

В настоящее время удалось поднять плотность на два порядка величины при сохранении устойчивости. Таковы темпы продвижения по традиционным путям. Они не настолько высоки, чтобы могло возникнуть чувство большого удовлетворения, но и не настолько низки, чтобы служить оправданием для пессимизма. Движение вперед продолжается практически безостановочно, хотя и не так быстро, как нам хотелось бы.

Большой интерес к проблеме управляемого ядерного синтеза вызвали появившиеся за последние годы идеи о сверхбыстром нагреве вещества мощными лазерными импульсами и интенсивными потоками быстрых электронов.

По-видимому, в самое ближайшее время о плодотворности этих идей можно будет судить на основе широких экспериментальных исследований.

Основные проблемы фторидного метода переработки твэлов АЭС на быстрых нейтронах

У. Д. ВЕРЯТИН, Н. П. ГАЛКИН, В. А. ЗУЕВ, В. И. ЛОМОВ,
Г. П. НОВОСЕЛОВ, В. Н. ПРУСАКОВ, Г. И. ЧЕЧЕТИН, Ю. Д. ШИШКОВ
(Государственный комитет по использованию атомной энергии СССР)

Планы развития советской энергетики предусматривают в ближайшие десятилетия сооружение большого числа АЭС, в том числе и на быстрых нейтронах. Перспективный курс развития ядерной энергетики, взятый на создание реакторов на быстрых нейтронах, предусматривает использование в качестве топлива UO_2 в смеси с PuO_2 (в примерном соотношении 20% PuO_2 и 80% UO_2).

В качестве конструкционного материала тепловыделяющих сборок и элементов используется нержавеющая сталь, количество которой по отношению к весу всей сборки может достигать 50% [1]. В тепловыделяющей сборке активной зоны реактора на быстрых нейтронах в процессе кампании накапливается до 10% продуктов деления. Совокупность этих характеристик предъявляет специфические требования к радиохимической технологии.

В Советском Союзе наряду с совершенствованием водных методов регенерации отработанного топлива разрабатываются неводные (сухие) методы регенерации урана и плутония. Наибольший прогресс достигнут в технологических исследованиях фторидного метода, основанного на разделении и очистке компонентов топлива за счет различия в летучести их фтористых соединений. Этот метод имеет ряд преимуществ: возможность создания компактного радиохимического производства с интенсивным проведением технологического процесса; более простое обеспечение условий ядерной безопасности; получение радиоактивных отходов в твердом компактном виде и др.

В Советском Союзе осуществляется широкая программа изучения фторидной технологии

переработки атомного топлива. Помимо проведения физико-химических исследований программа работ включает выполнение комплекса экспериментов на «холодных» и «горячих» установках в дистанционных условиях, разработку аппаратуры для удаления оболочек твэлов, фторирования топлива, разделения компонентов топлива, изучения технологии захоронения радиоактивных отходов, разработку элементов дистанционного управления аппаратурой и др.

Термическое вскрытие тепловыделяющих сборок

Процессу регенерации ядерного топлива предшествуют разделка высокоактивных сборок твэлов, вскрытие их и отделение топлива от конструкционных материалов. При этом необходимо обеспечить получение минимального количества отходов в форме, удобной для длительного хранения. Практическое решение таких задач известными в радиохимической промышленности методами связано с большими, а иногда и непреодолимыми трудностями.

Решением одной из этих проблем является разработка термического способа вскрытия облученных тепловыделяющих сборок, заключающегося в расплавлении конструкционных материалов и отделении от них топлива [2]. Термический способ позволяет дистанционно обрабатывать сборки как целиком, так и по зонам, так как в отдельных случаях целесообразна раздельная регенерация активных и экранных зон, тем более что в этом случае удаляются массивные детали сборок, не

содержащие ядерного топлива. Разделку тепло-выделяющих сборок можно достаточно быстро осуществить методом, применяемым для резки стальных труб [3]. При индукционном нагревании узких участков наружного чехла до температуры, близкой к плавлению конструкционных материалов, происходит разрыв чехла, в результате сборки разделяется на зоны, а чехол удаляется вместе с хвостовиком и головкой. При этом исключаются жидкие, газообразные и порошкообразные отходы, неизбежно сопутствующие другим методам.

Расчет показывает, что облученная сборка активной зоны реактора на быстрых нейтронах будет разогреваться на воздухе до температуры выше 800°C . Термический способ вскрытия предусматривает использование саморазогревания и дополнительное нагревание сборок в вакууме или среде инертного газа до их разрушения, наступающего при плавлении конструкционных материалов ($1400\text{--}1500^{\circ}\text{C}$).

Проведенные физико-химические исследования и расчеты, связанные с изучением влияния на процесс газовой среды, состава сталей, вида топлива и его физического состояния, времени, температуры, способов нагревания сборок и других факторов, послужили теоретическим обоснованием процесса термического вскрытия [2, 4]. Эти исследования позволяют сделать вывод о возможности вскрытия сборок без предварительной выдержки с практически полным отделением конструкционных материалов от топлива при минимальных потерях последнего. Установлено, что содержание урана (плутония) в отделяемой стали колеблется от 0,01 до 0,1% и зависит от условий и аппаратного оформления процесса. Процесс отличается высокой производительностью, надежно обеспечивает ядерную безопасность, исключает жидкие технологические отходы, пылящую фракцию, позволяет получать минимальное количество газообразных и твердых сбросов [5, 6].

Значительное накопление в ядерном топливе продуктов деления при облучении сопровождается его физическими и структурными изменениями. Влияние этих изменений на процесс термического вскрытия определяется в первую очередь состоянием продуктов деления в окисном ядерном топливе.

При разрушении молекул двуокиси урана и плутония выделяется кислород, который в условиях высокой температуры окисляет продукты деления и двуокись урана. Все продукты деления по величине свободной энергии

образования окислов можно разделить на две группы. К первой группе, образующей более прочные окислы, чем двуокись урана, относятся редкоземельные элементы, иттрий, плутоний, барий, стронций и цирконий, которые будут окисляться выделяющимся кислородом. Показано, что некоторые окислы могут взаимодействовать с двуокисью урана, а окислы циркония и церия образуют с последней твердые растворы. Ко второй группе относятся элементы, образующие менее прочные окислы, чем двуокись урана (иод, рубидий, цезий, рутений, палладий, ниобий, технеций и молибден). Элементы, имеющие небольшую упругость пара (молибден, палладий, ниобий, родий, рутений), находятся в элементарном состоянии и взаимодействуют друг с другом, образуя сплавы [7, 8], в которых обнаружены уран и плутоний [9].

Оставшийся свободный кислород может либо взаимодействовать с двуокисью урана с образованием нестехиометрической окиси состава $\text{UO}_{2,05}$, либо частично окислять элементы второй группы, для которых условия образования окислов оказываются благоприятными, чему способствует значительная подвижность сверхстехиометрического кислорода в двуокиси урана. Так, например, иод, рубидий, цезий, имеющие высокую упругость пара, под влиянием больших температурных градиентов мигрируют к оболочке в зону относительно низких температур, где могут образовать химические соединения: окислы, иодиды щелочных металлов и пр. Ксенон и криптон частично удерживаются в решетке двуокиси урана, но в основном выделяются в виде газов, заполняя полости твэла. Количество свободных газов зависит от интенсивности облучения, температуры и степени выгорания. Экспериментально показано, что при выгорании двуокиси плутония на 6,1% выделяется около 80% газообразных продуктов деления [10, 11], а при выгорании 10% двуокиси U^{235} —до 95% [12].

Продуктами термического вскрытия сборок являются ядерное топливо, металлический слиток, возгоняемые вещества, газы и аэрозоли. Изучено поведение некоторых элементов и их окислов в окисном топливе при температурах выше точки плавления стали и распределение их в продуктах термического вскрытия*. Исследование проводилось с брикетами двуокиси урана, в которые вводились добавки, имитирующие продукты деления. Количество послед-

* Экспериментальные данные получены А. Т. Агеенковым, Г. Б. Борисовым, Ю. Д. Догаевым и др.

Распределение элементов в продуктах термического вскрытия сборок

Таблица 1

Продукты термического вскрытия	Элементы, вес. %													
	U, Pu	Fe, Ni, Cr	Co	Mn	I	Te	Cs, Rb	Sr, Ba	Y р. з. з.	Nb, Mo	Zr	Rh, Pd	Tc	Xe, Kr
Брикеты топлива	99,948	0,7	0,7	0,6	95,0	95,0	99,5	99,90	99,94	94,95	98,99	95,0	95,0	5—20*
Слиток стали	0,050	99,2	99,3	89,4	—	—	0,3	0,05	0,05	5,00	1,00	5,0	5,0	—
Возгоняющиеся вещества	0,002	0,1	—	10,0	5,0	5,0	0,2	0,05	0,01	0,05	0,01	—	—	—
Газовая фаза	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	80—95

* В зависимости от глубины выгорания.

них определялось из расчета 5, 10 и 20% выгорания плутония. Результаты эксперимента хорошо совпадали с данными, полученными при вскрытии облученных урановых окисных твэлов с 1,5% выгоранием. На основании этих исследований определено распределение примесей между продуктами термического вскрытия (табл. 1).

Ядерное топливо. Из данных табл. 1 следует, что термическим вскрытием сборок достигается высокое извлечение урана и плутония (99,95%), а также отделение конструкционных материалов от топлива (более 99%). Химические, физические и структурные изменения, происшедшие в топливе при облучении, не оказывают значительного влияния на полноту разделения. Большинство продуктов деления, за исключением криптона и ксенона, практически полностью остается в топливе.

Слиток стали. Нержавеющая сталь содержит незначительные количества урана и плутония (менее 0,05%), радиоактивные изотопы Mn^{54} и Co^{58} , образующихся при облучении стали, и до 2% продуктов деления [13]. В сталь в основном переходят те элементы, которые находились в топливе в металлическом состоянии (родий, рутений, ниобий, молибден и др.), а также небольшие количества циркония и цезия. Такая сталь без дополнительной переработки может быть направлена на длительное хранение.

Возгоняющиеся вещества. При термическом вскрытии возгоняется небольшое количество продуктов деления: 5,0% I и 0,2% Cs от общего количества. Большая часть активности возгона обусловлена присутствием в нем Mn^{54} , содержание которого возрастает с увеличением продолжительности процесса вскрытия. Увеличения количества других изотопов не наблюдалось, содержание урана не превышало 0,002%.

Газы. Ксенон и криптон, находящиеся в свободном состоянии, выделяются сразу после нарушения герметичности твэла. Часть газов, внедрившихся в кристаллическую решетку двуокиси урана, почти целиком остается в топливе. Потери урана с аэрозолями практически отсутствуют.

Фторирование облученного топлива газобразным фтором и галогенфторидами

Освобожденное от оболочки топливо направляется в регенерационный цикл для полной очистки от продуктов деления с разделением урана и плутония и превращением их фторидов в окислы. Полный регенерационный цикл включает следующие операции: фторирование топлива, сорбционную очистку гексафторида урана, ректификационную очистку, термическое разложение гексафторида плутония и пиролиз фторидов урана и плутония.

Очистка топлива при фторировании основана на различиях в упругостях паров фторидов, образующихся в процессе, и различной реакционной способности фторидов урана, плутония и продуктов деления.

Поскольку некоторые продукты деления (например, редкоземельные, щелочные, щелочноземельные и др.) образуют с фтором практически нелетучие фториды, их удается отделить от урана и плутония непосредственно при фторировании топлива.

Исследования на облученном материале в основном подтвердили такую возможность, однако наблюдались некоторые отклонения. Так, в газовой фазе наряду с гексафторидом урана, элементами, образующими летучие фториды (рутений, ниобий, теллур), и частично цирконием присутствовали цезий, стронций, церий и другие, упругость пара которых намного

ниже равновесной упругости паров при температуре фторирования. Последние элементы переходят в газовую фазу в виде аэрозолей и пыли. Поэтому для очистки от аэрозолей и пыли гексафторид урана при температуре 150° С пропускали через металлокерамические фильтры с размером пор 10—30 мк, изготовленные из прессованного никелевого порошка. Проведенные исследования показали, что подобные фильтры достаточно эффективно очищают гексафторид урана от пыли и аэрозолей, причем после операций фторирования и фильтрации гексафторид урана содержит только те продукты деления, летучесть которых близка к летучести гексафторида урана. Это нептуний, технеций, теллур, ниобий, рутений.

Изучение поведения плутония при фторировании уран-плутониевого топлива, содержащего имитаторы продуктов деления, показало, что присутствие некоторых элементов (цезий, стронций, барий и редкоземельные) способствует удержанию плутония в остатке фторирования вследствие образования прочных комплексов с фторидом плутония. В то же время некоторые продукты деления способствуют возгонке плутония при фторировании, как бы вытесняя его из образовавшихся комплексных соединений. Окончательный ответ о количестве плутония в остатках от фторирования могут дать только представительные испытания на облученном реальном топливе.

В последнее время большое внимание уделяется изысканию других фторизирующих агентов для облученного топлива, например галогенфторидов. Повышенный интерес к применению галогенфторидов в качестве фторизирующих агентов обусловлен возможностью разделения с их помощью урана и плутония в «голове» процессов очистки топлива от продуктов деления.

Для галогенфторидов типа монофторид, трифторид хлора, трифторид и пентафторид брома, используемых для обработки облученного топлива, кроме их селективности по отношению к урану характерны также более низкая температура процесса и меньшая экзотермичность реакции фторирования. Наиболее перспективными фторизирующими агентами являются пентафторид брома, термически устойчивый до температуры 460° С, и трифторид брома.

Исследования взаимодействия газообразных пентафторида и трифторида брома со спеченной таблетированной двуокисью урана подтвердили возможность непосредственного ее фторирования без предварительного окисления до закись-

окси с более высокими скоростями по сравнению с фтором.

Исследования фторирования смеси двуокись урана — двуокись плутония, соответствующей составу топлива активной зоны реактора на быстрых нейтронах, подтвердили селективную возгонку гексафторида урана на смеси топлива. В результате фторирования при температуре 350° С уран полностью переходит в газовую фазу в виде гексафторида урана, плутоний остается в твердом остатке в виде тетрафторида плутония.

Аппаратура для фторирования облученного топлива

Наличие большого количества продуктов деления в облученном топливе, поступающем на фторирование, и высокая экзотермичность реакции фторирования двуокиси урана ($\Delta H_{298}^{\circ} = -259$ ккал/моль) предъявляют жесткие требования к аппаратам, предназначенным для осуществления этого процесса. Такие аппараты должны обеспечивать быстрый теплоотвод из зоны реакции, что необходимо для проведения процесса фторирования в условиях контролируемой температуры. Этим требованиям удовлетворяют аппараты кипящего слоя, которые разрабатываются в СССР и за рубежом [14—17].

В Советском Союзе исследуется процесс фторирования окиси урана в аппарате с кипящим слоем частиц окиси алюминия и закись-окиси урана. С этой целью исходное топливо в виде таблеток, освобождаемое из твэлов, подвергается предварительному окислению, а частицы образовавшейся закись-окиси урана фторизируются фтором.

Испытываются различные аппаратурные комбинации этого процесса. Особое внимание уделяется следующим вопросам: 1) аппаратурная связь процессов окисления и фторирования; 2) устойчивость процесса фторирования в кипящем слое и влияние на нее различных факторов; 3) фильтрация отходящих газов, содержащих большое количество пыли.

Исследовались три возможных варианта проведения процесса переработки таблетированной двуокиси урана в гексафторид урана. По первому варианту получение закись-окиси урана осуществлялось в одном, а фторирование ее — во втором аппарате. По второму варианту оба процесса проводились в одном аппарате, но были разделены по зонам: в нижней зоне происходило окисление таблеток и одновременно

в верхней зоне фторировались образовавшиеся при окислении частицы закись-окиси урана (аналогично тому, как делалось в Аргоннской национальной лаборатории в США). По третьему варианту окисление и фторирование также проводились в одном и том же аппарате, но процессы были разграничены во времени: сначала проводилось окисление топлива, потом фторирование его.

В настоящее время основное внимание обращается на второй и третий варианты комбинации этих процессов. Окончательный выбор аппарата будет сделан после испытаний на стенде опытно-промышленного масштаба.

Одним из проблемных вопросов является опасность нарушения процесса фторирования урана в кипящем слое вследствие спекания частиц последнего. В настоящее время этот вопрос детально исследуется. На основании полученных результатов могут быть высказаны предварительные соображения о существовании некоторой области устойчивого протекания фторирования окиси урана. Эти соображения основаны на экспериментальных наблюдениях, свидетельствующих о том, что спекание происходит при достаточно высоких тепловых нагрузках реакционной зоны.

Тепловая нагрузка элементарного объема реакционной зоны с кипящим слоем определяется соотношением

$$q = KC_{F_2}C_{U_3O_8}S_{U_3O_8},$$

где q — тепловыделение, $ккал/ч \cdot м^3$; K — константа, представляющая собой коэффициент массообмена, умноженный на удельное тепловыделение, $м \cdot ккал/ч \cdot кг F_2$; C_{F_2} — концентрация фтора, $кг/м^3$; $C_{U_3O_8}$ — концентрация U_3O_8 в кипящем слое, $кг/м^3$; $S_{U_3O_8}$ — удельная поверхность U_3O_8 , $м^2/кг$.

По условию теплового баланса

$$KC_{F_2}C_{U_3O_8}S_{U_3O_8} = \alpha F_m \Delta T,$$

где K — коэффициент теплопередачи от элементарного объема кипящего слоя к стенке реактора, $ккал/м^2 \cdot ч \cdot ^\circ C$; F_m — поверхность теплоотдачи на стенке реактора, приходящаяся на элементарный объем кипящего слоя, $м^2/м^3$; ΔT — разность температур элементарного объема слоя $T_{ст}$ и холодной стенки реактора $T_{ст}$, $^\circ C$.

Очевидно, спекание в элементарном объеме происходит при превышении некоторой температуры $T_{макс}$ (допускаем, что она является константой для данной физико-химической системы). Тогда условие сохранения устой-

чивого псевдооживления будет иметь вид:

$$\gamma C_{F_2}C_{U_3O_8}S_{U_3O_8} < T_{макс} - T_{ст},$$

где $\gamma = \frac{K}{\alpha F_m} \approx const$ для данного процесса, а граница устойчивости псевдооживления описывается уравнением

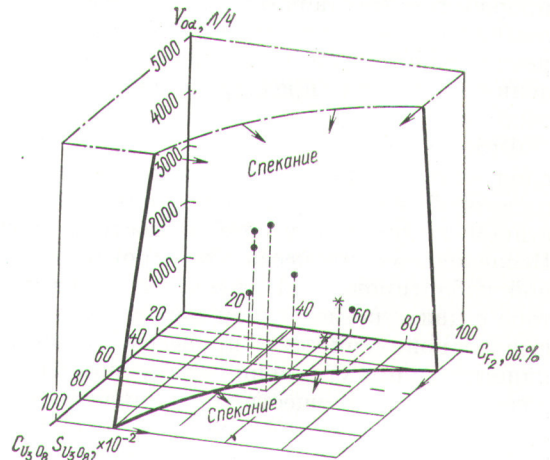
$$C_{F_2}C_{U_3O_8}S_{U_3O_8} = \frac{T_{макс} - T_{ст}}{\gamma},$$

которое представляет собой уравнение гиперболы в координатах

$$C_{F_2} - C_{U_3O_8}S_{U_3O_8}.$$

При увеличении расхода оживляющего агента V_{0a} будет возрастать α и, по-видимому, $T_{макс}$ (последнее означает, что спекание будет начинаться на более высоком температурном уровне вследствие увеличения кинетической энергии частиц кипящего слоя). Следовательно, с увеличением V_{0a} гипербола будет сдвигаться дальше от начала координат.

Таким образом, в системе координат $C_{F_2} - C_{U_3O_8}S_{U_3O_8} - V_{0a}$ граница устойчивого псевдооживления характеризуется поверхностью (см. рисунок), которая в любом горизонтальном сечении образует гиперболу и несколько отклоняется от вертикальной оси V_{0a} . При проведении процесса с параметрами, лежащими внутри объема, ограниченного этой поверхностью и координатными плоскостями, не происходит спекания кипящего слоя. На рисунке изображены предварительные результаты, полученные при экспериментальном определении координат этой поверхности.



Область устойчивого псевдооживления:

Точками отмечены параметры, при которых процесс устойчив, звездочками — параметры, при которых наблюдалось спекание.

Фильтрационный узел — один из основных частей аппарата. Исследования, проведенные с металлокерамическими фильтрами, указывают на относительно быстрое падение их проницаемости, несмотря на регенерацию путем импульсной отдувки. Падение проницаемости фильтров может вызвать необходимость частой их замены, что в дистанционных условиях управления процессом не приемлемо. Тем не менее первые модели наших аппаратов были снабжены металлокерамическими фильтрами диаметром 40 мм с размером пор 10 мк. Нами проводятся исследования по созданию фильтров непрерывного действия насыпного типа на частицах окиси алюминия. Эти фильтры позволяют осуществлять полную регенерацию проницаемости путем периодического сбрасывания пыли, осевшей на поверхностном слое, с незначительной частью фильтрующего слоя и не требуют дистанционной замены.

Учитывая вышеизложенные соображения, мы проводим испытания аппарата, который состоит из системы газораспределения, реакционной зоны, зоны охлаждения отходящих газов и насыпного фильтра. Аппарат имеет диаметр 130 мм и предназначается для экспериментальной переработки облученного окисного топлива отдельными навесками весом 30 кг.

В аппарате кипящего слоя достигается высокая эффективность массообмена и обеспечиваются хорошие условия отвода тепла, выделяющегося в результате экзотермической реакции фторирования. Однако некоторые вопросы аппаратного оформления еще требуют тщательной проработки (нестабильность режима, большой пылеунос и, следовательно, напряженный режим работы фильтров, необходимость проведения операции предварительного окисления топлива).

Фторирование непосредственно насыпанного слоя спеченных таблеток топлива привлекает простотой аппаратного оформления, отсутствием пылеуноса и стабильностью процесса. Исследования процесса фторирования спеченной таблетированной двуокиси урана в реакторе с движущимся слоем показали, что основные закономерности процесса описываются кинетическими уравнениями горения слоя углерода, однако существует концентрационный предел содержания фтора в исходной фторирующей смеси. Таким пределом является 50%-ная концентрация фтора в исходной смеси. При более высоком содержании фтора происходит перегревание слоя таблеток и их спекание, что приводит к прекращению процесса.

Поглощение фтора происходит в небольшой зоне слоя таблеток. Высота зоны фторирования может быть определена по уравнению

$$x = \frac{V \ln \frac{C}{C_0}}{S_0 \beta}$$

где V — скорость фильтрации газов; C_0 и C — концентрация фтора соответственно исходная и на высоте x ; S_0 — поверхность реагирования; β — коэффициент массообмена.

Рассчитанная высота зоны составляет 90—150 мм. Для интенсификации процесса фторирования в движущемся слое и для улучшения теплового режима аппарата предложена и испытана конструкция многозонного реактора трубчатого типа в ядернобезопасном исполнении. В аппарате обеспечивается зональный ввод фторирующего агента и автоматический поддерживается постоянное количество перерабатываемого материала в реакционной зоне.

Испытания трехзонного реактора движущегося слоя показали, что при концентрации фтора 20 об. % производительность аппарата составила 28 кг UF_6 ($dm^2 \cdot ч$).

Сорбционная очистка гексафторида урана

Извлечение продуктов деления из продуктов фторирования топлива может быть осуществлено пропусканием газового потока через пористые сорбенты на основе фторидов щелочных и щелочноземельных металлов.

Из фторидов щелочных металлов наиболее перспективными являются LiF и NaF , из щелочноземельных MgF_2 , CaF_2 и BaF_2 . Все указанные сорбенты, за исключением NaF , практически не взаимодействуют с гексафторидом урана при пониженных температурах, но в то же самое время они образуют комплексные соединения с фторидами продуктов деления.

В наших исследованиях в качестве сорбентов в основном использовались фтористые натрий и магний. Сорбционная очистка показала высокую эффективность. Получены следующие коэффициенты очистки по отдельным элементам: $Zr^{95} > 10^5$, $Ru^{106} > 10^5$, $Nb^{95} > 10^5$, $Cs^{137} - 10^7$, $Sr^{90} - 10^8$ и $Ce^{144} - 10^8$.

Ректификационная очистка гексафторида урана

Ректификация является альтернативным методом очистки гексафторида урана [18, 19].

Эксперименты по изучению фазовых равновесий смесей гексафторида урана с высшими

фторидами тяжелых металлов дали положительные результаты. Исследованные системы $UF_6 - SbF_5$, $UF_6 - RuF_5$ и другие обнаруживают хорошую взаимную растворимость компонентов. Нет оснований предполагать какие-либо осложнения при осуществлении процесса ректификационной очистки гексафторида урана.

Исследование статике разбавленных растворов показало, что в области концентрации примесей ниже 0,5 вес. % характерна прямолинейная зависимость между равновесными составами паровой и жидкой фаз. Из полученных результатов следует, что постоянство имеет силу вплоть до $\sim 10^{11}\%$.

Экспериментальные данные по коэффициентам разделения бинарных систем $UF_6 - MoF_6$, $UF_6 - WF_6$, $UF_6 - SbF_5$, $UF_6 - NbF_5$ в области концентраций MoF_5 , WF_6 , SbF_5 и NbF_5 от 10^{-1} до 10^{-6} вес. % (табл. 2) подтверждают принципиальную возможность глубокой очистки гексафторида урана от продуктов деления.

Исследования многокомпонентной системы $UF_6 - MoF_6 - SbF_5 - NbF_5$ в области предельно малых концентраций Mo, Sb, Nb показали, что микрокомпоненты практически не оказывают влияния друг на друга, которое могло бы повлиять на их равновесное распределение и ректификационную очистку гексафторида урана.

Высота, эквивалентная теоретической ступени и характеризующая кинетику процесса разделения смесей фторидов на основе гексафторида урана, достигает следующих значений: $UF_6 - MoF_6$ 2—5 см; $UF_6 - WF_6$ 6—10 см; $UF_6 - NbF_5$ 10—15 см; $UF_6 - SbF_5$ 9—13 см.

Производительность ректификационных аппаратов достигает $\sim 1 \text{ г/см}^2 \cdot \text{сек}$ по UF_6 .

Практическая проверка результатов лабораторных исследований была осуществлена на ректификационных опытно-промышленных установках. При самом разнообразном составе исходного сырья был получен спектрально-чистый гексафторид урана. Работа на ректификационных колоннах позволила освоить технические приемы их эксплуатации. Одновременно с этим была создана техника для компримирования газообразного гексафторида урана.

Разделение урана и плутония

Одним из вопросов фторидной технологии регенерации твэлов является разделение урана и плутония. Такое разделение можно осуществить, используя различную способность этих

Коэффициенты разделения бинарных систем, полученные при температуре 74°C Таблица 2

Система	Микрокомпонента	Идеальный коэффициент разделения	Экспериментальный коэффициент разделения
$UF_6 - MoF_6$	MoF_6	1,73	1,22
$UF_6 - WF_6$	WF_6	2,86	1,39
$UF_6 - SbF_5$	SbF_5	26,5	6,53
$UF_6 - NbF_5$	NbF_5	660,9	217,6

элементов образовывать с фтором высшие летучие фториды, а также различную реакционную способность самих гексафторидов урана и плутония. Во взаимодействии с фтором с образованием высшего фторида более легко вступает двуокись урана по сравнению с двуокисью плутония. Образующийся при этом гексафторид урана по своей химической активности более инертен по сравнению с гексафторидом плутония, который в определенных условиях выступает как более сильный фторирующий агент, чем фтор. Поскольку в облученном топливе в процессе фторирования содержится много продуктов деления, способных к взаимодействию с гексафторидом плутония, и содержатся соединения урана низшей валентности, гексафторид плутония способен окислять последние, восстанавливаясь при этом до тетрафторида.

Совокупность этих двух различий в свойствах урана и плутония в среде фтора и создает предпосылку для разделения урана и плутония в процессе фторирования.

Экспериментальная проверка возможности разделения урана и плутония при фторировании разбавленным инертным газом (объемное соотношение 1 : 1) подтвердила вышеизложенное.

При фторировании неразбавленным фтором и при более высокой температуре ($500 - 550^\circ \text{C}$) происходит совместная возгонка UF_6 и PuF_6 . Совместная возгонка гексафторида урана и плутония может использоваться как самостоятельный процесс для получения смесей определенного состава с дальнейшим превращением этой смеси в окислы, пригодные для изготовления твэлов. Однако для получения чистых соединений урана и плутония необходимо проводить разделение урана и плутония в газовой фазе.

Термический метод разделения урана и плутония основан на термической нестабильности

гексафторида плутония при температуре выше 150° С. Константа равновесия термической диссоциации гексафторида плутония при температуре 600° К равна 300, в то время как эта же константа для гексафторида урана имеет величину порядка $1 \cdot 10^{-22}$, т. е. вероятность распада UF_6 в таких условиях ничтожна.

Исследование кинетики термического разложения $PuF_6 \rightarrow PuF_4 + F_2$ показало, что скорость распада при температуре 300—350° С вполне приемлема для технологических целей.

При конструировании аппаратуры для процессов, связанных с переработкой, транспортировкой и конденсацией гексафторида плутония, необходимо учитывать способность гексафторида плутония разлагаться под действием собственного α -излучения и взаимодействовать со стенками аппаратуры, что приводит к потерям плутония в цепочке аппаратов, коммуникациях и арматуре.

Проблему полного баланса плутония во фторидной схеме регенерации топлива пока нельзя считать решенной. Следует решить вопросы удаления продуктов разложения и коррозии гексафторида плутония.

Превращение фторидов урана и плутония в окислы

Поскольку конечными продуктами регенерационного цикла являются окислы урана и плутония, возникает необходимость превращать фториды урана и плутония в окисные соединения. Наиболее простым и перспективным методом получения окислов урана и плутония является пирогидролизный метод, основанный на взаимодействии фторидов урана и плутония с перегретым водяным паром. При превращении фторидов высшей валентности необходимо присутствие водорода в сфере реакции.

В зависимости от последовательности осуществления операций фторидного метода регенерации можно полученную смесь гексафторидов урана и плутония определенного соотношения (например, $U : Pu = 4 : 1$) направлять на операцию пирогидролиза с получением смеси $UO_2 - PuO_2$ определенного состава.

Этот путь наиболее логичный и простой. Поэтому указанный метод интенсивно разрабатывается как в СССР, так и за рубежом. Основная трудность при осуществлении этого процесса состоит в получении однородного гомогенного твердого раствора окислов урана и плутония.

Соображения по конструктивному оформлению фторидного метода и компоновки оборудования

В настоящее время в СССР много внимания уделяется разработке конструкций аппаратуры фторидного метода и отысканию наиболее рациональной компоновки оборудования в «горячих» камерах. При создании фторидного метода возникла необходимость в разработке принципиально новых конструктивных решений для дистанционно управляемой аппаратуры и оборудования. Например, для монтажа и демонтажа оборудования в «горячих» камерах были разработаны дистанционные разъемы. В одном из вариантов дистанционных разъемов испытывались разъемы с применением легкоплавких веществ.

Более сложными по сравнению с водной технологией оказались вопросы дистанционного управления процессами, арматурой, механизмами и другими элементами схемы.

Разработка фторидного метода регенерации потребовала применения других способов транспортировки твердых радиоактивных веществ по сравнению с водным методом. В частности, широкое применение находит пневматический способ транспортировки порошкообразных продуктов, реализуемый в условиях «горячих» камер.

При испытаниях фторидного метода возникла необходимость в разработке специальной запорной арматуры, средств контроля за процессом и специальных элементов дистанционного управления арматурой и приборами.

Были рассмотрены различные варианты компоновки оборудования фторидного метода регенерации с целью выбора оптимального варианта, обеспечивающего надежное управление технологическим процессом с соблюдением санитарно-гигиенических норм в рабочих помещениях.

Были испытаны различные конструктивные материалы для изготовления аппаратов для фторидной технологии. Наиболее приемлемым оказался никель.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. С. Займовский, В. В. Калашников, П. С. Головинин. Теплоделяющие элементы атомных реакторов. М., Госатомиздат, 1962, стр. 265.
2. Г. П. Новоселов, А. Т. Агеенков. Доклад № 11/755 на 36-м Международном конгрессе по промышленной химии. Брюссель, 1966.
3. Н. П. Глуханов, В. Н. Богданов. Сварка металлов при высокочастотном нагреве. М., «Машгиз», 1962, стр. 96.

4. Г. П. Новоселов, А. Т. Агеевков. «Атомная энергия», 26, 230 (1969).
5. Обзоры по атомной энергии. Вена, МАГАТЭ, 1970, Т. 8, стр. 3.
6. С. Е. Stevenson, D. M. Paige. Power Reactor Technol. and Reactor Fuel Processing, 10, 61 (1966—1967).
7. O'Boyl. Trans. Amer. Nucl. Soc., 10, 462 (1967).
8. O'Boyl. J. Nucl. Mater., 29, 27 (1969).
9. J. Gramman et al. J. Nucl. Mater., 25, 201 (1968).
10. «Атомная техника за рубежом», вып. 8, 31 (1970).
11. О. Д. Казачковский и др. «Атомная энергия», 24, 136 (1968).
12. У. Б. Льюис и др. Женевская конференция (1964), доклад № 19.
13. M. Bennet. J. Nucl. Mater., 25, 260 (1968).
14. W. Mecham et al. Chem. Engng Prog. Simpos. Series, 60, No. 47, 76 (1964).
15. USAEC Report ANL-6029, 1959.
16. В. Н. Прусак ов. Доклад на 36-м Международном конгрессе по промышленной химии. Брюссель, 1966.
17. В. Н. Прусак ов, О. Г. Лебедев, Г. П. Гуц ев. Исследование процесса фторирования закиси урана в кипящем слое. Доклад на II Симпозиуме стран СЭВ по переработке облученного топлива. ЧССР, 1971.
18. В. Н. Прусак ов, В. К. Еж ов. «Атомная энергия», 28, 496 (1970).
19. В. Н. Прусак ов, В. К. Еж ов. Исследования в области переработки облученного топлива. Материалы Симпозиума СЭВ, ЧССР, 1968.

Пути эффективного использования горючего в ядерной энергетике с быстрыми реакторами

А. И. ЛЕЙПУНСКИЙ, В. В. ОРЛОВ, В. Б. ЛЫТКИН,
М. Ф. ТРОЯНОВ, Л. Н. ЮРОВА

(Государственный комитет по использованию атомной энергии СССР,
Министерство высшего и среднего специального образования СССР)

Хорошо известно, что запасы урана на земле достаточны для обеспечения энергетических потребностей людей путем использования ядерных реакторов деления на любой обозримый период времени. Однако, по современным представлениям, лишь ничтожная доля этих запасов может быть отнесена к категории пригодных для экономического использования в ядерных реакторах на тепловых нейтронах. Реактор, охлаждаемый обычной водой (ЛВР), служащий сейчас основой развития ядерной энергетике большинства стран, потребляет 0,6 кг U^{235} в расчете на 1 Мвт электрической мощности в год. При современных ценах на природный уран $C_U \approx 20$ долл/кг это приводит к урановой рудной составляющей стоимости 1 квт·ч электроэнергии 0,04 цент/квт·ч, что примерно на порядок ниже затрат на органическое горючее и обуславливает экономическую эффективность ядерной энергетике.

Переход же к урану по цене 50—100 долл/кг означает заметное повышение затрат на атомную электроэнергию.

Таким образом, ядерная энергетика, призванная решить топливно-энергетическую проблему, сама оказывается перед такой проблемой.

Известны две основные концепции решения проблемы ядерного горючего. Некоторые специалисты предлагают вкладывать средства в разведку новых месторождений, разработку дешевых способов извлечения урана из бедных руд, усовершенствование тепловых реакторов

и развитие ториевого топливного цикла. Другие, в том числе авторы настоящего доклада, видят кардинальное решение топливной проблемы в реакторах-размножителях на быстрых нейтронах.

При достижении определенных показателей воспроизводства эти реакторы способны вовлечь в энергетике огромные запасы урана и тория в будущем, но и в ближайшие годы внедрение быстрых реакторов позволит развить энергетике до крупных масштабов в рамках известных ресурсов дешевого урана.

Исследования и опытные работы, выполненные в некоторых странах в течение последних двух десятилетий, дают возможность рассчитывать на решение проблемы быстрых реакторов с натриевым охлаждением, включая освоение крупных АЭС с такими реакторами, уже в ближайшие годы. Быстрые реакторы составляют сейчас основу перспективных программ развития ядерной энергетике.

Внедрение быстрых реакторов с коэффициентом воспроизводства $K_B > 1$ еще не решает проблемы ядерного горючего. Для этого необходимо, чтобы K_B превышал единицу с достаточным запасом, позволяющим обеспечить вторичным горючим как догрузку существующих, так и ввод новых реакторов. Другими словами, собственный темп роста системы быстрых реакторов ω_0 должен быть по крайней мере равным темпу роста энергетике ω . Для того чтобы быстрые реакторы успели прийти на смену тепловым реакторам, пока те не