установку;

- большие объемы химических реагентов и отходов.

Стоимость добычи урана из морской воды оценивается в 450 дол./кг. Экономисты ядерной энергетики утверждают, что повышение стоимости добычи урана в N раз приводит к увеличению его запасов в N^2 раз. В случае же добычи урана из морской воды увеличение стоимости урана примерно в 6 раз ($450/80$) приводит к расширению ресурсной базы в 1000 раз, т.е. не в N^2 раз, а примерно в N^4 раз.

Существуют проекты размещения установок по извлечению урана из морской воды на плавучих платформах или на малых островах (рис. 4), расположенных в зонах постоянных морских течений (например, в зоне течения Куро-Сиво у берегов Японии).

Итак, в результате гидрометаллургической переработки урановой руды получается сухой урановый концентрат в виде смеси оксидов урана (в основном, U_3O_8). Урановый концентрат содержит практически весь уран, ранее содержащийся в руде. Но из руды извлечен не только весь уран, но и часть сопутствующих примесей. Урановые оксиды составляют лишь 95–96% концентрата, остальные 4–5% – это различные примеси. Такой продукт не пригоден для изготовления ядерного топлива. Необходима его тонкая очистка от примесей, и главным образом от элементов с сильным поглощением нейтронов: В, Cd, Hf, редкоземельных элементов (Eu, Gd, Sm).

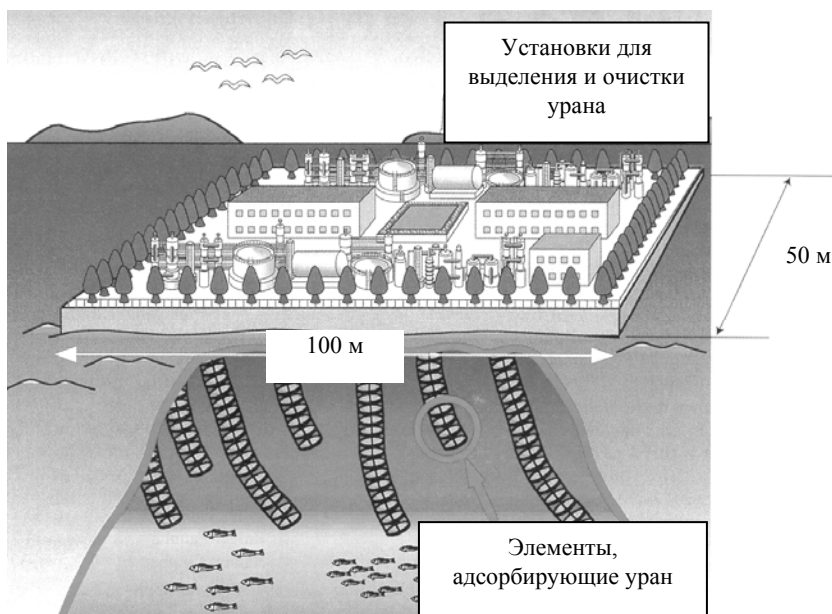
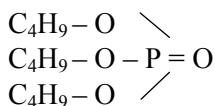


Рис. 4. Схема установки по извлечению урана из морской воды

Поэтому следующий этап ЯТЦ – это тонкая очистка уранового концентрата с помощью аффинажных процессов.

Наиболее развит экстракционный аффинаж с применением трибутилфосфата (ТБФ) в качестве экстрагента. ТБФ – это сложный

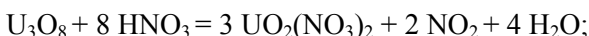
органический эфир, химическая формула $(C_4H_9O)_3PO$ или $(C_4H_9)_3PO_4$, структура химических связей:



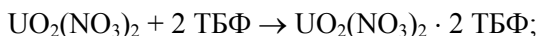
Плотность ТБФ ($0,973 \text{ г/см}^3$) близка к плотности воды. ТБФ очень вязкая жидкость, и для снижения вязкости его растворяют в нейтральных органических соединениях, например в керосине. Важное свойство ТБФ – это его способность селективно экстрагировать соединения урана. Например, ТБФ экстрагирует уранил-нитрат $UO_2(NO_3)_2$ из смеси в 10^4 раз более эффективно, чем примеси. Один литр ТБФ способен удерживать до 440 г урана.

Экстракционный аффинаж включает следующие стадии:

1) растворение уранового концентрата в азотной кислоте с образованием уранил-нитрата:



2) смешивание раствора уранил-нитрата с ТБФ; основная часть уранил-нитрата перейдет в органическую фазу:



3) разделение водной и органической фаз;

4) рекстракция чистого уранил-нитрата из органической фазы путем осаждения; возможны два варианта:

а) применение перекиси водорода H_2O_2 при температуре $60-70^\circ\text{C}$; в результате получается пероксид урана $UO_4 \cdot 2H_2O$;

б) применение бикарбоната аммония NH_4HCO_3 ; в результате образуется аммоний-уранил-карбонат (АУК) практически без примесей. Химическая формула АУК – $(NH_4)_4UO_2(CO_3)_3$.

При прокаливании пероксида урана или АУК получают различные (в зависимости от температуры прокаливания) чистые оксиды урана: UO_3 (при температуре $240-350^\circ\text{C}$), U_3O_8 (при $580-620^\circ\text{C}$) и UO_2 (при $750-800^\circ\text{C}$).

Глава 4. ИЗОТОПНОЕ ОБОГАЩЕНИЕ УРАНА

Современная ядерная энергетика базируется на обогащенном уране, т.е. на уране, в котором содержание делящегося изотопа ^{235}U выше, чем в природном (0,71%). Основу подавляющего большинства современных АЭС составляют тепловые легководные реакторы, использующие слабообогащенное урановое оксидное топливо с содержанием ^{235}U на уровне 2–5%.

Существует целый ряд ядерных технологий для изотопного обогащения урана. Все они основаны на разности масс изотопов урана ^{235}U и ^{238}U . Эта разность масс (3 а.е.м.) определяет различное отклонение ионизированных атомов в магнитном поле (электромагнитный метод); различную скорость прохождения атомов (молекул) через пористую перегородку (газодиффузионный метод); различное пространственное распределение атомов (молекул) в поле центробежных сил (метод газовой центрифуги); различную траекторию движения атомов (молекул) при обтекании препятствия с малым радиусом кривизны (метод разделительного сопла).

Разработаны также лазерные методы изотопного обогащения урана в двух разновидностях: 1) рабочее тело – атомарный пар урана; 2) рабочее тело – молекулярный газ, гексафторид урана UF_6 .

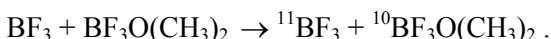
Атомарное разделение основано на селективном возбуждении атомов ^{235}U лазерным излучением. Затем возбужденные атомы могут селективно ионизироваться дополнительным лазерным облучением и извлекаться из смеси с невозбужденными, электрически нейтральными атомами ^{238}U электромагнитными методами.

Молекулярное разделение основано на селективном возбуждении молекул $^{235}\text{UF}_6$ и их последующей диссоциации. На первой стадии процесса молекулы $^{235}\text{UF}_6$ селективно возбуждаются лазерным облучением, а на втором этапе возбужденные молекулы $^{235}\text{UF}_6$ селективно диссоциируют под действием другого лазерного облучения с образованием твердого порошка $^{235}\text{UF}_5$.

Существуют методы химического обогащения, основанные на различной устойчивости изотопов в разных химических соединениях. В химических методах происходит изотопный обмен между двумя разными химическими соединениями одного и того же эле-

мента. Отдельные изотопы будут накапливаться в том химическом соединении, в котором они наиболее устойчивы.

Например, обогащение природного бора изотопом ^{10}B . Природный бор на 20% состоит из изотопа ^{10}B и на 80% из изотопа ^{11}B . Но сечения захвата тепловых нейтронов у этих изотопов существенно разные: 0,005 барна у ^{11}B и 3837 барн у изотопа ^{10}B . Поэтому бор, используемый в органах регулирования ядерных реакторов, целесообразно обогащать изотопом ^{10}B . При смешивании BF_3 с $\text{BF}_3\text{O}(\text{CH}_3)_2$ – диметилэфират трифторидом бора – (в обоих материалах бор естественного изотопного состава) происходит изотопный обмен с накоплением ^{10}B в органической фракции:

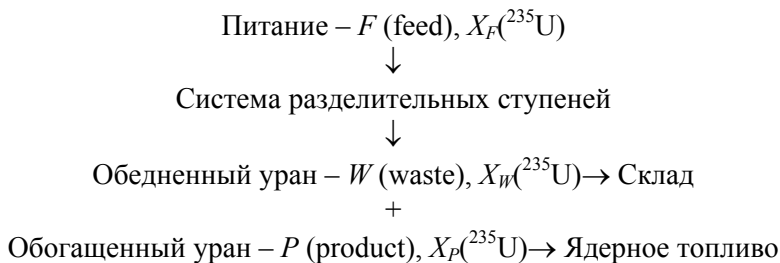


Аналогичный эффект может быть получен в реакциях изотопного обмена разновалентных соединений урана. Известно, что ^{235}U более устойчив в 6-валентных соединениях урана, а ^{238}U – в 4-валентных. Это может быть использовано для химического обогащения урана.

Плазменный метод изотопного обогащения основан на эффекте ионного циклотронного резонанса. В магнитном поле ионы движутся по спирали вокруг силовых линий поля. Частота вращения (ионная циклотронная частота) определяется массой иона, а радиус вращения – его энергией. Если приложить переменное электрическое поле с частотой, равной ионной циклотронной частоте какого-либо изотопа, то энергия этого поля будет селективно поглощаться только ионами этого изотопа. В результате радиусы орбит вращения ионов ^{235}U и ионов ^{238}U пространственно разделятся. Это даст возможность собрать отдельно ^{235}U и ^{238}U на соответственно расположенных коллекторах.

Качество обогатительных технологий может быть оценено по двум основным параметрам: эффективность и энергоемкость. Эффективность обогатительной технологии определяется ее способностью повысить содержание нужного изотопа в смеси на одной ступени процесса. Энергоемкость обогатительной технологии определяется затратами электроэнергии в расчете на единицу разделительных работ.

Введем понятие разделительных работ и единицу их измерения. Для этого рассмотрим принципиальную схему обогащения урана. Исходный материал имеет массу F и обогащение $X_F(^{235}\text{U})$. После системы разделительных ступеней получим два новых материала: обогащенный уран (продукт) в количестве P с обогащением $X_P(^{235}\text{U})$ и обедненный уран (отвал) в количестве W с обогащением $X_W(^{235}\text{U})$.



Математическое описание баланса ЯМ включает два уравнения:

1. Баланс массы урана: $F = P + W$.

2. Баланс массы изотопа ^{235}U : $X_F \cdot F = X_P \cdot P + X_W \cdot W$.

Имеем систему двух уравнений с тремя неизвестными (F, P, W). Разделив на P , эту систему уравнений можно преобразовать так, что это будет система двух уравнений с двумя неизвестными (F/P и W/P):

$$F/P = 1 + W/P;$$

$$X_F \cdot F/P = X_P + X_W \cdot W/P.$$

Решая эту систему, можно найти коэффициенты:

а) расхода природного урана на единицу продукта

$$\frac{F}{P} = \frac{X_P - X_W}{X_F - X_W};$$

б) образования отвалов на единицу продукта

$$\frac{W}{P} = \frac{X_P - X_F}{X_F - X_W};$$

в) деления потока природного урана θ

$$F = P + W = \theta \cdot F + (1 - \theta) \cdot F;$$

$$\theta = \frac{P}{F} = \frac{X_F - X_W}{X_P - X_W}.$$

Примеры:

а) получение оружейного урана из природного:

$$X_F = 0,71\%; X_P = 90\%; X_W = 0,25\%.$$

$$\text{Тогда } F/P = (X_P - X_W)/(X_F - X_W) = 89,75/0,46 \approx 195.$$

Это значит, что для получения 25 кг оружейного урана необходимо около 5 т природного урана или около 5000 т урановой руды;

б) получение урана реакторного обогащения из природного:

$$X_F = 0,71\%; X_P = 4\%; X_W = 0,25\%.$$

$$\text{Тогда } \theta = (X_F - X_W)/(X_P - X_W) = 0,46/3,75 \approx 0,12.$$

Это значит, что из 1000 кг природного урана можно получить 120 кг обогащенного урана (4% ^{235}U) и 880 кг обедненного урана (0,25% ^{235}U).

Введем понятие относительной концентрации изотопа ^{235}U в бинарной смеси (^{235}U , ^{238}U): на входе $R = X_F/(1 - X_F)$; на выходе продукта $R' = X_P/(1 - X_P)$; на выходе отвала $R'' = X_W/(1 - X_W)$.

В качестве характеристики обогащительного процесса часто используют коэффициенты разделения, обогащения или обеднения на одной разделительной ступени:

коэффициент разделения по обогащенной фракции:

$$\alpha = R'/R = \frac{X_P/(1 - X_P)}{X_F/(1 - X_F)};$$

коэффициент разделения по обедненной фракции:

$$\beta = R/R'' = \frac{X_F/(1 - X_F)}{X_W/(1 - X_W)};$$

коэффициент обогащения: $\varepsilon' = \alpha - 1$;

коэффициент обеднения: $\varepsilon'' = \beta - 1$;

коэффициент полного обогащения на одной ступени: $\varepsilon = \varepsilon' + \varepsilon''$.

Работа разделения. Метод количественной оценки работы разделения был предложен английскими физиками Р. Пайерлсом и П. Дираком. Они ввели некоторую функцию U , характеризующую «ценность» изотопной смеси. Эту «функцию ценности» можно представить в виде произведения количества смеси F на безразмерную функцию $V(X_F)$, зависящую только от содержания извлекаемого изотопа, т.е.

$$U_F = F \cdot V(X_F).$$

Функцию $V(X)$ называют потенциалом разделения. До разделения изотопов «ценность» исходного материала была равна $U_F = F \cdot V(X_F)$. После разделения образовался продукт с ценностью $U_P = P \cdot V(X_P)$ и отвал с ценностью $U_W = W \cdot V(X_W)$, т.е. суммарная ценность смеси увеличилась на:

$$\Delta U = U_P + U_W - U_F = P \cdot V(X_P) + W \cdot V(X_W) - F \cdot V(X_F).$$

Величина ΔU характеризует работу, которую надо выполнить, чтобы разделить исходную бинарную смесь на два новых продукта – обогащенный уран и обедненный уран.

Видно, что работа разделения:

1) имеет размерность количества вещества и ее можно измерять в единицах, пропорциональных массе;

2) не зависит от применяемой технологии.

Если уравнение для ΔU :

1) переписать в виде, содержащем только F :

$$\Delta U = \theta \cdot F \cdot V(X_P) + (1 - \theta) \cdot F \cdot V(X_W) - F \cdot V(X_F);$$

2) разложить функции $V(X_P)$ и $V(X_W)$ в ряд Тейлора в окрестности точки X_F с членами второго порядка малости;

3) предположить, что работа разделения на одной ступени не зависит от входной концентрации X_F ,

то получим дифференциальное уравнение:

$$d^2 V/dX^2 = X^{-2} \cdot (1-X)^{-2},$$

решение которого

$$V(X) = (2X - 1) \ln \frac{X}{1-X}.$$

Вывод формулы для потенциала разделения. Пусть на вход одной разделительной ступени поступает F исходного материала с обогащением X_F . На выходе из ступени будем иметь $P = \theta \cdot F$ продукта с обогащением X_P и отвал в количестве $W = (1 - \theta) \cdot F$ с обогащением X_W .

Работа разделения на одной ступени может быть записана в виде

$$\Delta U = \theta \cdot F \cdot V(X_P) + (1 - \theta) \cdot F \cdot V(X_W) - F \cdot V(X_F).$$

Если разложить выражения для потенциала разделения $V(X_P)$ и $V(X_W)$ в ряд Тейлора в окрестности точки X_F с сохранением членов второго порядка малости

$$\begin{aligned} V(X_P) &= V(X_F) + (X_P - X_F) \cdot dV/dX_F + (X_P - X_F)^2 \cdot 0,5 \cdot d^2 V/dX_F^2; \\ V(X_W) &= V(X_F) + (X_W - X_F) \cdot dV/dX_F + (X_W - X_F)^2 \cdot 0,5 \cdot d^2 V/dX_F^2; \end{aligned}$$

и подставить их в уравнение, то получим:

$$\begin{aligned} \Delta U &= [\theta \cdot F + (1 - \theta) \cdot F - F] \cdot V(X_F) + \\ &+ [\theta \cdot F \cdot (X_P - X_F) + (1 - \theta) \cdot F \cdot (X_W - X_F)] \cdot dV/dX_F + \\ &+ [\theta \cdot F \cdot (X_P - X_F)^2 + (1 - \theta) \cdot F \cdot (X_W - X_F)^2] \cdot 0,5 \cdot d^2 V/dX_F^2. \end{aligned}$$

Используя балансные соотношения, легко показать, что первые два члена этого уравнения равны нулю, так как

$$\begin{aligned} \theta \cdot F + (1 - \theta) \cdot F - F &= 0; \\ \theta \cdot F \cdot (X_P - X_F) + (1 - \theta) \cdot F \cdot (X_W - X_F) &= 0. \end{aligned}$$

Тогда

$$\Delta U = [\theta \cdot F \cdot (X_P - X_F)^2 + (1 - \theta) \cdot F \cdot (X_W - X_F)^2] \cdot 0,5 \cdot d^2 V / dX_F^2.$$

Предположим, что на одной из многочисленных разделительных ступеней произошло очень малое обогащение и обеднение смеси, т.е. коэффициенты обогащения и обеднения ε' и ε'' на одной ступени много меньше единицы. Тогда из определения этих коэффициентов можно получить следующие приблизительные соотношения:

$$\begin{aligned} X_P - X_F &\approx \varepsilon' \cdot X_F \cdot (1 - X_F); \\ X_F - X_W &\approx \varepsilon'' \cdot X_F \cdot (1 - X_F). \end{aligned}$$

Подставив эти соотношения в уравнение для ΔU , получим:

$$\Delta U = 0,5 \cdot d^2 V / dX_F^2 \cdot X_F^2 \cdot (1 - X_F)^2 [\varepsilon'^2 \cdot \theta \cdot F + \varepsilon''^2 \cdot (1 - \theta) \cdot F].$$

Введем еще одно предположение: разделительная работа одной ступени не зависит от обогащения смеси X_F , а зависит только от конструкции ступени и технологии обогащения. Тогда принимаем для простоты, что

$$d^2 V / dX^2 \cdot X^2 \cdot (1 - X)^2 = 1$$

или

$$d^2 V / dX^2 = X^{-2} \cdot (1 - X)^{-2}.$$

Решением этого уравнения является функция

$$V(X) = (2X - 1) \ln \left(\frac{X}{1 - X} \right) + AX + B.$$

Можно показать, что значения коэффициентов A и B не влияют на работу разделения, так как связанные с ними члены войдут в работу разделения следующим образом:

$$\Delta U_{A,B} = A \cdot (P \cdot X_P + W \cdot X_W - F \cdot X_F) + B \cdot (P + W - F) = 0.$$

Тогда можно принять, что $A=B=0$, а

$$V(X) = (2X-1) \cdot \ln[X/(1-X)].$$

Итак, $\Delta U = P \cdot V(X_P) + W \cdot V(X_W) - F \cdot V(X_F)$.

Если F , P и W измерять в килограммах, то и работа разделения будет выражена в килограммах разделительных работ (РР), т.е. 1 кг РР = 1 ЕРР (единица разделительных работ).

Определим удельную работу разделения, необходимую для производства 1 кг обогащенного урана:

$$\eta_{\text{ЕРР}} = \Delta U / P \text{ (ЕРР/кг обогащенного урана)}.$$

Известно, что:

$$F = P \cdot (X_P - X_W) / (X_F - X_W);$$

$$W = P \cdot (X_P - X_F) / (X_F - X_W).$$

Тогда

$$\Delta U = P \cdot V(X_P) + P \cdot (X_P - X_F) / (X_F - X_W) \cdot V(X_W) - \\ - P \cdot (X_P - X_W) / (X_F - X_W) \cdot V(X_F)$$

или

$$\eta_{\text{ЕРР}} = V(X_P) + V(X_W) \cdot (X_P - X_F) / (X_F - X_W) - \\ - V(X_F) \cdot (X_P - X_W) / (X_F - X_W).$$

Понятия работы разделения и единиц разделительных работ впервые использованы в Ок-Риджской национальной лаборатории (США) в качестве научного обоснования цен и прейскурантов для коммерческих расчетов за обогатительные услуги. Все затраты на обогащение урана относят на фактически выполненное количество ЕРР, вне зависимости от использованной обогатительной технологии. Существуют таблицы количества ЕРР, необходимого для производства 1 кг обогащенного урана из природного, при разных содержаниях ^{235}U в продукте X_P и в отвале X_W .

В табл. 8 приведены данные, характеризующие различные обогащательные технологии по коэффициенту разделения на одной ступени α и по энергоёмкости.

Таблица 8

Сравнение обогащательных технологий по коэффициенту разделения α и по энергоёмкости

Технология	Коэффициент разделения α	Энергоёмкость, кВтч/ЕРР
Электромагнитное разделение	20–40	4000
Газовая диффузия	1,0043	2300–2600
Центрифуги	1,25	100–300
Разделительное сопло	1,025	3000–3500
Лазерные методы	3–15	10–50
Химические методы	1,0025	400–700
Плазменный метод	3,5–10	200–600

В большинстве методов обогащения урана в качестве исходного материала используется газообразный гексафторид урана UF_6 . Это соединение урана обладает рядом привлекательных свойств, важных для обогащения урана.

1. Природный фтор содержит только один стабильный изотоп ^{19}F . Если бы фтор имел еще один стабильный изотоп, например ^{18}F , то при разделении системы (^{235}U , ^{238}U , ^{18}F , ^{19}F) существовали бы четыре компонента: $^{235}U^{18}F_6$, $^{238}U^{18}F_6$, $^{235}U^{19}F_6$, $^{238}U^{19}F_6$ с молекулярными массами 343, 346, 349 и 352, соответственно. Это значит, что в легкую фракцию с массами 343 и 346 частично попадает ^{238}U , а в тяжелую фракцию с массами 349 и 352 частично попадает ^{235}U .

2. Фтор сравнительно легкий элемент. Относительная разность масс молекул $^{235}UF_6$ и $^{238}UF_6$ равна $3/349 = 0,0086$. Это несколько ниже разности масс атомов ^{235}U и ^{238}U ($3/235 = 0,0128$), но не намного.

3. Гексафторид урана может быть в твердом, жидком и газообразном состоянии при умеренных температурах и давлениях (рис. 5). Тройная точка диаграммы состояния UF_6 соответствует $64^\circ C$ и 1,5 атм.

4. Гексафторид урана может возгоняться (сублимировать) из твердого состояния в газообразное, минуя жидкую фазу. И наоборот, газообразный UF_6 может быть легко конденсирован в твердое состояние с небольшим отводом тепла.

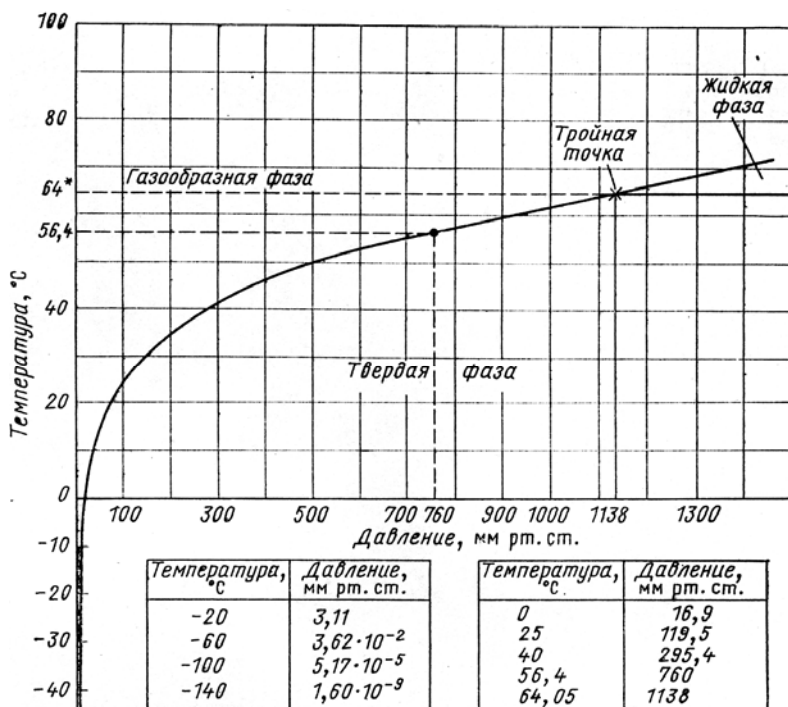


Рис. 5. Диаграмма состояния гексафторида урана

Таким образом, физические свойства гексафторида урана позволяют создавать достаточно простые, удобные и компактные технологии обращения с ним.

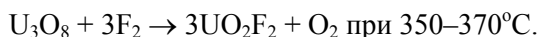
Но у гексафторида урана есть и недостатки:

1. Высокая химическая активность. UF_6 реагирует с воздухом и парами воды, образуя тетрафторид урана UF_4 (порошок), осаждающийся на внутренних поверхностях технологических контуров.

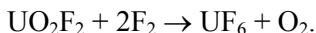
2. Как следствие, необходимость высокой герметичности контуров и контейнеров, их обезвоженность и обезжиренность, «хирургическая» чистота. Наиболее устойчивые материалы в контакте с UF_6 : Ni, Al, Mg, Cu и их сплавы, из органических веществ – тефлон.

Конверсия оксидов урана в гексафторид урана. В открытом ЯТЦ исходным материалом для получения гексафторида урана UF_6 является окта-оксид урана U_3O_8 , продукт экстракционного аффинажа уранового концентрата. В замкнутом ЯТЦ с повторным использованием регенерированного урана исходным материалом для получения UF_6 является диоксид урана UO_2 , продукт химической переработки облученного ядерного топлива.

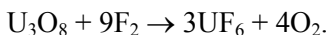
Окта-оксид урана U_3O_8 обычно фторируется с помощью двухстадийного процесса. Сначала в реакции с газообразным фтором получают уранил-фторид UO_2F_2 :



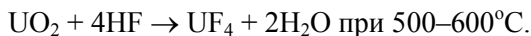
Затем на втором этапе UF_6 образуется в результате реакции уранил-фторида с фтором при пониженной температуре ($\sim 270^\circ\text{C}$):



Возможен и одностадийный процесс (плазменный метод прямого фторирования), но он может осуществляться только в избытке фтора и при существенно более высокой температуре ($900\text{--}1000^\circ\text{C}$):



Если же в качестве исходного материала используется диоксид урана UO_2 , то для производства гексафторида урана UF_6 применяется другой, но также двухстадийный процесс. На первом этапе диоксид урана UO_2 взаимодействует с плавиковой кислотой HF с образованием тетрафторида урана UF_4 :



На втором этапе тетрафторид урана UF_4 реагирует с газообразным фтором:



Затем гексафторид урана конденсируется при температуре -15°C и транспортируется в контейнерах из никелевого сплава «Монель».

1. Обогащение урана методом газовой диффузии

Газовой диффузией (ГД) называется процесс переноса массы в смеси газов за счет их теплового движения. Обогащение урана ГД-методом основано на различии скоростей теплового движения тяжелых и легких молекул и на способности более легких молекул легче проходить через тонкие пористые перегородки.

В смеси двух газов, имеющих одинаковую температуру, средняя кинетическая энергия легких и тяжелых молекул также одинакова, т.е.

$$m_{\text{Л}} \cdot V_{\text{Л}}^2 = m_{\text{Т}} \cdot V_{\text{Т}}^2,$$

т.е. средняя скорость легких молекул выше, чем тяжелых:

$$V_{\text{Л}} = V_{\text{Т}} \cdot (m_{\text{Т}}/m_{\text{Л}})^{1/2}.$$

Можно показать, что теоретически достижимый, идеальный коэффициент разделения α_0 смеси двух газов, диффундирующих через пористую перегородку:

$$\alpha_0 = V_{\text{Л}}/V_{\text{Т}} = (m_{\text{Т}}/m_{\text{Л}})^{1/2} \approx 1 + \Delta m/2m_{\text{Л}}.$$

Для гексафторидов урана $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ молекулярные массы $m_{\text{Л}} = 349$, $m_{\text{Т}} = 352$, и коэффициенты разделения и обогащения равны:

$$\alpha_0 = 1,0043; \varepsilon_0 = \alpha_0 - 1 = 0,0043.$$

Для повышения эффективности ГД-процесса необходимо, чтобы средняя длина свободного пробега λ молекул UF_6 была много больше характерного размера пор a , т.е. основным механизмом теплового движения должно быть не столкновение молекул друг с другом, а взаимодействие молекул с порами в перегородке, т.е. $\lambda \gg a$.

Средняя длина свободного пробега молекул газа обратно пропорциональна давлению. Для гексафторида урана длина свободного пробега λ при 1 атмосфере равна 1 мкм, при 1 мм рт.ст. – 700 мкм. Изготовление перегородок с микронными порами достаточно сложная задача. Поэтому желательно осуществлять обогащение урана при пониженном давлении.

Изготовление пористых перегородок – наиболее сложная и самая засекреченная проблема ГД-метода. Перегородки должны быть:

- тонкими (доли миллиметра);

- прочными (противостоят перепаду давления $\sim 0,3$ атм);

- коррозионно-стойкими в атмосфере UF_6 .

В настоящее время на ГД-заводах США, Франции и России применяются трубчатые перегородки с размером пор $\sim 0,005 - 0,01$ мкм. Эти перегородки изготавливаются из следующих материалов:

- спеченных порошков оксида алюминия и никеля;

- спеченных никелевых порошков;

- алюминия с порами, полученными электрическим травлением; тефлона.

При таких размерах пор возможно осуществлять ГД-процесс при давлениях, близких к атмосферному. Типичные условия ГД-обогащения урана: температура – $65-110^\circ\text{C}$; давление – $0,35$ атм.; перепад давления – $0,3$ атм.

Каскадирование процесса. Поскольку коэффициент обогащения урана на одной ГД-ступени невелик ($0,0043$), необходимо многократное пропускание потока гексафторида урана через многие обогатительные ступени. Последовательное соединение ГД-ступеней образует каскад. Типичная схема каскадирования ГД-показана на рис. 6.

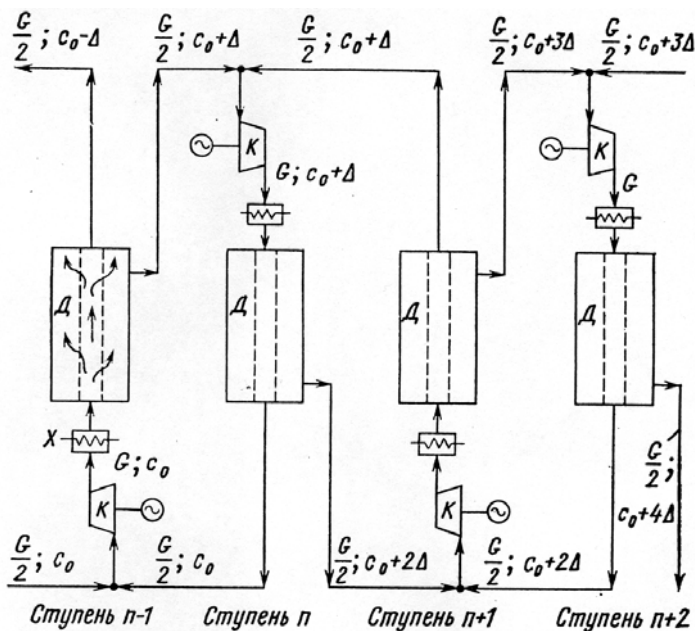


Рис. 6. Схема каскада ГД-ступеней

Очевидно, что количество ступеней и расход UF_6 в обогатительной и обеднительной ветвях различны. Это зависит от содержания ^{235}U в продукте и в отвале. Ясно, что понизить содержание ^{235}U с 0,7% в природном уране до 0,2–0,3% в отвале можно за сравнительно небольшое количество ступеней. Наоборот, для того чтобы повысить содержание ^{235}U с 0,7% до 90% (оружейный уран), необходимо значительно большее количество ступеней. Расход же урана будет постепенно понижаться в обеих ветвях каскада, но более резко в обогатительной ветви. Действительно, если рассматривать предельный случай получения 100% ^{235}U в продукте и 0% ^{235}U в отвале из 1 тонны природного урана, то на последних ступенях обогатительной ветви будет перерабатываться 8 – 10 кг урана, а на последних ступенях обеднительной ветви – примерно 990 кг урана. Графически это выглядит следующим образом (рис. 7).

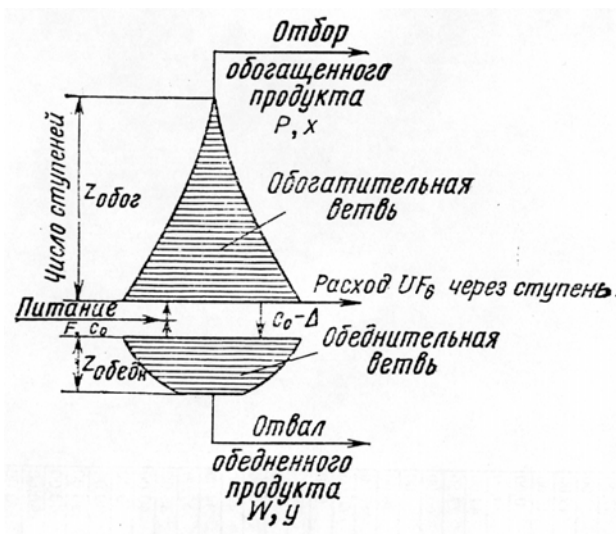


Рис. 7. Уменьшение числа ступеней и расхода урана в ГД-ветвях идеального каскада

Число ступеней в обогащительной ветви N_P и в обеднительной ветви N_W ГД-процесса может быть вычислено из следующих соотношений. Из определения коэффициента обогащения ε' следует

$$\frac{X_P}{1-x_P}(1) = (1 + \varepsilon') \frac{X_F}{1-X_F};$$

После N_P обогащительных ступеней

$$\frac{X_P}{1-X_P}(N_P) = (1 + \varepsilon')^{N_P} \frac{X_F}{1-X_F}.$$

Отсюда

$$N_P = \frac{\ln \frac{X_P/(1-X_P)}{X_F/(1-X_F)}}{\ln(1 + \varepsilon')} \approx \frac{1}{\varepsilon'} \ln \frac{X_P/(1-X_P)}{X_F/(1-X_F)}.$$

Аналогичным образом можно определить количество ступеней в обеднительной ветви N_W .

Из определения коэффициента обеднения ε'' следует

$$\frac{X_W}{1 - X_W}(1) = \frac{1}{1 + \varepsilon''} \cdot \frac{X_F}{1 - X_F};$$

После N_W обеднительных ступеней

$$\frac{X_W}{1 - X_W}(N_W) = \frac{1}{(1 + \varepsilon'')^{N_W}} \cdot \frac{X_F}{1 - X_F}.$$

Отсюда

$$N_W = \frac{\ln \frac{X_F / (1 - X_F)}{X_W / (1 - X_W)}}{\ln(1 + \varepsilon'')} \approx \frac{1}{\varepsilon''} \ln \frac{X_F / (1 - X_F)}{X_W / (1 - X_W)}.$$

Можно оценить масштаб количества ступеней в обогащительной и обеднительной ветвях. Предположим, что для получения оружейного урана ($X_P = 90\%$) из природного ($X_F = 0,71\%$) применяется ГД-технология ($\varepsilon = 0,0043$), а содержание ^{235}U в отвале поддерживается на уровне $X_W = 0,2\%$. Тогда количество ступеней в обогащительной ветви $N_P \approx 1660$, а в обеднительной – $N_W \approx 290$. При тех же условиях производство низкообогащенного урана ($X_P = 4\%$) для энергетических легководных реакторов потребует существенно меньшего количества ступеней в обогащительной ветви ($N_P \approx 410$) и того же количества ступеней в обеднительной ветви ($N_W \approx 290$).

2. Обогащение урана в газовых центрифугах

Предположим, что в трубе, вращающейся с угловой скоростью ω , находится смесь газов с молекулярными массами M_1 и M_2 . На элементарный объем газовой смеси действует центробежная сила

$$F_{1,2} = \gamma_{1,2} \cdot \omega^2 \cdot r.$$

Давление, испытываемое фракциями газовой смеси, определяется следующим уравнением:

$$dp_{1,2}/dr = F_{1,2} = \gamma_{1,2} \cdot \omega^2 \cdot r.$$

Из уравнения Клапейрона–Менделеева

$$p_{1,2} V = m RT/M_{1,2}$$

можно получить плотность газовых фракций:

$$\gamma_{1,2} = m/V = p_{1,2} M_{1,2} / RT.$$

Тогда уравнение для давлений, действующих на фракции газовой смеси, принимает вид:

$$dp_{1,2}/dr = p_{1,2} M_{1,2} \omega^2 \cdot r / RT;$$

а решение его можно записать так:

$$P_{1,2} = P_0 \cdot \exp(M_{1,2} \cdot \omega^2 \cdot r^2 / 2RT) \sim \exp(a \cdot V^2).$$

Очевидно, содержание легкой и тяжелой фракций в газовой смеси будет пропорционально испытываемому давлению, т.е.

$$\begin{aligned} X_{235}(r) &= X_{235}(0) \exp(M_{\text{ЛФ}} \cdot V^2 / 2RT); \\ X_{238}(r) &= X_{238}(0) \exp(M_{\text{ТФ}} \cdot V^2 / 2RT). \end{aligned}$$

Из этих уравнений следует, что газовая смесь на периферии центрифуги будет иметь повышенное содержание тяжелой фракции (обедненный уран), а газовая смесь в центральной части – повышенное содержание легкой фракции (обогащенный уран). В таком случае коэффициент разделения α определяется как

$$\alpha(r) = \frac{X_{235} / X_{238}(0)}{X_{235} / X_{238}(r)};$$

$$\text{т.е. } \alpha(r) = \exp(\Delta M \cdot \omega^2 \cdot r_0^2 / 2RT) = \exp(\Delta M \cdot V(r_0)^2 / 2RT);$$

$$\varepsilon = \alpha - 1 \approx \Delta M \cdot V(r_0)^2 / 2RT.$$

Итак, коэффициент ГЦ-обогащения зависит от абсолютной, а не от относительной разности масс фракций, и пропорционален квадрату скорости вращения центрифуги. Линейная скорость V на периферии центрифуги достигает 300–500 м/с. Это примерно скорость вылета пули из ствола ружья. По расчетным оценкам в ГЦ можно получить следующие коэффициенты обогащения урана:

$$\varepsilon = 0,068 \text{ при } V = 330 \text{ м/с};$$

$$\varepsilon = 0,098 \text{ при } V = 400 \text{ м/с};$$

$$\varepsilon = 0,152 \text{ при } V = 500 \text{ м/с}.$$

Газовые центрифуги изготавливаются из следующих материалов:

- 1) алюминиевых сплавов при скоростях $V \leq 350$ м/с;
- 2) титановых сплавов при скоростях $V \leq 450$ м/с;
- 3) легированных сталей при скоростях $V \leq 500$ м/с;
- 4) стеклопластиков, армированных графитом, при $V = 500\text{--}700$ м/с.

Если организовать циркуляцию газа внутри центрифуги в вертикальном направлении (например, тепловой конвекцией, обусловленной разностью температур в нижней и верхней части центрифуги), то такая центрифуга будет работать как каскад. Газ будет подниматься вверх по оси и опускаться вниз вдоль стенок ротора. Смесь газов $^{235}\text{UF}_6$ и $^{238}\text{UF}_6$ на периферии будет непрерывно обогащаться более тяжелой компонентой, а в центре – более легкой. Увеличение обогащения урана вдоль оси ротора будет идти очень быстро, так как каждое следующее аксиальное сечение будет содержать больше легкой фракции, а тяжелая фракция в каждом сечении будет оттесняться на периферию. В результате центральная верхняя часть ротора будет содержать смесь газов, максимально обогащенную по легкой компоненте, а периферийная нижняя часть – по тяжелой компоненте. Обогащенная смесь может периодически отбираться из верхней центральной зоны ротора.

Поток газа вверх в центре и вниз на периферии может быть создан путем незначительного подогрева центральной зоны. Более хо-

лодные и поэтому более тяжелые периферийные слои смеси будут опускаться вниз, а более теплые и, как следствие, более легкие центральные слои – подниматься вверх. Разность температур между центром и периферией ротора может быть создана размещением небольшого электрически нагреваемого стержня в центре сосуда.

3. Метод разделительного сопла

Метод основан на различном поведении изотопов урана в поле центробежных сил. Смесь гексафторида урана с водородом или гелием (они добавляются для ускорения потока) подается в сильно искривленное сопло (рис. 8), где под действием центробежных сил происходит пространственная сепарация легких и тяжелых изотопов урана.

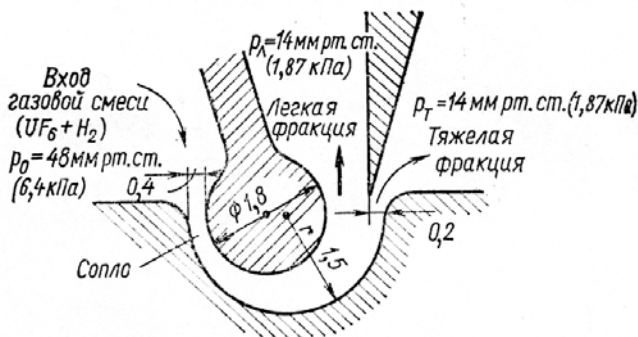


Рис. 8. Схема разделительного сопла

Метод разделительного сопла выгодно отличается от центрифужной технологии отсутствием вращающихся узлов, но требует очень точной механической сборки сепараторов из-за малых размеров разделяющих щелей (доли миллиметра).

В методе разделительного сопла коэффициент обогащения урана на одной ступени $\varepsilon = 0,025$ при энергоемкости около 3000 кВтч/ЕРР.

4. Лазерные методы разделения

Лазерные методы обогащения урана основаны на различии в схемах энергетических уровней возбуждения электронов в атоме ^{238}U по сравнению с атомом ^{235}U . Три дополнительных нейтрона в ядре ^{238}U влияют на конфигурацию электронных оболочек вокруг ядра. Разницу в энергии возбуждения электронов можно использовать с помощью точно настроенного монохроматического лазера. Возбужденное состояние электронных оболочек приводит к селективному усилению физических или химических процессов с возбужденными атомами (усиленная ионизация атомов, усиленная диссоциация молекул или химическая реакция возбужденных атомов и молекул).

Условия лазерного обогащения.

1. В спектре возбужденных уровней электронов должна существовать линия, характерная только для одного изотопа, и эта линия должна быть достаточно удалена от других линий.

2. Должен быть разработан лазер, который может быть настроен точно на соответствующую частоту излучения.

3. Должны быть найдены физические или химические процессы, способные селективно отделять возбужденные атомы или молекулы.

4. Должны быть созданы такие условия, чтобы лазерное воздействие было основным процессом возбуждения атомов или молекул смеси.

В настоящее время разработаны две технологии лазерного обогащения урана: 1) атомарное обогащение паров урана; 2) молекулярное обогащение гексафторида урана.

4.1. Лазерное обогащение паров урана

Технология лазерного обогащения паров урана AVLIS (Atomic Vapour Laser Isotope Separation) разработана в Ливерморской национальной лаборатории США и состоит из следующих этапов:

1) испарение атомов урана при высокой температуре в вакууме (2300°C , $P = 10^{-7}$ атм, электронный пучок выбивает атомы урана из уран-ренийевого сплава);

2) облучение ксеноновым лазером ($\lambda \sim 3780 \text{ \AA}$, или $3,78 \cdot 10^{-5} \text{ см}$, ультрафиолетовый диапазон); селективное возбуждение атомов ^{235}U ;

3) облучение криптоновым лазером ($\lambda \sim 3500 \text{ \AA}$, или $3,5 \cdot 10^{-5} \text{ см}$), происходит селективная ионизация возбужденных атомов ^{235}U ;

4) сбор ионизированных атомов ^{235}U на заряженной пластине.

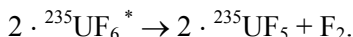
4.2. Лазерное обогащение молекул UF_6

Технология лазерного обогащения гексафторида урана MLIS (Molecular Laser Isotope Separation) разработана в Лос-Аламосской национальной лаборатории США и состоит из трех стадий:

1) смесь $\text{UF}_6 + \text{H}_2$ охлаждается до 30 К без конденсации, чтобы все молекулы UF_6 находились в основном невозбужденном состоянии;

2) облучение инфракрасным лазером ($\lambda \sim 16000 \text{ \AA}$, или $1,6 \cdot 10^{-4} \text{ см}$), происходит селективное возбуждение молекул $^{235}\text{UF}_6$;

3) облучение ультрафиолетовым лазером ($\lambda \sim 308 \text{ \AA}$, или $3,08 \cdot 10^{-6} \text{ см}$), происходит селективная диссоциация возбужденных молекул:



Белый порошок $^{235}\text{UF}_5$ («лазерный снег») выпадает из смеси.

Коэффициент обогащения лазерных методов составляет от 3 до 15, по разным экспериментальным данным. Такие рекордно высокие коэффициенты обогащения позволяют использовать отвалы ГД-заводов, содержащие уран с 0,2–0,3% ^{235}U . За один цикл обогащения отвального урана можно получить уран, содержащий около 3% ^{235}U , т.е. пригодный для энергетических легководных реакторов.

5. Химические методы обогащения урана

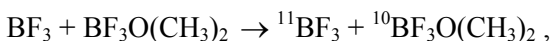
Химические методы изотопного обогащения основаны на различной устойчивости изотопов в разных химических соединениях. При контакте разновалентных химических соединений одного элемента между ними может происходить изотопный обмен.

Условия химического разделения изотопов:

- 1) соединения должны быть химически устойчивы при контакте;
- 2) соединения должны легко разделяться (не смешиваться) – например, органические и неорганические соединения.

Примеры химического разделения изотопов.

1. Обогащение бора изотопом ^{10}B :



т.е. ^{10}B накапливается в органической фазе.

2. Производство тяжелой воды:



В природном водороде содержится 0,015% дейтерия. При реакции изотопного обмена между водой и сероводородом дейтерий переходит в водную фазу и там накапливается.

Химические методы изотопного обогащения бора и водорода характеризуются коэффициентом разделения $\sim 1,0025$ и энергоемкостью 400–700 кВт·ч/ЕРР.

В настоящее время в США и Японии разрабатывается химическая технология обогащения урана, использующая UF_6 и NOUF_6 в качестве контактирующих соединений. Процесс называется «окислительно-восстановительная хроматография» и осуществляется чередованием окислительных реакций с газообразным кислородом и восстановительных реакций с газообразным водородом. В итоге удается разделить соединения с ионами уранила UO_2^{++} (6-валентный уран; ^{235}U здесь более устойчив) и U^{4+} (4-валентный уран; ^{238}U более устойчив в таких соединениях). В экспериментальных условиях получены достаточно хорошие показатели по коэффициенту разделения (до 1,08) и энергоемкости (150 кВт·ч/ЕРР).

6. Плазменный метод

Плазменный метод изотопного обогащения основан на эффекте ионного циклотронного резонанса. В чем же состоит этот эффект?

Под действием силы постоянного магнитного поля

$$F = q \cdot [\vec{V} \times \vec{B}]$$

заряженные частицы (ионы) вращаются по спирали вокруг силовых линий магнитного поля. Радиус орбиты и частоту вращения можно определить из уравнения

$$F = q \cdot V \cdot B = mV^2/R;$$

$$R = m \cdot V / (q \cdot B) = (2m \cdot E)^{1/2} / (q \cdot B).$$

Частота вращения $\omega = V/R = q \cdot B/m$. Это и есть ионная циклотронная частота (ИЦЧ).

Примерная схема плазменного метода представлена на рис. 9.

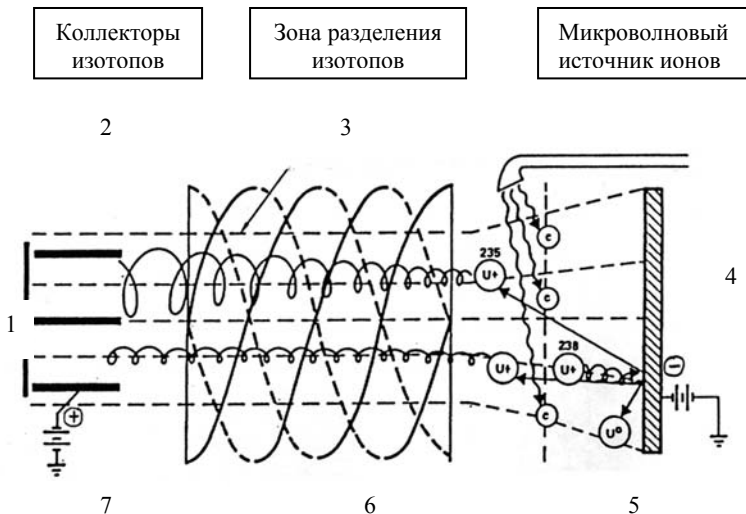


Рис. 9. Схема плазменного метода изотопного обогащения: 1 – коллекторы обедненного материала; 2 – коллекторы обогащенного материала; 3 – линии магнитного поля; 4 – металлическая пластина – источник нейтральных частиц; 5 – зона электронного разогрева; 6 – антенна осциллирующего электрического тока; 7 – зарядка коллекторов для усиления разделения изотопов

Если к потоку частиц приложить переменное электрическое поле с частотой, равной ИЦЧ данного изотопа, то только он будет по-

глощать энергию этого поля. Селективное повышение энергии ионов этого изотопа увеличит радиус спиральной траектории его вращения вокруг силовых линий магнитного поля. В результате создается возможность пространственного разделения ионов разных изотопов. У изотопов урана разность ИЦЧ составляет около 1% (3/238). Эта разность позволяет организовать процесс собирания ионов ^{235}U и ^{238}U селективно на соответствующим образом расположенных коллекторах.

Данные по коэффициенту обогащения урана плазменным методом пока отсутствуют. Метод исследуется на задачах обогащения сравнительно легких элементов.

Технологии обогащения урана с точки зрения нераспространения ядерного оружия

1. Газовая диффузия:

- а) техническая сложность ГД-процесса;
- б) низкий коэффициент обогащения ($\varepsilon' = 0,0043$);
- в) высокая энергоемкость (2300–2600 кВт·ч/ЕРР). В США три ГД-завода потребляют 6,9 ГВт (э) при производительности около 24 млн ЕРР в год. Такой расход электроэнергии имеет место в городе с населением в 3–4 миллиона человек;
- г) маловероятно тайное создание ГД-производства.

2. Газовая центрифуга:

- а) техническая сложность ГЦ-процесса;
- б) сравнительно высокий коэффициент обогащения ($\varepsilon' = 0,2–0,3$) и малая энергоемкость (100–300 кВт·ч/ЕРР) делают ГЦ-технологию опасной с точки зрения нераспространения ядерного оружия.

3. Разделительное сопло:

- а) менее сложный метод, чем ГД и ГЦ-технологии;
- б) меньшая эффективность обогащения ($\varepsilon' = 0,025$), чем у ГЦ;
- в) энергоемкий метод (3000 кВт·ч/ЕРР против 2300–2600 кВт·ч/ЕРР у ГД-метода и 100–300 кВт·ч/ЕРР у ГЦ-метода);

Как следствие, меньшая опасность метода разделительного сопла для режима нераспространения по сравнению с ГД и ГЦ-технологиями.

4. Лазерный метод:

а) очень эффективный метод с высоким коэффициентом обогащения ($\epsilon' = 3-15$), способен обогащать уран из отвалов;

б) малая энергоемкость (10–50 кВт·ч/ЕРР);

в) наиболее сложный по технологии.

В настоящее время лазерные методы постоянно совершенствуются. Они представляют обогатительную технологию, наиболее перспективную и наиболее опасную с точки зрения режима нераспространения ядерного оружия.

Глава 5. ТЕХНОЛОГИИ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ТВЭЛОВ И ТВС

В настоящее время диоксид урана UO_2 является наиболее распространенным и промышленно освоенным видом керамического ядерного топлива. Урановое оксидное топливо применяется в тепловых легководных и тяжеловодных реакторах, а также в реакторах на быстрых нейтронах.

Достоинства диоксида урана:

1) высокая температура плавления (2780°C);

2) химическая устойчивость к основным теплоносителям ядерных реакторов (легкая и тяжелая вода, натрий, углекислый газ);

3) удовлетворительная совместимость с материалами оболочек (нержавеющие стали, циркониевые сплавы) при рабочих температурах;

4) приемлемая радиационная стойкость при высоких нейтронных потоках ($\sim 10^{14}$ нейтр./ $\text{см}^2\cdot\text{с}$) и при высоких флюенсах ($\sim 10^{22}$ нейтр./ см^2 , т.е. в течение примерно 3 лет);

5) возможность изготовления таблеток высокой плотности ($\sim 95\%$ от теоретической плотности; $\gamma_{\text{теор.}}(\text{UO}_2) = 10,96 \text{ г/см}^3$);

6) изотропность кристаллической решетки, что облегчает процесс высокотемпературного спекания.

Недостатки диоксида урана.

1. Низкая теплопроводность, резко уменьшающаяся с ростом температуры ($\lambda = 0,084 \text{ Вт/}(\text{см}\cdot\text{K})$ при 45°C и $0,024 \text{ Вт/}(\text{см}\cdot\text{K})$ при 1327°C). Из-за этого в таблетках UO_2 , имеющих небольшой размер ($R \sim 3 \text{ мм}$), наблюдаются резкие перепады температур от центра к

периферии ($\Delta T \sim 1000\text{--}1500^\circ\text{C}$ на расстоянии 3 мм). Температура центра таблетки $\sim 1500\text{--}2000^\circ\text{C}$, температура оболочки твэла $\sim 350\text{--}700^\circ\text{C}$.

2. Легкая окисляемость на влажном воздухе при комнатной температуре (гигроскопичность). Из-за этого требуется инертная сухая атмосфера или вакуум. Иначе, происходит насыщение влагой поверхности таблетки и адсорбция кислорода в поверхностном слое. Впоследствии влага с поверхности таблетки может вызвать гидрирование оболочки и разрушение твэла.

3. Наличие кислорода смягчает нейтронный спектр и снижает коэффициент воспроизводства вторичного топлива.

Стадии производства таблеток двуокиси урана.

1. *Конверсия гексафторида урана в двуокись.* В настоящее время разработаны и промышленно освоены две технологии конверсии.

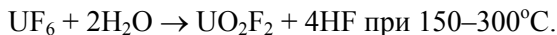
а) «мокрая» технология АУК-процесса включает следующие этапы:

- пропускание гексафторида урана через водный раствор карбоната аммония $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$. Образуется твердый нерастворимый осадок – аммоний-уранил-карбонат (АУК) – $(\text{NH}_4)_4\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$.

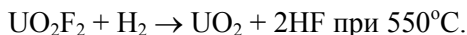
- термообработка АУК при $550\text{--}650^\circ\text{C}$. Происходит термическое разложение АУК с образованием тонко-дисперсного порошка UO_2 .

б) «сухая» технология включает следующие этапы:

- гидролиз гексафторида урана водяным паром. В результате образуется уранил-фторид UO_2F_2 :



- пирогидролиз UO_2F_2 водородом. В результате образуется тонкодисперсный порошок UO_2 и плавиковая кислота HF :



Итак, получен тонкодисперсный порошок UO_2 . Он непригоден для прессования из-за очень малых размеров частиц (менее 0,6 мкм). Для того чтобы укрупнить порошок, производят следующие операции:

2. *Смешивание с пластифицирующими добавками* (поливинил, глицерин в спиртовом растворе).

3. *Гидропрессование*: засыпка в пластиковую форму, помещение в контейнер с жидкостью, создание в контейнере высокого давления – равномерное обжатие, получение брикетов.

4. *Гранулирование брикетов путем их размола*.

5. *Отжиг* при температуре 600–800°C для удаления пластификаторов.

6. *Холодное прессование в таблетки* при давлениях 1500–2000 атм.

7. *Спекание таблеток* при температуре 1600–1700°C.

8. *Контроль качества таблеток и отбраковка по дефектам*, по несоответствию размерам (обычно, диаметр ~ 6–8 мм, высота ~13–16 мм), по содержанию углерода (остатки пластификаторов), по стехиометричности.

Стехиометричность диоксида урана сильно влияет на ее теплопроводность. Общая формула диоксида урана может быть записана, как UO_{2+X} , где X-коэффициент стехиометрии, достигающий 0,2. В оксидных таблетках после спекания коэффициент стехиометрии не должен превышать нескольких процентов (0,02–0,03).

К вопросу о методах изготовления уранового оксидного топлива примыкает вопрос о технологии изготовления смешанного, в основном уран-плутониевого, оксидного топлива. В принципе, возможны три комбинации смешанного оксидного топлива:

1) $\text{PuO}_2 + {}^{238}\text{UO}_2$, где плутоний взят из оружейных ядерных материалов (оружейный плутоний);

2) $\text{PuO}_2 + {}^{238}\text{UO}_2$, где плутоний получен в процессе переработки ОЯТ энергетических реакторов (реакторный плутоний);

3) ${}^{235}\text{UO}_2 + {}^{238}\text{UO}_2$, где ${}^{235}\text{U}$ взят из оружейных ядерных материалов (оружейный уран).

В любом случае имеется принципиальное отличие от схемы производства оксидного топлива из единого источника, когда из природного урана после ряда операций производят таблетки обогащенной диоксида урана. На всех стадиях атомы с ${}^{235}\text{U}$ и атомы с ${}^{238}\text{U}$ гомогенно перемешаны. Изготовление же смешанного оксидного топлива предполагает наличие двух источников:

порошка ${}^{238}\text{UO}_2$, например, из обедненного урана (отвалы обогачительного производства) или из природного урана;

порошка PuO_2 , полученного из оружейного или реакторного плутония, или порошка $^{235}\text{UO}_2$ из оружейного урана.

В этом случае гомогенность смеси (Pu , ^{238}U) или (^{235}U , ^{238}U) не гарантирована. Поэтому смешение порошков $^{238}\text{UO}_2$ и PuO_2 (или $^{235}\text{UO}_2$) должно обеспечивать высокую степень гомогенности смеси. Смешение порошков из различных источников – единственная стадия, отличающая технологию изготовления МОХ-топлива от технологии изготовления традиционного уранового оксидного топлива.

Гомогенность смеси важна с точки зрения безопасности реактора. Дело в том, что воспроизводящий изотоп ^{238}U и делящиеся изотопы ^{235}U , ^{239}Pu по-разному ведут себя при аварийном повышении мощности. В первую очередь разогреваются делящиеся изотопы. Происходит доплеровское уширение захватных и делительных резонансов с суммарным положительным реактивным эффектом. Разогрев воспроизводящего изотопа происходит с некоторым запозданием во времени и приводит к отрицательному доплеровскому эффекту реактивности. Временная задержка тем короче, чем выше гомогенность смеси делящихся и воспроизводящих изотопов. Если воспроизводящие и делящиеся изотопы пространственно разделены (плохое перемешивание), то положительный реактивный эффект делящихся изотопов может успеть «разогнать» мощность реактора до неприемлемо высокого уровня, пока сработает стабилизирующий отрицательный реактивный эффект воспроизводящего изотопа.

На начальном этапе развития ядерной энергетики в двухцелевых тепловых реакторах на природном уране использовалось металлическое топливо (например, в английских реакторах типа «Магнокс»). Эти реакторы обладали малой глубиной выгорания топлива и невысокой энергонапряженностью.

Достоинства металлического урана:

- 1) высокая плотность ($18,7 \text{ г/см}^3$ против 11 г/см^3 у UO_2);
- 2) лучший баланс нейтронов в реакторе; как следствие, либо снижение обогащения, либо уменьшение расхода урана;
- 3) высокая теплопроводность ($0,3 \text{ Вт/(см}\cdot\text{К)}$ против $0,03 \text{ Вт/(см}\cdot\text{К)}$ у UO_2);

4) высокая энергонапряженность; как следствие, уменьшенные размеры активной зоны;

5) более высокий коэффициент воспроизводства;

6) простота и дешевизна изготовления топлива и твэлов.

Однако в современных энергетических реакторах пришлось отказаться от металлического урана в пользу оксидного топлива. Это связано со следующими недостатками металлического урана:

1) несовместимость урана с водой. При дефектах оболочек твэлов происходит быстрое растворение урана в нагретой воде, и радиоактивные ПД распространяются по контурам АЭС;

2) нестабильность размеров при глубоких выгораниях, высоких потоках и флюенсах нейтронов. Радиационные повреждения урана проходят три фазы по мере его разогрева:

а) радиационный анизотропный рост размеров зерен и радиационно-ускоренная ползучесть; $t < 500^\circ\text{C}$;

б) кавитационное распухание при температурах в диапазоне $370\text{--}500^\circ\text{C}$. Кавитационное распухание происходит из-за образования пор неправильной формы при температурах, когда еще сохраняются напряжения, связанные с радиационным ростом зерен. Прочность урана существенно ослабляется, в основном, по границам зерен;

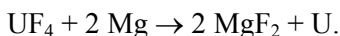
в) газовое распухание (свеллинг) при $t > 500^\circ\text{C}$. Свеллинг обусловлен действием газовых ПД, которые собираются в виде пузырьков на границах зерен.

Удельное распухание $\Delta V/V$ металлического урана составляет 4–6% на 1% выгорания топлива. При типичных выгораниях в тепловых реакторах 3–4% пористость топлива для компенсации распухания должна быть на уровне 18–20%. В быстрых реакторах выгорание достигает 10% и более. А это значит, что пористость металлического топлива в быстрых реакторах должна составлять 40–60%.

Удельное распухание диоксида урана составляет 1,4–1,5% на 1% выгорания топлива. При 10%-ных выгораниях в быстрых реакторах пористость может быть не более 15%. Для сравнения удельное распухание нитрида урана составляет 1,5–1,6%, а карбида урана – 1,7–1,8% на 1% выгорания топлива, т.е. чуть выше распухания диоксида.

Изучаются возможности устранения недостатков металлического урана путем его легирования. В качестве легирующих добавок рассматриваются Mo, Zr, Si, Fe, Al и фиссиум (смесь элементов, имитирующих ПД). Легирование урана Mo (до 10%), Zr или Si повышает коррозионную стойкость урана в воде и устойчивость размеров зерен до 600°C.

Металлический уран производится в реакции UF_4 (зеленая соль) с высокочистыми металлами (Ca или Mg) в герметичном аппарате:



Фторид магния образует легкие шлаки, удаляемые с поверхности, а уран в виде тяжелого металлического слитка скапливается и затвердевает на дне аппарата. Следующий шаг – это вакуумная плавка уранового слитка для удаления летучих примесей и введения легирующих добавок, улучшающих радиационную стойкость урана, а затем отливка в формы с размерами, близкими к размерам топливных стержней ТВЭЛов.

Табл. 8 содержит данные различных типов уранового топлива (металлический уран, диоксид урана, карбид и нитрид урана) по плотности, температуре плавления и теплопроводности.

Таблица 8

Физические свойства уранового топлива

Вид топлива	Плотность, г/см ³	Температура плавления, °C	Теплопроводность, Вт/(см·К)
Металлический уран	18,67	1134	0,28(27°C) 0,44(727°C)
Диоксид урана UO ₂	10,96×238/270 = = 9,66	2780	0,084(45°C) 0,024(1327°C)
Карбид урана UC	13,63×238/250 = = 12,98	2350	0,327(45°C) 0,073(500°C)
Нитрид урана UN	14,32×238/252 = = 13,52	2650	0,16(200°C) 0,21(800°C)

Изготовление твэлов и ТВС. К качеству изготовления твэлов и ТВС предъявляются следующие требования.

1. Конструкция твэлов и ТВС, свойства топливных и конструкционных материалов должны обеспечивать достаточную прочность, устойчивость формы и размеров в течение срока службы в реакторе.

2. Материалы твэла (топливо, оболочка, контактный слой) должны быть химически совместимы и диффузионно стабильны, т.е. исключать взаимодействие топлива с оболочкой, ведущее к деградации свойств топлива и оболочки (охрупчивание, потеря пластичности).

3. Материал оболочки должен быть мало растворимым и коррозионно-стойким к действию теплоносителя.

4. Конструкционные материалы твэлов и ТВС должны иметь минимальное сечение поглощения нейтронов.

5. Конструкция и технология изготовления твэлов должна исключать возможность локальных перегревов. Отсюда: а) равномерное распределение делящихся ЯМ по объему твэла; б) контактный слой между топливом и оболочкой, заполненный гелием или натрием, для предотвращения контактов топливо-оболочка; в) жесткое дистанционирование твэлов с учетом возможного изменения межтвэльного зазора в процессе эксплуатации.

6. Конструкция и технология изготовления твэлов и ТВС должны быть достаточно просты для массового изготовления.

7. Конструкция, технология и материалы твэлов и ТВС должны учитывать применение в дальнейшем достаточно дешевой и простой технологии разборки ТВС и твэлов для переработки ОЯТ.

Технологические стадии изготовления твэлов и ТВС. Изготовление твэлов и ТВС из уранового оксидного топлива для энергетических легководных реакторов включает следующие этапы.

1. Подготовка ядерного топлива (конверсия UF_6 в UO_2 ; приготовление порошков; гранулирование и спекание таблеток).

2. Подготовка оболочек твэлов (дефектоскопия, контроль качества).

3. Подготовка комплектующих деталей для сборки ТВС (чехлы, концевики, дистанционирующие решетки).

4. Снаряжение твэлов: упаковка таблеток в трубчатые оболочки; установка концевиков; заполнение гелием (как контактный слой и как средство дефектоскопии из-за высокой проникающей способности гелия); герметизация концевиков сваркой; контроль качества твэла. Разработаны следующие способы снаряжения твэлов:

- а) гравитационное (вертикальное) снаряжение;
- б) горизонтальное штоковое;
- в) горизонтальное вибрационное.

В последних двух способах оболочечные трубы размещаются почти горизонтально с малым наклоном ($5-10^\circ$), и таблетки проталкиваются внутрь либо штоком, либо вибрацией. Возможно использование низкочастотной вибрации и высокочастотной (ультразвук). Высокочастотная упаковка наиболее перспективна, так как обеспечивает минимальное растрескивание таблеток и попадание кусочков таблеток в зазор топливо-оболочка.

Сейчас в России (НИИАР, Димитровград) разработана технология изготовления твэлов, альтернативная традиционной таблеточной. В качестве исходного материала используются гранулы оксидного топлива. К ним добавляется $\sim 5\%$ гранул металлического природного урана («геттер»). Эти гранулы засыпаются в трубчатые оболочки и подвергаются вибрационной упаковке. При этом оказывается возможным достижение высокой плотности топлива (более 90% от теоретического значения). Опыт использования твэлов с вибрационно-упакованным оксидным топливом в исследовательском быстром реакторе БОР-60 показал перспективность этой технологии. Достигнуто рекордно высокое выгорание ($\sim 32\%$ т.а.) при удельном распухании $\sim 0,6\% \Delta V/V$ на 1% выгорания топлива. Для сравнения, металлическое урановое топливо распухает со скоростью $4-6\% \Delta V/V$, а таблеточное оксидное топливо – $1-1,5\% \Delta V/V$ на 1% выгорания.

5. Сборка твэлов в ТВС, контроль качества, стендовые испытания.

В заключение отметим, что изготовление твэлов и ТВС является: массовым и автоматизированным производством; высокоточным производством прецизионного класса.

Для изготовления активной зоны РБМК-1000 необходимо примерно 200 тысяч комплектующих деталей, 14 миллионов топливных таблеток, 240 тысяч сварных швов. Все операции осуществляются под строгим контролем качества и под строгим компьютеризованным учетом и контролем ЯМ. Заводы по производству твэлов и ТВС являются важной областью для функционирования систем физической защиты, учета и контроля ЯМ.

В перспективе, при переходе на замкнутый ЯТЦ, даже свежее топливо будет обладать повышенной радиоактивностью. Это потребует применения дистанционных технологий для изготовления твэлов и ТВС. Соответственно усложнятся и системы физической защиты, учета и контроля ЯМ.

Глава 6. ТЕХНОЛОГИЯ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ТОПЛИВА В ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРАХ

Важной частью ЯТЦ является технология использования ядерного топлива в реакторе.

Для того чтобы ядерный реактор мог длительно работать (например, 1–1,5 года, как легководные реакторы), в него должно быть загружено и соответствующим образом размещено ядерное топливо, обеспечивающее достаточно высокий запас реактивности. Это значит, что перед началом работы реактор является надкритическим, но запас реактивности ($K_{эфф} - 1$) подавлен органами регулирования: стержнями из карбида бора, борной кислотой, растворенной в теплоносителе (бор может быть обогащен изотопом ^{10}B , сильным поглотителем нейтронов), выгорающими поглотителями, введенными в состав топлива (например, гадолиний или эрбий).

По мере выгорания топлива и накопления ПД, являющихся паразитными поглотителями нейтронов, наступает момент, когда реактор больше не может далее оставаться критичным. Все регулирующие стержни уже выведены в крайнее верхнее положение, из теплоносителя удалена вся борная кислота. Тем не менее реактор становится подкритичным ($K_{эфф} < 1$). Для продолжения работы ре-

актора оператор должен найти способ повысить его реактивность так, чтобы $K_{эфф}$ снова стал больше единицы. Возможные варианты:

- 1) полная или частичная замена выгоревшего топлива свежим;
- 2) перестановки топлива из одной части активной зоны в другую;
- 3) комбинация двух первых способов (частичная замена выгоревшего топлива на свежее и перестановки ТВС).

Комплекс мер, связанных с этими действиями, называется режимом, или технологией топливных перегрузок.

Итак, первая и главная цель перегрузки – восстановить запас реактивности для обеспечения работы реактора на номинальной мощности в течение заданного времени.

Вторая цель перегрузки – это размещение топлива в активной зоне, обеспечивающее равномерное распределение энерговыделения. При равномерном энерговыделении все ТВС активной зоны работают при максимальной энергонапряженности. Поэтому с загруженного количества топлива будет получена максимальная энерговыработка. Равномерное энерговыделение обеспечивает и равномерное выгорание топлива, т.е. все выгружаемое топливо будет выжжено одинаково.

Однако равномерного энерговыделения и, как следствие, равномерного выгорания топлива невозможно добиться в реакторе с однородной топливной загрузкой. В таком реакторе поле энерговыделения имеет максимум в центре. По мере движения к периферии энерговыделение постепенно уменьшается до нуля на границе активной зоны. Для достижения более или менее равномерного распределения энерговыделения и выгорания топлива в реакторах используется неоднородная топливная загрузка. Например, топливо с пониженным обогащением размещается в центральной части реактора, а по мере движения к периферии обогащение топлива постепенно возрастает. Основные органы регулирования также находятся в центральной зоне реактора. Все это приводит к снижению потока нейтронов и энерговыделения в центральной части реактора и к увеличению этих параметров на его периферии.

Таким образом, дополнительной и очень важной задачей перегрузочных работ является создание топливной загрузки реактора,

обеспечивающую максимально возможную равномерность поля энерговыделения в активной зоне.

Существуют различные варианты перегрузок топлива легководных реакторов.

1. Наиболее простой метод – **«циклическая перегрузка» с равномерным распределением топлива** по реактору и его полная замена после исчерпания запаса реактивности.

Недостатки.

1. Неравномерное распределение поля энерговыделения по реактору. Максимальное энерговыделение примерно в 3 раза выше среднего.

2. Быстрое выгорание центральной части топливной загрузки, в то время как периферийная часть сохраняет свой реактивностный и энергетический потенциал.

3. Быстрое выгорание центра приводит к необходимости иметь большой запас реактивности в начальном состоянии. Этот запас реактивности должен быть подавлен мощными органами регулирования. Поэтому ухудшается нейтронная экономия. Значительная часть нейтронов поглощается органами регулирования.

2. **«Частичная циклическая» перегрузка.** При «частичной циклической» перегрузке выгружается только та часть топлива, которая достигла предельного выгорания. Выгружаемое топливо заменяется на свежее. Топливо, не достигшее предельного выгорания, остается на месте. Активная зона разбивается на ряд концентрических областей, и при очередной перегрузке происходит замена выгоревшего топлива на свежее в очередной зоне от центра к периферии.

Преимуществом такой стратегии перегрузок является примерно одинаковое выгорание выгружаемого топлива.

Недостаток. Свежее топливо загружается в центральные зоны и постепенно смещается к периферии. Это повышает тепловыделение в центральных зонах и ухудшает равномерность поля тепловыделения.

3. **«Рассеянная» перегрузка** (вариант «частичной циклической» перегрузки). При такой перегрузке активная зона разбивается на небольшие локальные группы ТВС, содержащие одинаковые коли-

чества ТВС. Например, вся активная зона может быть разделена на определенное количество групп по четыре ТВС в каждой. При первой перегрузке удаляются только ТВС с номером 1 и заменяются на свежие. При второй перегрузке та же процедура осуществляется с ТВС номер 1 и 2, и т.д. В этом случае свежее топливо не концентрируется в центральной части реактора, а сравнительно равномерно распределяется по всему объему активной зоны. Это снижает коэффициент неравномерности поля тепловыделения.

4. Перегрузки «от периферии к центру». Еще один способ снижения неравномерности тепловыделения заключается в этом методе, который включает не только удаление выгоревшего топлива и введение свежего, но и перестановки частично выгоревших ТВС в направлении от периферии к центру.

При таком режиме перегрузок активная зона разбивается на ряд концентрических областей, содержащих примерно одинаковое количество ТВС. При каждой перегрузке выгружаются ТВС центральной подзоны. На их место перемещаются ТВС второй подзоны, место перемещенных ТВС второй подзоны занимают ТВС третьей подзоны и т.д. В освободившуюся последнюю подзону загружаются свежие ТВС.

В этом случае получается, что в центре всегда находятся ТВС с большим выгоранием топлива, т.е. менее реактивные, чем ТВС периферии. Поэтому поле тепловыделения в центре будет понижено по сравнению с периферией, а неравномерность ухудшена. Будет иметь место чрезмерная депрессия нейтронного потока и тепловыделения в центре. К неравномерности поля тепловыделения добавится снижение эффективности органов регулирования реактора.

5. «Модифицированная рассеянная» перегрузка. Этот способ перегрузки предполагает:

- выделение на периферии активной зоны кольцевого слоя ТВС, содержащего, например, $1/5$ часть всех ТВС реактора;

- разбиение всех ТВС центральной части на локальные группы, по четыре ТВС в каждой;

- во время первой перегрузки из каждой группы удаляются ТВС с номером 1, на их место загружаются ТВС из внешнего кольцевого слоя. Освободившийся внешний слой загружается свежими ТВС.

Преимуществом такой перегрузки является равномерное распределение тепловыделения без всплеска в центре, характерного для «частичной циклической» перегрузки и без депрессии в центре, характерной для перегрузки «от периферии к центру».

6. Равномерно-частичная перегрузка. Предположим, что поле тепловыделения в активной зоне достаточно ровное. Это значит, что время достижения предельного выгорания одинаково для всех ТВС. Например, это время равно 3 годам, а перегрузки совершаются один раз в год. Тогда равномерно-частичная перегрузка (РЧП) заключается в следующем.

1. При первой перегрузке (через 1 год после начала работы реактора) выгружается треть активной зоны, т.е. удаляются ТВС, достигшие ~ 33% предельного выгорания, а на их место ставятся свежие ТВС.

2. При второй перегрузке (через 2 года после начала работы реактора) выгружается еще одна треть активной зоны, т.е. удаляются ТВС, достигшие ~ 67% предельного выгорания, а на их место ставятся свежие ТВС.

3. При третьей перегрузке (через 3 года после начала работы реактора) выгружается треть активной зоны, содержащая ТВС с предельным выгоранием, а на их место ставятся свежие ТВС.

После этого переходного этапа реактор выходит на установившийся режим перегрузок топлива, при котором:

1. В начале каждого годового цикла работы между перегрузками активная зона на треть состоит из свежих ТВС, на треть из ТВС, достигших 33% предельного выгорания, и на треть из ТВС, достигших 67% предельного выгорания.

2. В конце каждого годового цикла работы между перегрузками активная зона на треть состоит из ТВС, достигших 33% предельного выгорания (это бывшие свежие ТВС), на треть из ТВС, достигших 67% предельного выгорания (это бывшие ТВС с 33%-выгоранием) и на треть из ТВС с предельным выгоранием (это бывшие ТВС с 67%-выгоранием). Заменив эти ТВС на свежие, мы возвращаемся к состоянию активной зоны на начало цикла работы реактора.

Достоинством РЧП является выгрузка одинакового количества ТВС, достигших предельного выгорания, при каждой перегрузке. Недостаток же состоит в том, что на первых двух перегрузках из реактора выгружаются ТВС, не достигшие предельного выгорания.

Однако в реальности поле тепловыделения не бывает идеально ровным, т.е. ТВС, находящиеся в разных зонах, достигают предельного выгорания за разное время работы. Выходом из этой ситуации является разбиение активной зоны на ряд подзон, в пределах которых поле тепловыделения можно считать достаточно ровным. В этом случае идея РЧП осуществляется для каждой подзоны отдельно с соответствующим подбором доли ТВС, заменяемых на свежие при каждой перегрузке.

Технологии проведения перегрузок. Все перечисленные выше стратегии перегрузок нуждаются в соответствующем технологическом обеспечении. В принципе перегрузка реакторов может осуществляться следующим образом:

- после останова и расхолаживания реактора, со съемом крышки;
- после останова, но без расхолаживания и съема крышки;
- при пониженной мощности или на полной мощности.

На практике в легководных реакторах используется только схема, предполагающая полный останов реактора. Раз в год реактор останавливается на 4–6 недель, крышка снимается, облученные ТВС (ОТВС) выгружаются, производятся перестановки оставшихся ТВС, загружается свежее топливо. ОТВС выгружаются и транспортируются в бассейн временного хранения под слоем воды.

В быстрых реакторах с жидкометаллическим теплоносителем применяется перегрузка без съема крышки после останова реактора. В перегрузках используется поворотная крышка, на которой расположен перегрузочный механизм. Две эксцентрически вращающиеся системы наводят механизм на необходимую ОТВС, позволяют захватить ее верхний концевик и переставить во внутриреакторное хранилище, размещенное на периферии активной зоны. Там ОТВС временно хранятся для уменьшения активности и остаточного тепловыделения, а затем более простым механизмом (наклонная штанга со скафандром) удаляются из реактора без его ос-

танова. После паровой очистки ОТВС от натрия они хранятся в водном бассейне 6–12 месяцев.

Тяжеловодные реакторы типа CANDU работают в режиме непрерывной перегрузки без остановки реактора и даже без снижения мощности. В таких реакторах ТВС размещаются в горизонтальных каналах (12 ТВС длиной 0,5 м в одном канале) и охлаждаются водой под давлением. Перегрузки ТВС производятся в реакторе, работающем на мощности, по принципу «шлюза». На каждой стороне реактора с горизонтальными каналами располагается перегрузочная машина, работающая как барабанный пистолет. Каждая машина имеет ствол, которые подсоединяются к одному и тому же топливному каналу с разных сторон, открываются пробки канала, давление в машинах и в канале выравнивается, производится перегрузка ТВС, и канал снова закрывается. Одна из машин вводит свежую ТВС, другая принимает выталкиваемую облученную ТВС с другого конца канала. Каждая машина имеет 6 накопительных камер, по две ТВС в камере. За один подход к реактору могут быть перегружены 12 ТВС (один канал). ТВС перемещаются в направлении движения теплоносителя. В двух соседних каналах реактора CANDU направление движения теплоносителя меняется на противоположное. Таким образом, в двух соседних каналах перегрузка осуществляется в противоположных направлениях. Ввод свежих ТВС равномерно на периферию всех каналов с разных сторон способствует повышению энерговыделения на периферии реактора и выравнивает поле энерговыделения.

Перегрузка реакторов типа РБМК также производится непрерывно на работающем реакторе. Для этого используется специальная разгрузочно-загрузочная машина (РЗМ) и принцип «шлюза», как и в реакторах CANDU. РЗМ выполняет следующие операции в процессе перегрузок:

1. РЗМ, заполненная конденсатом (30°C), стыкуется с каналом.
2. В скафандре РЗМ, куда будет помещена ОТВС, устанавливается давление, равное давлению в канале (75 атм).
3. Канал замыкается на РЗМ, и в него подается холодный конденсат.
4. Производится захват и извлечение ОТВС.

5. Проходимость канала проверяется имитатором ТВС.

6. Свежая ТВС устанавливается в канал.

7. Канал герметизируется, давление в РЗМ уменьшается до атмосферного, РЗМ и канал расстыковываются.

Ясно, что реакторы, допускающие перегрузки без снижения мощности и без разгерметизации реактора, т.е. тяжеловодные реакторы типа CANDU и водографитовые реакторы типа РБМК представляют наибольшую сложность для учета и контроля ЯМ, для проведения инспекций и, как следствие, наибольшую опасность для режима нераспространения ядерного оружия.

После удаления из реактора облученные ТВС некоторое время хранятся в водном бассейне, непосредственно на АЭС. Это промежуточное хранение ОТВС перед отправлением их на химическую переработку, либо на окончательное захоронение в геологических формациях имеет целью снижение активности и остаточного тепловыделения ОТВС.

Бассейны-хранилища ОТВС оснащены следующими системами: системой теплоотвода;

ионо-обменной установкой очистки воды и удаления твердых радиоактивных частиц;

вентиляционной системой с фильтрами для очистки воздуха и удаления газообразных радиоактивных веществ.

Длительность промежуточного хранения ОТВС легководных реакторов составляет 3–10 лет. Такая же длительность выдержки используется и для ОТВС быстрых реакторов. Ранее считалось, что внешний топливный цикл быстрых реакторов должен быть достаточно коротким, чтобы обеспечить развивающуюся ядерную энергетику плутонием. Поэтому длительность выдержки ОТВС принималась равной 0,5–1 год. Поскольку сейчас не планируется быстрое развитие ядерной энергетики, нет необходимости в короткой выдержке ОТВС быстрых реакторов. Поэтому ОТВС тепловых и быстрых реакторов выдерживаются примерно одинаковое время.

После промежуточного хранения ОТВС могут быть отправлены на захоронение в геологические формации (открытый ЯТЦ) или на химическую переработку (замкнутый ЯТЦ). Сравнительно долгий срок выдержки, слабое развитие технологии захоронения ОТВС и

рецикла вторичного ядерного топлива приводит к постепенному исчерпанию вместимости бассейнов-хранилищ на АЭС. Для компенсации этого процесса используют:

более плотное размещение ОТВС;

секционирование бассейнов металлоконструкциями, содержащими нейтронные поглотители (бористые стали);

строительство централизованных хранилищ ОТВС (одно из таких хранилищ сооружается в Красноярске).

Глава 7. ТРАНСПОРТИРОВКА ОБЛУЧЕННОГО ТОПЛИВА

ОТВС перевозятся в специальных контейнерах всеми видами транспорта (железнодорожным, автомобильным, водным), кроме авиационного. Согласно нормативным документам России перевозки материалов с удельной активностью выше, чем 2 мкКи/кг, являются радиационными перевозками. Удельная активность ОЯТ $\sim 10^3$ Ки/кг.

Контейнеры для перевозок ОТВС весят 80–110 т, причем доля ОТВС составляет лишь 2–5% общей массы контейнера. Остальное – системы обеспечения безопасности транспортировки. По данным на 1976 г., стоимость типичного контейнера массой 100 т, вмещающего 12 ОТВС реактора PWR, составляет 425 тыс. дол., а вместе со специальным вагоном для перевозок – 1,3 млн дол. Время в пути от АЭС до радиохимического завода составляет 10–20% от времени всех транспортных операций.

Обычно транспортный контейнер представляет собой:

1) крупный полый толстостенный цилиндр горизонтальной или вертикальной ориентации (диаметр $\sim 1,5$ –2 м; высота ~ 4 –6 м; толщина стенки ~ 40 см), изготовленный из стали, чугуна или бетона;

2) внешняя поверхность контейнера снабжена специальным оребрением для увеличения площади теплоотвода (~ 30 м²). Такое оребрение примерно удваивает площадь поверхности контейнера;

3) внутренняя поверхность контейнера облицована нержавеющей сталью для усиления коррозионной стойкости. Во внутрен-

нюю облицовку контейнера могут включаться слои замедлителя и поглотителя нейтронов (например, борированный полиэтилен);

4) во внутренней полости контейнера находятся металлические стеллажи, на которых размещаются ОТВС. При транспортировке внутренняя полость заполнена теплоносителем. Тепло отводится от ОТВС в режиме естественной конвекции или принудительной циркуляции теплоносителя, в зависимости от уровня тепловыделения;

5) герметизация осуществляется крышками с усиленным уплотнением;

6) контейнеры оснащены системой контроля параметров внутренней полости (активность, тепловыделение, температура, давление) и аварийной системой дезактивации.

К конструкциям транспортных контейнеров предъявляются следующие требования.

1. Обеспечение радиационной безопасности персонала, населения и окружающей среды от нейтронного и гамма-излучения (металлический корпус с замедлителями и поглотителями нейтронов).

2. Обеспечение ядерной безопасности (металлические стеллажи с поглотителями нейтронов, ограничение количества перевозимых ТВС).

3. Обеспечение герметичности контейнера в аварийных ситуациях. Для контроля герметичности контейнеры подвергаются испытаниям:

падение с высоты 9 м на стальную плиту;

падение с высоты 1 м на вертикальный металлический стержень (диаметр стержня ~ 15 см);

погружение в воду на глубину ~ 15 м на 8 ч;

пребывание в пламени (имитация пожара) при температуре 800°С в течение 30 минут, а затем 2 ч без принудительного охлаждения.

4. Обеспечение надежного теплоотвода (оребрение внешней поверхности, циркуляция теплоносителя во внутренней полости).

В табл. 9 приведены данные по стандартным контейнерам, используемым для транспортировки ТВС легководных реакторов.

Контейнеры для транспортировки ТВС легководных реакторов

Тип реактора	Форма	Масса, т	Диаметр, высота, м	Защита	Масса топлива, т	Число ТВС	Теплоноситель
ВВЭР-440	Вертикальный цилиндр	90	2,3 4,4	Сталь, 40 см	3,8	30	Вода, гелий
ВВЭР-1000	Горизонтальный цилиндр	110	2,1 6,1	Сталь, 41 см	3,0	6	Вода
PWR BWR	-"-	70	1,5 5,4	Сталь, UO ₂	4,0	7(PWR) 18(BWR)	Вода

МАГАТЭ сформулировало следующие требования к теплофизическим параметрам контейнеров:

а) температура поверхности контейнера не должна превышать 82°C при температуре окружающего воздуха 38°C;

б) давление внутри контейнера не должно превышать 7 атм;

в) внешняя поверхность контейнера должна быть развита оребрением: 30 м² поверхности достаточно для транспортировки ТВС с суммарной мощностью 25–30 кВт (это тепловыделение 30 ТВС реактора ВВЭР-440 после 3-летней выдержки) без принудительного охлаждения ТВС.

Глава 8. ТЕХНОЛОГИИ ПЕРЕРАБОТКИ ОБЛУЧЕННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

Переработка ОЯТ преследует следующие цели:

1) выделение плутония и оставшегося урана для повторного использования их как делящихся и воспроизводящих ЯМ;

2) отделение ПД и трансурановых элементов для дальнейшей обработки как РАО.

Около 7000 т ОЯТ в год выгружается со всех АЭС мира. Мощности существующих и строящихся установок для переработки ОЯТ приведены в табл. 10. Видно, что существующие мощности не способны перерабатывать все ОЯТ, производимое на АЭС мира.

Мощности по переработке ОЯТ

Страна	Установка	Мощность, т/год
Великобритания	B-205	1500
	THORP	1200
Франция	UP-2	800
	UP-3	900
Россия	РТ-1	400
Индия	Prefre-1	100
	Prefre-2	100
Япония	Токаи-мура	90
Строящиеся		
Россия	РТ-2	1500
Япония	Рокашо-мура	800

ИТОГО: ~ 5100 т/год в эксплуатации, 2300 т/год – строятся.

МАГАТЭ выработало следующие рекомендации по качеству переработки ОЯТ энергетических легководных реакторов для стандартного режима эксплуатации (выгорание – 33 ГВт·сут/т; выдержка после удаления из реактора – 10 лет):

степень извлечения урана и плутония – не менее 99,9%;

коэффициенты очистки (отношение содержания примеси до переработки к содержанию примеси после переработки):

а) урана от плутония – на уровне 10^7 ;

б) урана от продуктов деления – на уровне 10^7 ;

в) плутония от урана – на уровне 10^6 ;

г) плутония от продуктов деления – на уровне 10^8 .

Столь высокие коэффициенты очистки урана и плутония от ПД дали основание называть эту концепцию «чистое топливо – грязные отходы». Она привлекательна для замыкания ЯТЦ, но создает проблемы с нераспространением делящихся ЯМ. Поэтому когда были развиты технологии переработки ОЯТ, сознательно оставляющие часть ПД в топливе для упрочения режима нераспространения, возникла новая концепция «грязное топливо – чистые отходы».

Классификация методов переработки ОЯТ

1. Водные («мокрые») методы переработки:

а) экстракционные технологии: селективное извлечение урана и плутония из растворов органическими соединениями;

б) осадительные технологии: образование труднорастворимых соединений урана и плутония и выпадение их из растворов.

2. Неводные («сухие») методы переработки:

а) пирохимические процессы, например газофторидная технология, основанная на разной летучести и сорбционной способности фторидов урана, плутония и ПД;

б) пирометаллургические процессы, например электрорафинирование, основанное на различии в переносе урана, плутония и ПД в расплавах солей.

Наиболее распространенными и промышленно освоенными являются водные экстракционные технологии.

Основные стадии водной экстракционной технологии переработки ОЯТ (технология PUREX)

1. Разборка ОТВС и резка твэлов.
2. Предварительное окисление ОЯТ (волоксидация).
3. Растворение твэлов и подготовка раствора к экстракции.
4. Экстракционная переработка (циклы «экстракция–реэкстракция»).

Рассмотрим отдельные стадии переработки подробнее.

Разборка ОТВС и резка твэлов. Итак, оксидное ОЯТ легководных реакторов после выдержки в течение нескольких лет, поступает на РХЗ. Производится:

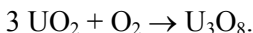
расчехловка ОТВС (обрезка концевиков, продольная разрезка чехлов дисковыми пилами, разборка решетки твэлов);

резка твэлов, например, гильотинными ножницами, на куски длиной 2,5–5 см. Как вариант – лазерная резка твэлов (шов – 0,5 мм) в инертной атмосфере (азот или аргон).

Расчехловка ОТВС и резка твэлов осуществляется в закрытой камере, в инертной атмосфере (ранний вариант – под водой). Иначе

может произойти высвобождение газовых ПД и мелких частиц циркония, а металлический цирконий горит на воздухе.

Предварительное окисление ОЯТ (волоксидация). Следующий этап подготовки ОЯТ к химической переработке заключается в предварительном окислении ОЯТ в атмосфере кислорода при повышенной температуре (450–750°C). При этом диоксид урана UO_2 переходит в октаоксид урана U_3O_8 :



Это приводит к следующим эффектам:

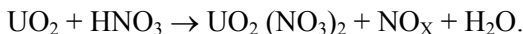
происходит разуплотнение топлива. Из-за разной плотности UO_2 и U_3O_8 ($\gamma(\text{UO}_2) = 11 \text{ г/см}^3$, $\gamma(\text{U}_3\text{O}_8) = 8,3 \text{ г/см}^3$) объем топлива может увеличиться на 30%, т.е. увеличивается пористость и разрыхленность топлива;

изменяется кристаллическая решетка;

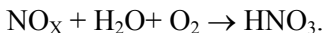
как следствие первых двух эффектов, создаются условия для интенсивного выхода газообразных ПД и трития из ОЯТ;

разрыхление топлива способствует процессу его дальнейшего растворения в кислотных растворах.

Растворение ОЯТ. Растворение оксидного ОЯТ происходит в кипящей ($t \sim 100^\circ\text{C}$) азотной кислоте HNO_3 при концентрациях 6–12 М в течение 4–6 часов:



Одновременно происходит регенерация азотной кислоты. Для ее усиления в аппарат-растворитель вводят кислород или воздух:



В процессе растворения ОЯТ оболочки твэлов, изготовленные из циркониевых сплавов и нержавеющей сталей, не растворяются и удаляются для дальнейшей переработки как твердые РАО.

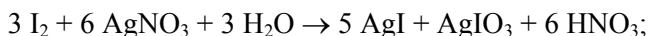
Подготовка раствора ОЯТ к экстракции. Подготовка раствора к экстракции включает следующие этапы:

1. Осветление раствора:

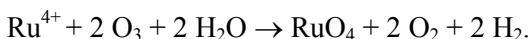
фильтрация для удаления твердых частиц (размер ~ 3 мкм) через металлокерамику или пористый полипропилен с добавлением коагулянтов (например, желатина) для слипания и укрупнения частиц; центрифугирование с добавлением коагулянтов (позволяет убирать частицы с размерами порядка 1 мкм).

2. Удаление из растворов некоторых летучих и газовых ПД:

барботаж раствора (прокачка воздуха) для удаления йода в виде ионов I^- , IO_3^- . Из барботажных газов йод удаляется фильтрами с нитратом серебра $AgNO_3$:



барботаж раствора озоном для удаления рутения Ru^{4+} :



оксид RuO_4 удаляется из барботажных газов реакцией с $NaOH$;

удаление инертных газов Kr и Xe барботажем с последующей сорбцией на цеолите (пористый минерал) или активированном угле при низких температурах. Затем оставшиеся газы разбавляются воздухом до приемлемых концентраций и выбрасываются в атмосферу.

3. Корректировка кислотности раствора добавлением воды или упариванием, чтобы довести кислотность до уровня $2-4 M HNO_3$.

Экстракция. Экстракция ОЯТ почти полностью аналогична экстракционному аффинажу при извлечении урана из урановой руды. При экстракционном аффинаже производится растворение уранового концентрата U_3O_8 в азотной кислоте с образованием уранил-нитрата $UO_2(NO_3)_2$, затем – экстракция с помощью ТБФ, реэкстракция перекисью водорода H_2O_2 или бикарбонатом аммония NH_4HCO_3 , и осаждение нерастворимых соединений урана.

Аналогия нарушается лишь тем, что раствор ОЯТ содержит обогащенный уран в смеси с плутонием и ПД, и тем, что раствор ОЯТ

обладает повышенной радиоактивностью и тепловыделением, что может приводить к радиолизу раствора и экстрагента.

В качестве экстрагента используется ТБФ в смеси с органическим разбавителем для снижения вязкости. Плотность смеси «ТБФ+разбавитель» равна $0,8-0,9 \text{ г/см}^3$, водный раствор ОЯТ несколько тяжелее – $1,1-1,2 \text{ г/см}^3$.

Итак, экстракция – это разделение вещества между двумя несмешивающимися фракциями: легкая органическая фракция (ТБФ и разбавитель) и тяжелая водная фракция (кислотный раствор ОЯТ).

Аппаратная схема экстракции-реэкстракции. Процесс экстракции происходит в двух соединяющихся аппаратах: смесителе и отстойнике. В смеситель подаются раствор ОЯТ и экстрагент. После перемешивания образовавшаяся смесь перекачивается в отстойник, где более легкая органическая фаза (экстракт) собирается на поверхности, а тяжелая фаза (рафинат) занимает нижнюю часть резервуара.

Процесс реэкстракции также происходит в двух соединяющихся аппаратах: смесителе и отстойнике. В смеситель подаются полученная в процессе экстракции легкая органическая фаза (экстракт) и водный промывной раствор. После перемешивания образовавшаяся смесь перекачивается в отстойник, где более легкий экстрагент из органической фазы собирается на поверхности, а более тяжелая водная фаза (реэкстракт) занимает нижнюю часть резервуара. Экстрагент легко удаляется с поверхности смеси и после очистки и регенерации возвращается на стадию экстракции.

Общая схема процессов экстракции-реэкстракции показана на рис. 10.

Введем коэффициент распределения D (Distribution Ratio), характеризующий отношение концентрации элемента в органической фазе к концентрации элемента в водной фазе:

$$D = C_{\text{эл}}(\text{органич. фаза})/C_{\text{эл}}(\text{водная фаза}).$$

Ясно, что если $D > 1$, то соответствующий элемент собирается преимущественно в органической фазе, и наоборот, если $D < 1$, то этот элемент будет собираться преимущественно в водной фазе.

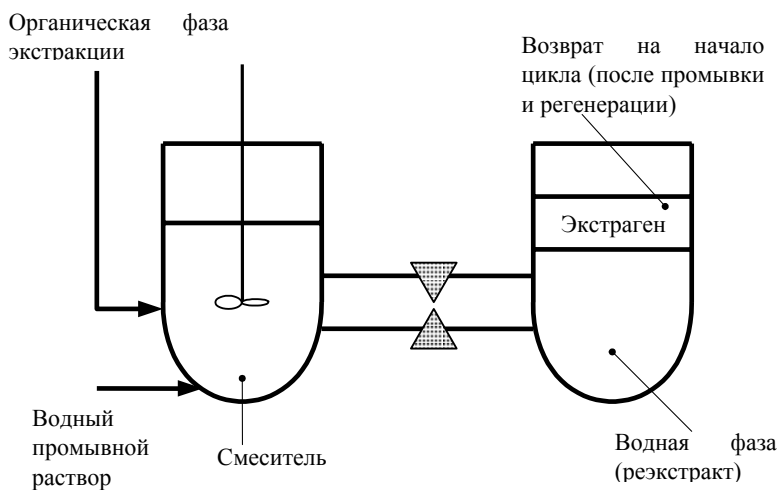
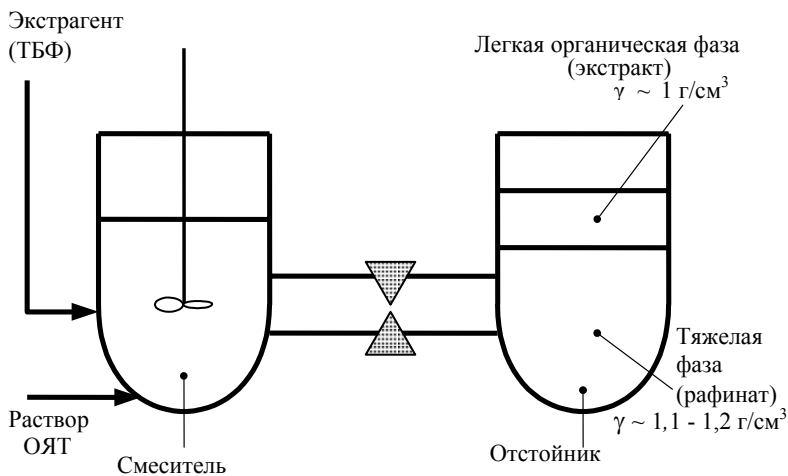


Рис. 10. Экстракция-реэкстракция раствора ОЯТ

На рис. 11 приведены известные квадратичные зависимости коэффициента распределения урана, как типичного представителя

топливных материалов, и циркония, как типичного представителя ПД, от кислотности раствора ОЯТ.

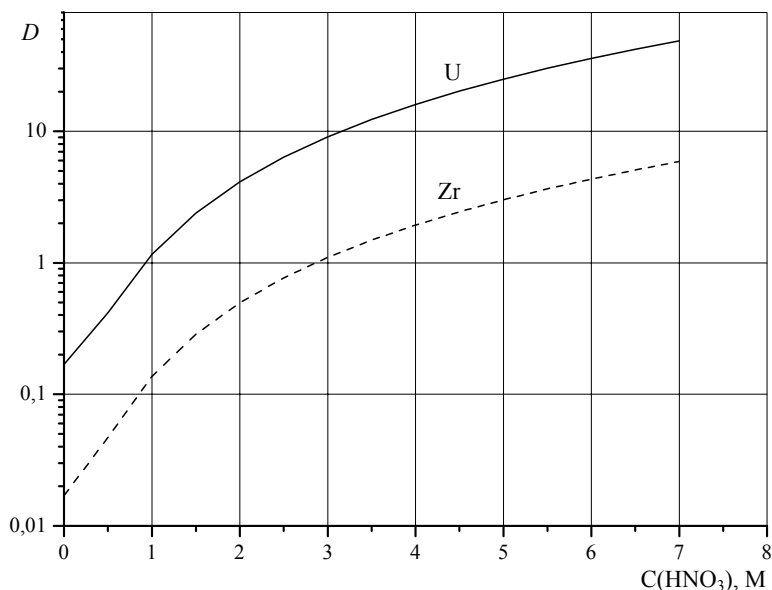


Рис. 11. Зависимость коэффициента распределения от кислотности раствора ОЯТ

Видно, что при концентрации азотной кислоты $C(\text{HNO}_3)$ в диапазоне 2–4 М коэффициент распределения урана больше единицы, и уран собирается в органической фазе, а у циркония коэффициент распределения меньше единицы, и ПД собираются в водной фазе. Этим объясняется стадия корректировки кислотности раствора ОЯТ до 2–4 М. Поэтому экстракция раствора ОЯТ происходит при $C(\text{HNO}_3) = 2\text{--}4$ М, а реэкстракция – при $C(\text{HNO}_3) < 2$ или $C(\text{HNO}_3) = 0$ (водный промывной раствор). В последнем случае коэффициент распределения урана равен примерно 0,1, и уран собирается в водной фазе.

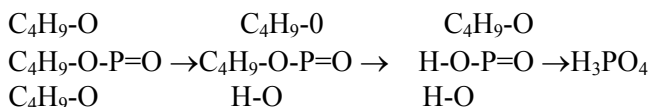
Итак, при $D > 1$, продукт концентрируется преимущественно в органической фазе, а при $D < 1$ – в водной фазе. Предположим, что $D_U = 9$ и на входе в экстракционный процесс мы имеем раствор ОЯТ, содержащий 100 г урана. Тогда после первого цикла экстрак-

ции в органической фазе будет находиться 90 г урана, а 10 г останутся в водной фазе. После второго цикла, использующего на входе водную фазу первого цикла с 10 г урана, еще 9 г урана перейдут в органическую фазу, а 1 г останется в водной фазе. После третьего цикла, когда на входе используется водная фаза второго цикла, еще 0,9 г урана уйдут в органическую фазу, и только 0,1 г урана останутся в водной фазе. Таким образом, 2–3 цикла экстракции–реэкстракции способны выделить 99–99,9% урана из исходного раствора ОЯТ.

Одним из существенных недостатков технологии жидкостной экстракции является радиолиз органических экстрагентов, т.е. их разложение под действием ионизирующего излучения. Чем выше активность раствора ОЯТ, тем быстрее идет радиолиз экстрагента. Удельная активность растворов ОЯТ составляет: до 500 Ки/л для ОЯТ тепловых реакторов и до 1000 Ки/л для ОЯТ быстрых реакторов. Поэтому переработка ОЯТ с глубоким выгоранием затруднена.

Радиолиз ТБФ приводит к следующим эффектам:

1. Разложение ТБФ с разрывом связей C_4H_9-O происходит по схеме:



т.е. ТБФ (соль фосфорной кислоты) сначала переходит в дибутилфосфорную кислоту Н(ДБФ), затем – в монобутилфосфорную кислоту $H_2(МБФ)$, и наконец – в фосфорную кислоту H_3PO_4 : $ТБФ \rightarrow Н(ДБФ) \rightarrow H_2(МБФ) \rightarrow H_3PO_4$.

2. Как следствие, образуются комплексные соединения металлов-ПД в виде солей ДБФ-кислоты, МБФ-кислоты и фосфорной кислоты. Эти соединения накапливаются в органической фазе, что ухудшает коэффициент распределения.

3. Создаются условия для образования «третьей» фазы на границе раздела органической и водной фаз. «Третья» фаза это студнеобразные или плохорастворимые вещества, способные блокировать трубопроводы в оборудовании РХЗ. Эти вещества включают:

соединения делящихся изотопов с продуктами радиолиза ТБФ;

соединения ПД с продуктами радиолиза ТБФ;
продукты радиационной полимеризации молекул разбавителя (керосина) в виде стойких эмульсий.

Регенерация экстрагента. В смеси ТБФ с раствором ОЯТ могут образовываться соли ДБФ-кислоты, МБФ-кислоты и фосфорной кислоты с металлами из состава ПД и ядерного топлива. Для очистки ТБФ производится карбонатно-щелочная промывка (используется смесь соды Na_2CO_3 и щелочи NaOH). В результате этой промывки образуются натриевые соли ДБФ-, МБФ- и фосфорной кислоты. Эти соли хорошо растворяются в воде и легко удаляются водным промывочным раствором.

Недостатки карбонатно-щелочной регенерации ТБФ:

большие объемы среднеактивных отходов;

плутоний, оставшийся в ТБФ, может частично перейти в щелочной раствор, полимеризоваться и выпасть в осадок;

добиться полной очистки ТБФ так и не удастся.

Отделение плутония от урана. В процессе экстракции уран выделяется из раствора ОЯТ в виде комплекса 6-валентного урана $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{ТБФ}$. Что касается плутония, то в растворе ОЯТ он может находиться в 3-, 4- и 6-валентных соединениях:

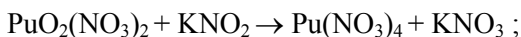
$\text{Pu}(\text{NO}_3)_3 \cdot 3\text{ТБФ}$ для 3-валентного плутония.

$\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 \cdot 2\text{ТБФ}$ для 4-валентного плутония;

$\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{ТБФ}$ для 6-валентного плутония.

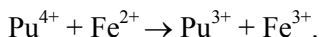
Разделение урана и плутония основано на том факте, что из соединений U^{6+} , Pu^{6+} , Pu^{4+} , Pu^{3+} соединения Pu^{3+} обладают наихудшей растворимостью в органической фазе ТБФ. Поэтому если перевести плутоний в 3-валентное состояние и с этой целью промыть органическую фазу водным восстановительным раствором, то соединения Pu^{3+} могут перейти в этот раствор, а уран останется в органической фазе.

При отделении плутония от урана 6-валентный плутоний восстанавливают сначала до 4-валентного состояния, а затем и до 3-валентного. Плутоний из 6-валентного переводится в 4-валентный с помощью реакции с нитритом калия KNO_2 :



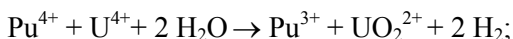
т.е. Pu^{6+} становится Pu^{4+} . Затем Pu^{4+} дополнительно восстанавливается до Pu^{3+} с помощью следующих технологий:

- 1) реакции с соединениями 2-валентного железа:



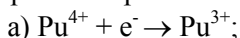
Железо отдает один валентный электрон плутонию;

- 2) реакции с соединениями 4-валентного урана:



- 3) электрохимическое восстановление плутония.

Смесь, содержащая ТБФ и кислотный раствор ОЯТ, помещается в резервуар, стенки которого играют роль катода, а центральный стержень – анода. При пропускании электрического тока через раствор в нем протекают следующие реакции:



и 4-валентный уран действует как дополнительный восстановитель 4-валентного плутония в 3-валентный.

При промывке органической фазы восстановительным раствором в водную фазу уйдет 3-валентный плутоний, а в органической фазе останутся уран и нептуний. Затем проводится реэкстракция урана из органической фазы слабым раствором азотной кислоты HNO_3 . В результате уран перейдет в водную фазу (реэкстракт).

На этом заканчивается цикл экстракции–реэкстракции. Итак, один цикл экстракции–реэкстракции состоит из следующих этапов:

- 1) растворение ОЯТ в азотной кислоте;

- 2) экстракция соединений урана и плутония из раствора с помощью органического экстрагента (ТБФ). Уран и плутоний переходят в органическую фазу;

- 3) реэкстракция восстановительным раствором. 6- и 4-валентный плутоний переходит в 3-валентное состояние и уходит в водную фазу;

- 4) реэкстракция урана из органической фазы разбавленной азотной кислотой. Уран уходит в водную фазу.

Обычно проводится не более 2–3 циклов экстракции–реэкстракции, не более. Количество циклов влияет на содержание ПД в уране и плутонии, т.е. на защищенность урана и плутония от распространения. Уран и плутоний, загрязненные радиоактивными ПД, мало привлекательны для хищения и мало пригодны для изготовления ядерного взрывного устройства оружейного класса. Малое количество циклов экстракции–реэкстракции укладывается в рамки концепции «грязное топливо–чистые отходы».

Особенности переработки ОЯТ быстрых реакторов

ОЯТ быстрых реакторов (ОЯТ-БР) характеризуется более глубоким выгоранием, чем ОЯТ тепловых реакторов (ОЯТ-ТР). В быстрых реакторах выгорание может достигать 100 ГВт·сут/т, а в тепловых реакторах – примерно 40 ГВт·сут/т. Как следствие, ОЯТ-БР содержит повышенное количество плутония и ПД (содержание ПД ~ 10% против 3–4% в ОЯТ-ТР, содержание плутония – до 20% против ~ 0,7% в ОЯТ-ТР).

В результате этого переработка ОЯТ-БР характеризуется следующими отличительными особенностями.

1. Усиливается радиолитиз растворов и экстрагентов.
2. Из-за повышенного содержания летучих ПД (I, Kr, Xe, T) усложняется система газоуловителей при резке и растворении ОЯТ.
3. Из-за повышенного содержания плутония снижается эффективность ТБФ (ухудшенная растворимость диоксида плутония).
4. Из-за повышенной радиоактивности усложняется система дистанционного управления процессом.
5. Объем жидких радиоактивных отходов высокой активности (ВАО) возрастает примерно в 5 раз по сравнению с переработкой ОЯТ тепловых реакторов. При переработке ОЯТ-БР образуется около 10 м³ ВАО на тонну ОЯТ против 1–3 м³ ВАО на тонну ОЯТ-ТР.

Контроль за нераспространением ЯМ на РХЗ

РХЗ представляют собой один из самых чувствительных участков ЯТЦ с точки зрения контроля за нераспространением ЯМ. В

этом смысле, главная проблема РХЗ – контроль за плутонием. При учете и контроле ЯМ на РХЗ сталкиваются со следующими трудностями.

1. Большие количества плутония. Мощность РХЗ Франции составляет 800-900 т ОЯТ в год, РХЗ Великобритании – 1200–1500 т/год. Одна тонна ОЯТ легководных энергетических реакторов содержит 6–7 кг плутония, т.е. через РХЗ проходит от 5 до 10 т плутония в год.

2. Высокая точность контроля. Значимое количество плутония SQ(Pu), принятое МАГАТЭ, составляет 8 кг. Комиссия по ядерному регулированию США (NRC) приняла еще более жесткое ограничение по контролю за плутонием, SQ(Pu) = 2 кг. Следовательно, количество плутония на РХЗ должно контролироваться с точностью до 1 кг и лучше. При среднегодовых количествах плутония, проходящих через РХЗ, в 10 т, точность контроля должна быть на уровне $\sim 10^{-2}\%$. Реально достижимая точность измерения количества плутония составляет 0,1%.

Согласно требованиям регулирующих органов России и США, допустимый плутониевый дисбаланс не должен превышать 0,1%, т.е. на пределе измерительных возможностей. Как следствие, на РХЗ часто проводятся физические инвентаризации (несколько раз в год), завод разбивается на зоны материального баланса, что позволяет локализовать место возможного хищения плутония. Иными словами, процесс контроля и учета плутония делается дискретным во времени и пространстве. Это снижает количество плутония, контролируемого в данной зоне материального баланса и в данный период времени, и позволяет укладываться в рамки допустимых дисбалансов.

3. Разные состояния плутония. На РХЗ плутоний находится в разных фазовых состояниях (твердое, жидкое, в органической фазе, в разных по валентности химических соединениях), участвует в периодических и непрерывных процессах. Разные соединения плутония характеризуются разной привлекательностью для хищения. При оценке плутонийсодержащих ЯМ с этой точки зрения используются следующие факторы:

1. Фактор плотности. Фактор плотности f_1 определяет содержание плутония в различных плутониевых соединениях. Принято

рассматривать значения фактора f_1 в зависимости от удельного объема, т.е. от объема ЯМ, в котором содержится 1 грамм плутония. Также принято, что для металлического плутония $f_1(V_{уд}) = 1$. Плотность металлического плутония – 19,8 г/см³; т.е. его удельный объем составляет $\approx 5 \cdot 10^{-5}$ л/г. Исходная точка зависимости $f_1(V_{уд})$ это 1 при $V_{уд} = 5 \cdot 10^{-5}$ л/г для металлического плутония. Другие плутонийсодержащие ЯМ имеют существенно большие удельные объемы и соответственно меньшие значения фактора привлекательности f_1 (рис. 12).

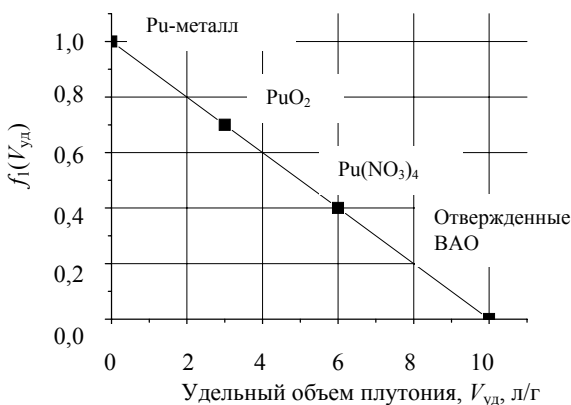


Рис. 12. Зависимость фактора плотности от удельного объема Pu-содержащих материалов

2. *Фактор времени.* Фактор времени f_2 определяется промежутком времени, необходимым группе квалифицированных специалистов, располагающих самым современным оборудованием, для того, чтобы преобразовать плутонийсодержащий ЯМ в заряд ядерного взрывного устройства. Принято, что металлический плутоний может стать таким зарядом за неделю работы, т.е. фактор времени $f_2 = 1$ для металлического плутония при времени 7 сут. Для других плутонийсодержащих ЯМ времена изготовления заряда больше, а значения фактора времени f_2 ниже. Например, для раствора ОЯТ: $t = 20$ дн.; фактор времени $f_2(t) = 0,35$; для отвержденных высокоактивных отходов: $t = 1$ год; фактор времени $f_2(t) = 0,02$ (рис. 13).

3. *Радиационный фактор.* Радиационный фактор f_3 характеризует радиоактивность плутонийсодержащего ЯМ по сравнению с металлическим плутонием, радиационный фактор которого принят за единицу. ЯМ с повышенной активностью имеют пониженное значение фактора $f_3(A)$.

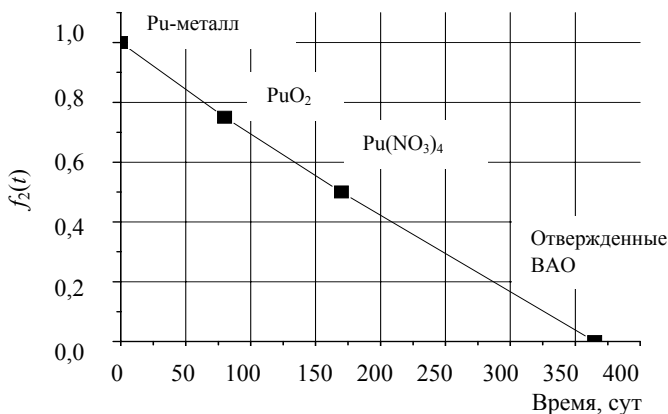


Рис. 13. Зависимость фактора времени от времени

Обобщенный фактор привлекательности плутонийсодержащих ЯМ определяется как произведение трех вышеуказанных факторов: $f_1(V_{уд})$, $f_2(t)$ и $f_3(A)$. В табл. 11 приведены факторы привлекательности различных плутонийсодержащих ЯМ.

Таблица 11

Факторы привлекательности плутонийсодержащих ЯМ

Материал	$f_1(V_{уд})$	$f_2(t)$	$f_3(A)$	$f_1:f_2:f_3$
Pu-металл	1	1	1	1
PuO ₂	0,70	0,90	1	0,63
(U,Pu)O ₂	0,40	0,65	1	0,26
Pu(NO ₃) ₄	0,25	0,80	1	0,20
Раствор ОЯТ	0,06	0,35	0,004	$8 \cdot 10^{-5}$
ОТВС	0,08	0,10	0,004	$3 \cdot 10^{-5}$
Отвержденные ВАО	0,05	0,02	0,001	$1 \cdot 10^{-6}$

Отметим, что факторы плотности $f_1(V_{\text{уд}})$ и активности $f_3(A)$ характеризуют трудности получения плутонийсодержащего ЯМ, связанные с его большим объемом и активностью. А фактор времени $f_2(t)$ характеризует трудность переработки плутонийсодержащего ЯМ в заряд ядерного взрывного устройства.

Перспективные водные технологии переработки ОЯТ с защитой от распространения ЯМ

Водная SAFAR-технология переработки ОЯТ. Основная идея защиты от распространения в этой технологии заключается в неполном разделении урана, плутония и ПД, т.е. на всех стадиях переработки ОЯТ плутоний не будет находиться в виде, удобном для хищения и изготовления ядерного оружия.

Отличия SAFAR-технологии от традиционной водной PUREX-технологии заключаются в следующем.

1. Не производится полное отделение плутония от урана и ПД. Плутоний и уран выделяются совместно, причем только в двух циклах экстракции (а не в трех), т.е. плутоний сознательно загрязняется ураном и ПД (~ 1% от исходного количества). Коэффициент дезактивации составляет примерно 100 вместо 10^6 – 10^7 .

2. Не выделяются чистые диоксиды урана и плутония. Цикл включает производство микросфер из смешанного уран-плутониевого оксидного топлива (МОХ-топливо) по технологии золь-гель процесса.

3. Окончательный продукт переработки – рефабрикованное $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ топливо – обладает повышенной радиоактивностью. Как следствие, непривлекательность для хищения, легкий контроль за перемещениями такого топлива и дополнительные меры для обеспечения радиационной безопасности персонала.

Остановимся подробнее на золь-гель процессе. Золь – это взвесь твердых частиц, а гель – коллоидное вещество. Основная цель золь-гель процесса – это избавиться от операций с порошками UO_2 и PuO_2 (пыльность, мелкие размеры частиц, необходимость равномерного перемешивания и спекания), а работать со сравнительно более крупными гранулами, содержащими гомогенную смесь UO_2 и PuO_2 .

В качестве исходного материала золь-гель процесса используется кислотный раствор ОЯТ после двух циклов отделения ПД. Затем выполняются следующие операции:

добавление в раствор реагентов, повышающих щелочность раствора (например, мочевины $(\text{NH}_2)_2\text{CO}$);

вливание раствора в органическое вещество, поглощающее воду. Обычно для этого используется этилбензоат. В результате из смеси нитратов уранила и плутонила $(\text{U,Pu})\text{O}_2(\text{NO}_3)_2$ получается $(\text{U,Pu})\text{O}_2(\text{OH})_{0.4}(\text{NO}_3)_{1.6}$ в виде коллоидного вещества;

впрыскивание капель получившегося коллоидного вещества в органическую смесь на основе аммиака, которая также убирает воду из коллоида. На выходе образуются желеобразные сферические гранулы размером 40–100 мкм. Химическая формула вещества этих гранул: $(\text{U,Pu})\text{O}_2(\text{OH})_2 \cdot 0,5 \text{NH}_3 \cdot 0,5 \text{H}_2\text{O}$;

термообработка гранул с постепенным повышением температуры: при температуре 95°C происходит отщепление аммиака; при температуре 125–200°C происходит отщепление воды и образование $(\text{U,Pu})\text{O}_2(\text{OH})_4$; при 300–400°C испаряются остатки органических веществ; при температуре 400–500°C происходит прокаливание образовавшихся гранул $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ -топлива.

Затем производится таблетирование гранул или их засыпка в оболочку твэла и вибрационная упаковка.

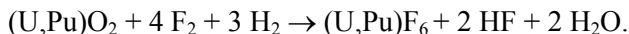
Неводные («сухие») технологии переработки ОЯТ

Пирохимическая газофторидная технология. Цель этой технологии – обеспечить переработку ОЯТ без использования жидких веществ, т.е. без растворителей, экстрагентов, и, как следствие, избавиться от больших объемов жидких ВАО. Газофторидная технология основана на различной температуре кипения, различной летучести и различной сорбционной способности фторидов U, Pu и ПД. При атмосферном давлении температура кипения гексафторида урана равна 56°C, гексафторида плутония – 62°C, т.е. различаются незначительно. При таких температурах основная масса ПД образует нелетучие или малолетучие фториды.

Основные стадии газофторидной технологии:

1) термическое оплавление оболочек твэлов при температуре 1600°C;

2) фторирование топлива в смеси фтора с азотом (20% фтора и 80% азота для снижения коррозии оборудования) при температуре 400°C:



Основная масса фторидов ПД (85%) остается в нелетучем осадке. Уходят фториды урана, плутония и некоторых летучие фториды ПД, а также газообразные ПД (Xe, Kr, I).

3) вымораживание фторидов ПД в фор-конденсаторе при температуре 27°C. Фор-конденсатор представляет собой цилиндрический резервуар, куда сверху, под углом к оси цилиндра, вводится газовый поток. Твердые частицы, содержащиеся в газовом потоке, ударяются о стенки резервуара и выпадают в осадок (удаляются фториды Cs, Ru, Zr и Nb);

4) пропускание газового потока через колонну с гранулами фторида натрия NaF при повышенной температуре. Используется разность в сорбционной способности NaF по отношению к фторидам урана, плутония и ПД при разной температуре: при 100°C на гранулах NaF сорбируются фториды U, Np и Tc; при температуре 400°C – фториды Pu, Ru, Zr и Nb.

5. Десорбция гексафторидов урана UF₆ и плутония PuF₆ с поверхности гранул смесью «фтор(10%)-азот(90%)» при 400°C. Возможно зацикливание UF₆ для большей очистки и последующего обогащения.

Недостатки газифторидной технологии:

1) неполная очистка UF₆ от фторидов ПД, радиоактивное загрязнение оборудования. Из ОЯТ извлекается 99,5% урана, а в UF₆ переходит только 96% урана. В радиоактивных отходах содержится около 0,5% урана; следовательно, примерно 3% урана размазывается по технологическим контурам;

2) плутоний хуже, чем уран, переходит в летучие фториды и тоже размазывается по контурам;

3) технология непригодна для переработки МОХ-топлива из-за высокого содержания плутония.

Пирометаллургическая переработка ОЯТ. Пирометаллургическая технология наиболее приспособлена для переработки металлического ОЯТ. Первоначально она была разработана для перспективных топливных циклов быстрых реакторов-размножителей с высоким КВ на металлическом уран-плутониевом топливе, легированном цирконием (сплав U-Pu-Zr).

В Аргоннской национальной лаборатории (США) до недавнего времени работал быстрый исследовательский реактор EBR-II на металлическом урановом топливе (сплав U-Zr, обогащение урана – 50%). Для его переработки была разработана технология электрохимического рафинирования, схема которого представлена на рис. 14.

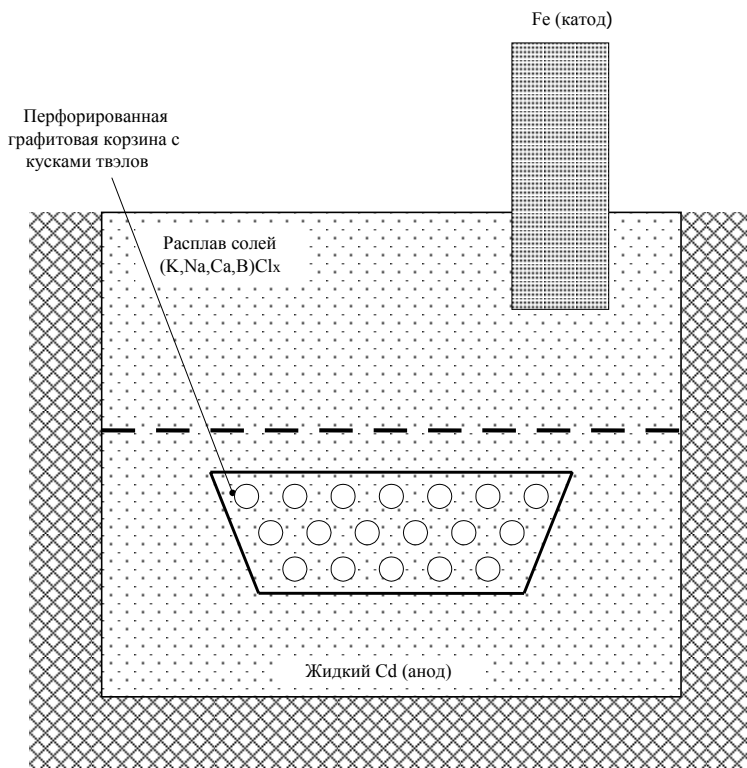


Рис. 14. Схема процесса электрохимического рафинирования

Аппарат для электрохимического рафинирования представляет собой резервуар, заполненный внизу жидким кадмием (анод). Над ним размещается слой расплавленных солей (смесь хлоридов К, Na, Са, Ва). Сверху в расплав солей вводится железный катод.

Электрохимическое рафинирование включает следующие этапы.

1. Облученные твэлы разрезаются на мелкие куски и загружаются в графитовую перфорированную корзину. Корзина с кусками твэлов погружается в слой жидкого кадмия.

2. Топливо растворяется в жидком кадмии. Оболочки твэлов и некоторые ПД остаются в корзине и удаляются вместе с ней для последующей переработки в качестве твердых РАО.

3. Растворенное топливо и ПД распределяются между жидким кадмием и расплавом солей, причем:

а) газовые и летучие ПД уходят в газовую подушку над резервуаром;

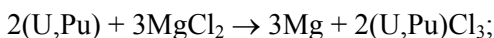
б) щелочные, щелочно-земельные и редкоземельные ПД уходят в расплав солей;

в) уран и плутоний находятся в обоих слоях.

4. При пропускании тока уран, плутоний и часть ПД переходят из жидкого кадмия и расплава солей на железный катод.

Катодный осадок периодически снимается и переплавляется в свежее топливо. Для этого используется вакуумная плавка и литье прутков в кварцевом стекле. Стеклоблок имеет центральную полость с размерами топливного сердечника твэла. Жидкий сплав U-Pu-Zr заливается в эту полость. При остывании стекло отходит от металла, и топливный стержень готов для изготовления твэла.

Для более полной очистки урана и плутония от ПД проводится галоидное шлакование. Уран и плутоний переводятся в хлориды:



и хлориды урана и плутония возвращаются в соляной расплав. Но даже при использовании этой процедуры, коэффициенты очистки топлива от ПД невелики (10^2 – 10^3 против 10^6 – 10^8 в PUREX-процессе).

Концепция интегрального быстрого реактора IFR. В Аргоннской национальной лаборатории (США) разработан проект

модульного быстрого реактора с интегрированным ЯТЦ, включающим пирометаллургическую переработку ОЯТ. Этот проект назван IFR (Integrated Fast Reactor).

Особенности проекта IFR.

1. Модульный быстрый реактор малой мощности (170 МВт(э)) на металлическом U-Pu-Zr топливе с натриевым теплоносителем.

2. Малые размеры реактора и малые объемы топлива с повышенным обогащением.

3. Совместное размещение АЭС и пирометаллургической перерабатывающей установки на одной площадке.

Достоинства проекта:

пассивная безопасность из-за теплофизических свойств натрия и большой утечки нейтронов из активной зоны малых размеров;

заводское изготовление модульного реактора малых размеров. Отсюда – высокое качество изготовления, надежность, меньшие затраты, возможность стандартизации;

сокращение времени на строительство и, как следствие, снижение риска капиталовложений (и самих капиталовложений);

повышенная защита от неконтролируемого распространения ЯМ:

а) уран и плутоний не разделяются при переработке;

б) низкая степень очистки урана и плутония от ПД и трансурановых элементов; как следствие, вторичное топливо характеризуется повышенной радиоактивностью, тепловыделением и генерацией нейтронов спонтанного деления;

в) отсутствие дальних перевозок между АЭС и перерабатывающей установкой.

К недостаткам проекта можно отнести только малую мощность реактора. С экономической точки зрения реакторы большой мощности предпочтительны.

DUPIC-технология. Технология DUPIC (Direct Use of spent PWR fuel in CANDU reactor) разработана совместно специалистами Южной Кореи, Канады и США. Она представляет собой один из вариантов технологии переработки ОЯТ с повышенной защитой от распространения ЯМ.

Как следует из названия технологии, ее целью является повторное использование ОЯТ легководных энергетических реакторов

типа PWR в тяжеловодных реакторах типа CANDU. Дело в том, что ОЯТ-PWR содержит достаточно большое количество делящихся ЯМ: уран с обогащением примерно 0,9% и около 0,6% плутония, в котором делящиеся изотопы составляют 70%. Таким образом, общее содержание делящихся изотопов в ОЯТ-PWR находится на уровне 1,3%. А тяжеловодные реакторы типа CANDU способны работать даже на природном уране (0,7% делящегося изотопа ^{235}U). Это открывает возможность использовать ОЯТ-PWR, после соответствующей переработки, в реакторах типа CANDU.

Технология DUPIC обеспечивает переработку ОЯТ-PWR с использованием только термических и механических процессов, без применения сложных экстракционных, пирохимических или пирометаллургических методов.

Основные стадии технологии DUPIC:

- 1) разборка ОТВС, извлечение твэлов;
- 2) поперечная резка твэлов на куски размером ~ 20 см;
- 3) продольная разрезка оболочек;
- 4) волоксидация, т.е. термическая обработка в атмосфере кислорода при температуре 400°C . Диоксид урана UO_2 переходит в U_3O_8 , объем топливного сердечника увеличивается на 30%, и топливо сбрасывает оболочку. При этом топливо становится более пористым, частично переходит в порошковую форму и из него уходят газовые продукты деления (почти весь тритий, 40% ^{129}I , 70% ^{85}Kr , 90% ^{106}Ru);

- 5) обработка по технологии OREOX-процесса. OREOX (Oxidation-Reduction of Oxide fuel) – это окислительно-восстановительный процесс, при котором производится чередование окисления и восстановления оксидов урана:

- а) окисление на воздухе при температуре 450°C ; диоксид урана UO_2 переходит в U_3O_8 , как и при волоксидации;

- б) восстановление в аргон-водородной атмосфере ($\text{Ar}+4\% \text{H}_2$) при 700°C ; октаоксид урана U_3O_8 переходит в диоксид урана UO_2 . Повторение таких циклов окисления-восстановления приводит к образованию дисперсного порошка UO_2 и к окончательному выходу всех газовых ПД из топлива. Если порошок все же содержит куски топлива, то производится его тонкое размалывание;

6) изготовление таблеток диоксида урана из порошка путем спекания до плотности, составляющей 96% от теоретического значения;

7) изготовление твэлов и ТВС по стандартной технологии, но в горячих камерах, за мощной биологической защитой.

Особенности DUPIC-технологии:

отсутствие растворителей и, как следствие:

а) малый объем РАО (газовые ПД, оболочки твэлов);

б) компактность перерабатывающих установок и, отсюда, возможность их размещения на одной площадке с АЭС;

нет разделения урана от плутония и от твердых ПД; удаляются только газовые и летучие ПД.

Таким образом, DUPIC-технология обеспечивает повышенную защищенность ядерного топлива от распространения за счет:

повышенной радиоактивности топливных материалов;

отсутствия стадий с разделением урана от плутония;

отсутствие дальних перевозок при размещении перерабатывающей установки на одной площадке с АЭС.

Глава 9. ТЕХНОЛОГИИ ПЕРЕРАБОТКИ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Все ядерные технологии связаны с использованием или сопровождаются образованием радиоактивных веществ. Например, свежие ТВС ядерных реакторов содержат радиоактивные изотопы урана, а облученные ТВС – радиоактивные изотопы урана, плутония, трансурановых элементов и ПД. Часть этих изотопов может быть выделена и полезно использована. Так делящиеся изотопы могут быть рециклированы в составе ядерного топлива, а некоторые ПД и трансурановые элементы могут применяться как тепловые источники или источники ионизирующего излучения в медицине и промышленности. Оставшиеся радиоактивные вещества, полезное применение которых пока не представляется возможным, относят к радиоактивным отходам (РАО). Итак, РАО – это радиоактивные вещества, дальнейшее использование которых пока невозможно. Поэтому к РАО могут быть отнесены:

продукты ядерных технологий, не пригодные для полезного применения в отраслях промышленности;

все материалы и изделия, загрязненные радиоактивными веществами, до их дезактивации.

Специфическая особенность РАО заключается в невозможности их уничтожения традиционными методами (сжигание, перевод в другую химическую форму). В любой химической форме РАО сохраняют свою радиоактивность. Традиционными методами можно только преобразовать РАО в форму, удобную для окончательного захоронения в геологических формациях. Нетрадиционные методы уничтожения РАО предполагают создание специализированных ядерных установок, в которых РАО подвергаются действию ионизирующих излучений (нейтроны или гамма-кванты) с целью трансмутации (превращения) долгоживущих, радиоактивных изотопов в короткоживущие или стабильные изотопы.

Наибольшую опасность представляют РАО процесса химической переработки ОЯТ. Эти РАО опасны по количеству и по интенсивности излучения, определяемым ПД. Количество ПД в ОЯТ составляет 30–40 кг/т ОЯТ тепловых реакторов и около 100 кг/т ОЯТ быстрых реакторов. Соответствующие величины активности ПД: 6 МКи/т ОЯТ-ТР и 20 МКи/т ОЯТ-БР (на момент выгрузки из реактора).

Для сравнения:

суммарный выброс радиоактивных веществ при аварии на Чернобыльской АЭС оценивается в 90 МКи;

суммарный выброс радиоактивных веществ при Кыштымской аварии (взрыв хранилища жидких РАО) оценивается в 20 МКи.

Классификация РАО

РАО классифицируются по агрегатному состоянию (жидкие, газообразные, твердые) и по уровню удельной активности (низкоактивные, среднеактивные, высокоактивные). В табл. 12 и 13 приведены уровни удельной активности, при которых РАО относятся к категориям низко-, средне- и высокоактивных РАО. Это нормы, принятые Российскими регулирующими органами.

Цель переработки РАО – обеспечить защиту человека и окружающей среды от негативного воздействия радиоактивных ве-

ществ. К основным негативным свойствам РАО относятся ионизирующее излучение, тепловыделение и химическая токсичность.

Таблица 12

Классификация жидких и газообразных РАО

Категория	Удельная активность, Ки/л	
	Жидкие	Газообразные
Низкоактивные	$\leq 10^{-5}$	$\leq 10^{-13}$
Среднеактивные	$10^{-5} - 1$	$10^{-13} - 10^{-9}$
Высокоактивные	> 1	$> 10^{-9}$

Таблица 13

Классификация твердых РАО

Категория	Мощность дозы*, Р/ч	Вид излучения		
		α , Ки/кг	β , Ки/кг	γ , Гр/ч**
Низкоактивные	$< 0,2$	$2 \cdot 10^{-7} - 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-6} - 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-7} - 3 \cdot 10^{-4}$
Среднеактивные	$0,2 - 2$	$10^{-5} - 10^{-2}$	$10^{-4} - 10^{-1}$	$3 \cdot 10^{-4} - 10^{-2}$
Высокоактивные	> 2	$> 10^{-2}$	$> 10^{-1}$	$> 10^{-2}$

* На поверхности.

** В 10 см над поверхностью.

Переработка высокоактивных отходов (ВАО)

Существуют две основные формы ВАО:

1) ВАО химической переработки ОЯТ. Это, главным образом, жидкие отходы, так как промышленная переработка ОЯТ основана преимущественно на водной экстракционной технологии. Известно, что при переработке 1 т ОЯТ энергетических реакторов образуется примерно 45 м^3 жидких ВАО, 150 м^3 жидких среднеактивных отходов и до 2000 м^3 жидких низкоактивных отходов.

2) Облученные ТВС (ОТВС) энергетических реакторов.

Эти ТВС рассматриваются в США, где введен мораторий на химическую переработку ОЯТ коммерческих АЭС, как контейнеры ВАО, готовые для временного хранения в бассейнах АЭС или в не-

глубоких (приповерхностных) хранилищах, а затем для окончательного захоронения в глубоких геологических хранилищах.

Основные этапы переработки ВАО

1. Промежуточное хранение:

а) для жидких ВАО – размещение в резервуарах из нержавеющей стали. Обеспечивается контроль за тепловыделением (при необходимости, принудительный теплоотвод) и за составом газовой подушки над уровнем ВАО (продувка воздухом, удаление водорода, образующегося при радиолизе воды);

б) для ОТВС – размещение в бассейнах-хранилищах на АЭС и на заводах по переработке ОЯТ.

2. *Выпаривание жидких ВАО* обеспечивает 150–200-кратное уменьшение объема ВАО. При этом происходит:

а) повышение удельной активности концентрированных ВАО;

б) увеличение удельного тепловыделения, связанного с естественным распадом нуклидов. Как следствие, повышение температуры ВАО);

в) усиление коррозионной активности ВАО с повышенной концентрацией и с повышенной температурой;

г) усиленное газообразование из-за радиолиза воды и нитратов. Повышается взрывоопасность водорода-воздушной смеси.

Для борьбы с этими процессами принимаются следующие меры: контроль за содержанием водорода в газовой подушке;

продувка резервуаров ВАО воздухом для разбавления и удаления водорода;

контроль за температурой газовой подушки (не выше 50–60°С);

принудительное охлаждение резервуаров;

использование коррозионностойких сплавов и нержавеющей сталей в испарительных установках и резервуарах ВАО;

размещение резервуаров с концентрированными ВАО ниже уровня земли, на бетонных поддонах;

добавление в ВАО реагентов, замедляющих коррозию.

Отверждение ВАО. Целью этого этапа переработки является внедрение ВАО в устойчивую матрицу, препятствующую мигра-

ции ВАО в окружающую среду. Другими словами, иммобилизация ВАО, существенное снижение их миграционной способности.

В настоящее время наиболее подходящей формой иммобилизации ВАО считается их включение в состав стекол. Разработаны две технологии стеклования ВАО.

Одностадийная технология. Жидкие концентрированные ВАО загружаются в тигель, куда также вводятся стеклообразующие добавки. При постепенном разогреве смеси последовательно происходит:

- окончательное выпаривание ВАО;
- прокаливание высушенных ВАО при температуре 300–400°C;
- плавление стекломассы при температуре 1100–1150°C.

После охлаждения тигель вместе со всем его содержимым отправляется на захоронение.

Двухстадийная технология.

Примером двухстадийного стеклования ВАО является AVM-технология, разработанная во Франции.

Основные стадии AVM-технологии:

- прокаливание исходных ВАО при температуре 300–400°C;
- смешивание кальцината со стеклообразующими добавками и пересыпание в плавильную печь;
- разогрев и стеклование массы при 1100–1150°C;
- периодический слив стекломассы в стальные контейнеры;
- промежуточное хранение и захоронение контейнеров.

Существуют альтернативные технологии иммобилизации ВАО. Это включение ВАО в другие устойчивые материалы (керамика, стеклокерамика, минералоподобные материалы типа SYNROC).

Остановимся подробнее на SYNROC-технологии. SYNROC – это сокращение от Synthetic Rock, т.е. синтетические скальные породы. Разработка технологии создания искусственных скальных пород и иммобилизации в них ВАО базируется на надежде, что эти материалы будут столь же устойчивы и долговечны, как и природные скальные породы. Эта технология разработана и опробована в Австралии.

Типичный пример применения SYNROC-технологии:

1) смешивание ВАО с предшественниками синтетических скальных пород. Пример смеси предшественников SYNROC-материала: TiO_2 (71%), CaO (11%), ZrO_2 (7%), BaO (6%), Al_2O_3 (5%);

2) прокаливание при температуре 650–750°C;

3) горячее прессование порошка в таблетки SYNROC-материала (температура – 1100–1200°C, давление – 150–200 атм).

4) контейнеризация таблеток SYNROC-материала, промежуточное хранение и окончательное захоронение.

Испытания показали, что:

минералоподобные SYNROC-материалы имеют физические, химические и коррозионные свойства, схожие со свойствами природных скальных материалов, т.е. могут оказаться устойчивыми к воздействию окружающей среды в течение длительного времени;

SYNROC-таблетки могут содержать до 20 вес.%ВАО;

скорость выщелачивания SYNROC-материалов обычной водой составляет 10^{-6} – 10^{-5} г с 1 см^2 поверхности в сутки.

По указанным выше показателям SYNROC-материалы уступают только боросиликатному стеклу, у которого:

содержание ВАО достигает 30 вес.%. Это связано с тем, что стекло не обладает упорядоченной кристаллической структурой и поэтому способно удерживать широкий диапазон радионуклидов. Минералы с упорядоченной кристаллической решеткой (керамика, SYNROC-материалы) способны удерживать лишь радионуклиды с определенными размерами атомов и с определенной валентностью;

скорость выщелачивания стекла обычной водой составляет 10^{-8} – 10^{-7} г/($\text{см}^2 \cdot \text{сутки}$).

Итак, SYNROC-материалы проигрывают стеклу по способности удерживать большие количества ВАО и по скорости выщелачивания водой, но остаются вторым после стекла материалом для иммобилизации ВАО.

После иммобилизации ВАО в стеклблоках или в таблетках SYNROC-материала эти отвержденные формы помещают в стальные контейнеры. Дальнейшее обращение с ВАО предполагает 30–50 лет промежуточного хранения контейнеров в неглубоких хранилищах с воздушным или водным охлаждением. Предусматривается возможность извлечения контейнеров для обследования состояния твердых форм и, возможно, для дальнейшей обработки.

Следующая стадия – это окончательное захоронение контейнеров ВАО в подземных геологических формациях. Чтобы геологические формации были пригодны для захоронения ВАО, они должны удовлетворять следующим требованиям:

формации должны быть размещены в районе высокой сейсмической стабильности, без землетрясений и вулканической активности;

геологический пласт хранилища не должен иметь выхода на поверхность земли;

в хранилище должна быть слабая циркуляция грунтовых вод;

пласт хранилища должен обладать хорошей теплопроводностью, пластичностью и способностью адсорбировать радионуклиды.

Как кандидаты рассматриваются три геологические формации:

- 1) соляные месторождения;
- 2) глинистые осадочные породы;
- 3) твердые скальные породы.

Проанализируем достоинства и недостатки этих формаций.

Соляные месторождения.

Достоинства:

отсутствие близких грунтовых вод, т.е. гидрогеологические условия в районах разведанных соляных месторождений таковы, что соли сохраняются в неизменном состоянии миллионы лет, несмотря на то, что, вообще говоря, соли растворимы в обычной воде;

пластичность;

высокая теплопроводность.

Недостатки:

растворимость в воде;

потенциальная полезность, т.е. возможность промышленного освоения месторождений;

радиолиз под действием ионизирующих излучений с усиленным газовыделением (например, с выделением хлора).

Глинистые породы.

Достоинства:

полная водонепроницаемость;

высокая сорбционная способность по отношению к большинству ПД (кроме ^{129}I и ^{99}Tc);

пластичность.

Недостатки:

малая сорбционная способность отдельных ПД (^{129}I и ^{99}Tc);

низкая теплопроводность;

близость к поверхности земли.

Скальные породы.

Достоинства:

высокая водонепроницаемость;

высокая механическая прочность и химическая устойчивость.

Недостатки:

низкая пластичность, растрескиваемость с возможностью миграции радионуклидов в биосферу;

низкая теплопроводность.

Рассмотрим процессы, происходящие с ВАО, захороненными в глубокие подземные хранилища, на примере строящегося в США геологического хранилища «Yucca Mountain» (штат Невада) схема размещения которого представлена на рис. 15.

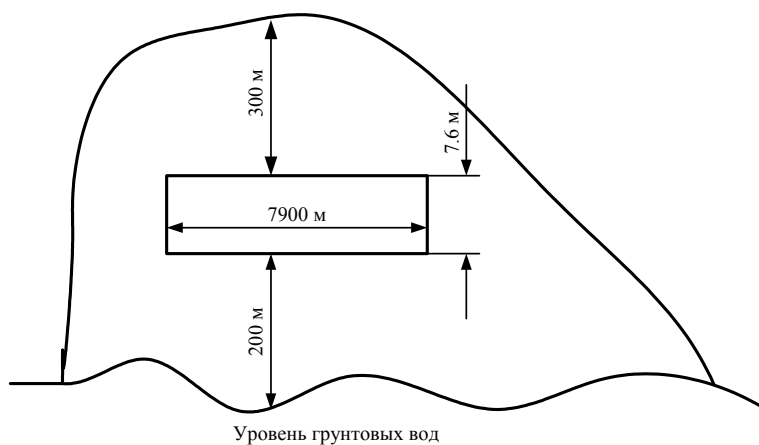


Рис. 15. Схема подземного хранилища «Yucca Mountain»

Строительство хранилища начато в 1994 г. К апрелю 1997 г. завершена проходка основного штрека (длина – 7900 м, диаметр – 7,6 м, глубина под поверхностью горы – 300 м, высота над уровнем

грунтовых вод – 200 м). В 2002 г. завершены все исследования (геологические, гидрологические, геохимические, геотермальные и т.д.) и подана заявка в Комиссию по ядерному регулированию США для получения лицензии на эксплуатацию хранилища. С 2010 г. планируется начать заполнение хранилища. Планируемый объем хранилища – 70 тысяч тонн ВАО.

Скальная порода, в которой будет размещено хранилище, представляет собой туф с большим количеством трещин. Измерена скорость вертикального просачивания воды в хранилище; она составляет ~ 1 л на 1 м^2 поверхности дна хранилища в год (несколько капель воды на 1 м^2 в час) или это слой воды 1 мм/год .

По оценкам, определяющее влияние на возможность контакта воды с радионуклидами и их выноса в биосферу будет оказывать тепловыделение загруженных ВАО. При полностью загруженном хранилище часть объема горы, прилегающая к хранилищу, может разогреться до $\sim 130^\circ\text{C}$, т.е. выше температуры кипения воды. В результате образуется замкнутый контур естественной конвекции воды от горячего хранилища к удаленным холодным областям скальных пород. Там пар будет конденсироваться и стекать вниз. Гидрологические условия в загруженном хранилище будут кардинально отличаться от гидрологии незагруженного хранилища.

Основные гидрологические эффекты загруженного хранилища:

- создание конденсатного слоя воды над хранилищем из-за естественной конвекции горячего пара и холодной воды;

- пропитка водой области горы, прилегающей к хранилищу;

- повышение растрескивания слоев туфа, прилегающих к хранилищу, под воздействием пара и градиента температуры;

- усиление химической активности горячей воды (ускорение коррозии контейнеров, повышение растворимости радионуклидов).

Центральная зона хранилища будет сравнительно сухой из-за максимального тепловыделения и быстрого испарения стекающей воды. На периферии хранилища будет более влажная атмосфера, что может вызвать ускоренную коррозию контейнеров ВАО. Итак, внутреннее тепловыделение ВАО может стать серьезным препятствием, ограничивающим вместимость дорогостоящих геологических хранилищ. Это тепловыделение обусловлено распадом долгоживущих ПД (^{137}Cs , ^{90}Sr) и младших актинидов (изотопы нептуния,

америция и кюрия). В краткосрочной перспективе (100–200 лет) основной вклад в распадное тепловыделение дают ПД. В более отдаленной перспективе ($t > 1000$ лет) доминирующая роль в тепловыделении ВАО переходит к младшим актинидам.

Поэтому изучается альтернативный подход к управлению ВАО, состоящий в извлечении из них долгоживущих ПД и младших актинидов (МА). Извлеченные ПД и МА могут быть:

использованы как источники ионизирующего излучения и тепла;

использованы для денатурации оружейного или реакторного плутония. Дело в том, что при нейтронном облучении изотопов ^{237}Np и ^{241}Am , входящих в состав МА, образуется изотоп ^{238}Pu , сильный источник тепловыделения α -распада и нейтронов спонтанного деления. Смешивание ^{238}Pu с плутонием может сделать последний практически непригодным для военного применения;

трансмутированы в специальных ядерных установках, т.е. превращены в короткоживущие или стабильные изотопы посредством, например, нейтронного облучения.

Переработка жидких среднеактивных отходов

К среднеактивным отходам (САО) относятся растворы экстракционных циклов (кроме первого цикла), конденсат, получаемый при выпаривании низкоактивных РАО, и пар, получаемый при выпаривании высокоактивных РАО.

Основные этапы переработки САО:

- 1) осаждение и удаление твердых САО из жидких фаз (отстаивание и фильтрация с применением коагулянтов);
- 2) ионо-обменная очистка оставшихся растворов;
- 3) упаривание для получения сухого остатка;
- 4) иммобилизация путем битуминизации – смешивание с битумной массой и затвердевание смеси;
- 5) контейнеризация битумной массы с САО;
- 6) временное контролируемое хранение и окончательное захоронение.

Достоинства битума как материала для иммобилизации САО:
слабое выщелачивание водой;

пригодность для любых химических форм САО (соли, гидроксиды, органические соединения);

хорошая радиационная стойкость.

К недостаткам битума следует отнести его горючесть (продукт переработки нефти) и размягчение при нагреве (асфальт).

Альтернативным вариантом иммобилизации САО является их цементирование, т.е. включение в состав бетона. Бетон, как материал для иммобилизации САО, имеет следующие достоинства:

дешевизна и простота обращения с бетоном;

высокая радиационная стойкость;

высокая теплопроводность;

бетон не горюч и не размягчается при нагреве.

Однако бетон не обладает достаточной химической стойкостью к воздействию воды. Ниже приведены сравнительные данные по скорости выщелачивания различных материалов водой:

стекло: $10^{-8} \div 10^{-7}$ г/(см²·сут);

SYNROC: $10^{-6} \div 10^{-5}$ г/(см²·сут);

битум: $10^{-6} \div 10^{-4}$ г/(см²·сут);

бетон: $10^{-3} \div 10^{-2}$ г/(см²·сут).

Поэтому стекла и SYNROC-материалы преимущественно используются для иммобилизации высокоактивных РАО, а битум и бетон – для иммобилизации средне- и низкоактивных РАО.

Химическая стойкость бетона может быть повышена за счет пропитки цемента органическими мономерами. При затвердевании такой цементной смеси мономеры полимеризуются, и химическая стойкость бетонных блоков существенно повышается.

Переработка жидких низкоактивных отходов (НАО)

Переработка НАО включает следующие этапы:

осаждение НАО из растворов (адсорбция, отстаивание, фильтрация с применением коагулянтов);

ионообменная очистка оставшихся растворов;

упаривание для получения сухого остатка;

отверждение сухих остатков, сорбентов, ионообменных смол и фильтров в бетоне (цементирование).

Переработка газообразных РАО

Негативные свойства газообразных РАО:

непосредственное внешнее облучение и облучение от осевших радиоактивных веществ;

внутреннее облучение при вдыхании воздуха, загрязненного газообразными РАО или аэрозолями;

химическая токсичность газообразных РАО при попадании в организм человека.

После выдержки ОЯТ в течение 3–5 лет в нем остаются только сравнительно долгоживущие радионуклиды:

из благородных газов – только ^{85}Kr ($T_{1/2} = 10,7$ лет);

из изотопов йода – только ^{129}I ($T_{1/2} = 1,6 \cdot 10^7$ лет);

изотоп углерода ^{14}C ($T_{1/2} = 5730$ лет);

тритий ^3H ($T_{1/2} = 12,3$ года).

Удаление ^{85}Kr . Для удаления ^{85}Kr используются следующие методы:

низкотемпературная адсорбция на активированном угле и на молекулярных ситах;

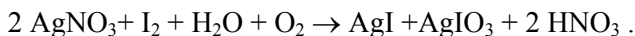
адсорбция в жидком углекислом газе CO_2 ;

адсорбция жидкими фтор-углеродами, например, фреоном-12: CCl_2F_2 – дихлор-дифтор-метан.

Удаление ^{129}I . В газообразных РАО йод может находиться в виде молекулярного йода I_2 , йодидов (I^-) и йодатов (IO_3^-). Для удаления радионуклида ^{129}I используются следующие методы:

поглощение йода щелочами или азотной кислотой в скрубберах (установки для химического взаимодействия жидких и газообразных веществ с целью их очистки). Йод окисляется до твердого малорастворимого соединения HI_2O_8 ;

хемосорбция на цеолите (пористый минерал, хороший сорбент), пропитанном нитратом серебра AgNO_3 . Молекулярный йод связывается в малорастворимом йодиде и йодате серебра:



Удаление ^{14}C . В газообразных РАО радиоизотоп ^{14}C содержится в виде оксидов ^{14}CO или $^{14}\text{CO}_2$ в небольших количествах. Радио-

изотоп ^{14}C является продуктом реакции $^{14}\text{N}(\text{n},\text{p})^{14}\text{C}$ на азоте, содержащимся в воздухе, в примесях теплоносителя или конструкционных материалов.

До сих пор не разработаны промышленные методы улавливания ^{14}CO или $^{14}\text{CO}_2$. В лабораторных условиях изучается возможность использования жидких поглотителей ^{14}C на основе гидроксидов, фтор-углеродов и алюмосиликатов. Найдены фтор-углероды, которые при низких температурах (от -40 до $+4^\circ\text{C}$) улавливают 99,9% ^{14}C .

Удаление трития. В ядерных реакторах тритий образуется в результате нейтронных реакций теплоносителя и примесей конструкционных материалов (водород, литий). Кроме того, тритий может образовываться при тройном делении ядерного топлива, т.е. при очень редком процессе деления, когда образуются не два, а три осколка. Поскольку тройное деление происходит с очень малой вероятностью, количество трития в топливе не превосходит $2 \cdot 10^{-5}$ вес. %.

Тритий обладает следующими свойствами:

является источником мягкого β -излучения;

легко вступает в реакции изотопного обмена с обычной водой, образуя тритиевую воду НТО или T_2O при переработке ОЯТ. Поэтому, тритий присутствует во всех жидких РАО процесса химической переработки ОЯТ.

Для выделения трития используются следующие методы:

волоксидация ОЯТ перед растворением (окисление в атмосфере кислорода при повышенной температуре; $t = 450\text{--}650^\circ\text{C}$). Присутствие влаги в газовой фазе приводит к связыванию трития в тритиевой воде;

улавливание тритиевой воды цеолитом.

Обработка аэрозолей и пыли. Газообразные аэрозоли представляют собой солевые и кислотные туманы с содержанием жидких частиц $10^{-2} - 10 \text{ г/м}^3$. Для их обработки применяются следующие методы:

гравитационное осаждение в пылеуловительных камерах;

центробежное выделение твердых и жидких частиц из газа при спиральном движении потока в циклонах. Поток газа вводится в циклоны под углом к оси цилиндра, и частицы аэрозолей и пыли, сталкиваясь со стенками цилиндра, выпадают из потока;

электростатическое осаждение (придание частицам заряда и осаждение в электрическом поле);

промывка газов в скрубберах;

ультрафильтрация с использованием специальных фильтров на основе стекловолокна и полимеров, с применением металлотканевых и металлокерамических фильтров.

Переработка твердых РАО

В состав твердых РАО входят:

детали оборудования, строительные материалы, мусор, спецодежда;

ионообменные смолы;

нерастворившиеся оболочки ТВЭЛОВ;

осадки на стенках оборудования.

Для переработки твердых РАО применяются следующие методы:

1. Уменьшение объема РАО:

сжигание с уменьшением объема РАО в 10–100 раз;

прессование с уменьшением объема до 10 раз.

2. Контейнеризация и захоронение. Особая технология используется при переработке оболочек ТВЭЛОВ. Их радиоактивность обусловлена следующими процессами:

образование радионуклидов в металлах, входящих в состав оболочек, под действием нейтронного облучения;

диффузия актинидов и ПД из топлива в оболочку ТВЭЛА, т.е. в поверхностном слое оболочки могут находиться α -активные актиниды;

остатки нерастворившегося топлива на поверхности оболочек.

Этапы обработки оболочек ТВЭЛОВ:

1) временное хранение в бетонных бункерах под слоем воды (из-за возможности возгорания циркония на воздухе);

2) химическая обработка плавиковой кислотой HF при повышенной температуре (550–600°C). На поверхности образуются рыхлые пленки, содержащие α -активные трансурановые изотопы. Затем эти пленки удаляются растворением в кислотных или щелочных составах;

- 3) плавление оболочек в слитки в электропечах;
- 4) контейнеризация слитков и захоронение.

Дезактивация оборудования РХЗ

Еще один вид твердых РАО представляют собой осадки, накапливающиеся на внутренних поверхностях резервуаров и трубопроводов РХЗ. Осадки образуются на стенках оборудования в результате следующих процессов:

- 1) сорбции радионуклидов из растворов ОЯТ. В результате внутри оборудования создаются радиационные поля с мощностью дозы до 10^6 Р/час. Радиоактивность стенок постепенно становится сопоставимой и даже большей, чем активность растворов ОЯТ;

- 2) постепенного насыщения стенок радионуклидами. Если стенки чистые, то на выходе из контуров активность раствора ниже, чем на входе. При испытаниях оборудования, через которое прокачивались слабо концентрированные растворы плутония, плутония практически не было на выходе. Он весь оседал на стенках. Постепенно стенки насыщались, и потери сокращались. При повышении содержания ОЯТ в растворах, снова должно пройти некоторое время, пока стенки насытятся до нового, более высокого уровня;

- 3) закалки осадков в результате колебаний теплофизических и физико-химических условий переработки. На стенках остаются наиболее устойчивые соединения РАО по механической прочности, по химической и термодинамической устойчивости.

Наиболее важные осадки это соединения циркония и кремния (цирконаты, силикаты), склонные к полимеризации и образованию коллоидных систем (соли кремниевой кислоты H_2SiO_3 , оксиды кремния, магния, кальция и щелочных металлов).

Основным механизмом дезактивации оборудования является десорбция осадков со стенок до уровней, допускающих ремонт или демонтаж оборудования, т.е. перевод твердых РАО в жидкую форму с последующей обработкой по известным технологиям. Для этого проводится многоэтапная промывка загрязненного оборудования. Сначала используется слабый раствор азотной кислоты HNO_3 для очистки стенок от остатков растворов ОЯТ. На следую-

щем этапе проводится чередующаяся обработка поверхностей сначала составами, ослабляющими и разрыхляющими осадки, а затем составами, растворяющими осадки.

Часто применяется окислительно-восстановительный метод, при котором происходит чередование обработки поверхностей щелочными растворами (разложение труднорастворимых солей, гидратация оксидов, т.е. превращение плотных солей в рыхлые гидроксиды) с обработкой поверхностей кислотными растворами (растворение осадков и вынос их из оборудования в виде жидких РАО).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Синев Н.М., Батуров Б.Б. Экономика ядерной энергетики. Основы технологии и экономики ядерного топлива. М.: Энергоатомиздат, 1984.
2. Землянухин В.И. и др. Радиохимическая переработка ядерного топлива АЭС. М.: Энергоатомиздат, 1989.
3. Ран Ф. и др. Справочник по ядерной энерготехнологии. М.: Энергоатомиздат, 1989.
4. Пшакин Г.М. и др. Ядерное нераспространение. М.: МИФИ, 2006.

Владимир Александрович Апсэ
Анатолий Николаевич Шмелев

ЯДЕРНЫЕ ТЕХНОЛОГИИ

Редактор Н.Н. Антонова
Компьютерная верстка Г.А. Бобровой

Подписано в печать 20.11.2008 Формат 60х84 1/16
Печ.л. 8,0 Уч.-изд.л. 8,0 Тираж 150 экз. Изд. № 4/49
Заказ №

*Московский инженерно-физический институт
(государственный университет).
115409 Москва, Каширское шоссе, 31*

*Типография издательства «Тровант»
г. Троицк Московской области*