

соединений через металлы связан с возможностью изготовления таким путем топлива более высокого качества. Предполагается, что некоторое удорожание стоимости топлива в этом случае будет компенсировано более надежной работой энергетической установки в целом.

Наконец, как перспективное для быстрых реакторов рассматривается металлическое топливо, которое может обеспечить самый высокий коэффициент воспроизводства плутония. Применение металлического топлива связано с необходимостью решения дополнительных важных и нелегких вопросов. Один из них — совместимость топлива с оболочкой при относительно высокой температуре работы твэлов с учетом возможных перегревов в аварийных режимах. По-видимому, это обстоятельство в сочетании с более высокой стоимостью сдерживало развитие работ по металлическому топливу. Однако в последние годы интерес к металлическому топливу возрос. Это объясняется тремя обстоятельствами. Во-первых, появилась возможность усовершенствовать конструкцию реакторов, что позволило снизить температуру оболочек твэлов при сохранении температуры выходящего натрия. Во-вторых, радиационные испытания твэлов показали, что снижение эффективной (или «размазанной») плотности топлива в твэле до 75 % теоретической обеспечивает свободное распухание до 33 об. % и позволяет достичь выгорания не менее 70000—80000 МВт·сут/т U. В-третьих, разработан ряд сплавов, которые

существенно уменьшают взаимодействие сердечника с оболочкой из нержавеющей стали. В частности, сплав (в мас. %) U — 15 Pu — 10 Zr пригоден для использования его при температуре оболочки до 668 °C [6].

В заключение следует отметить исключительную сложность и разнообразие задач, стоящих перед разработчиками топлива и твэлов для АЭС и АСТ. Эти задачи образовали крупное научное направление, стоящее на стыке материаловедения, теплофизики, гидродинамики, физики прочности, ядерной физики и технологии материалов. Итогом работы ученых и конструкторов в содружестве с производственниками является организация современного механизированного и автоматизированного промышленного производства твэлов, обеспечивающего растущие потребности ядерной энергетики нашей страны.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Решетников Ф. Г. — В кн.: Реакторное материаловедение. М., изд. ЦНИИатоминформ, 1978, т. 4, с. 3.
2. Головин И. С. и др. — Атомная энергия, 1977, т. 43, вып. 5, с. 412.
3. Цыканов В. А. и др. — Атомная энергия, 1977, т. 42, вып. 5, с. 378.
4. Решетников Ф. Г. и др. — Атомная энергия, 1977, т. 47, вып. 5, с. 408.
5. Решетников Ф. Г. и др. — In: Proc. IAEA Symp. «Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors». Vienna, 1974, v. II, p. 25.
6. Атомная техника за рубежом, 1980, № 2, с. 42.

УДК 621.039.59.004.46

## Вопросы регенерации отработавшего топлива АЭС

НИКИФОРОВ А. С., ЗЕМЛЯНУХИН В. И., ШМИДТ В. С.

Регенерация отработавшего топлива АЭС рассматривается в СССР как экономически и технически целесообразная составная часть топливного цикла атомной энергетики [1—6]. Переработка топлива реакторов на тепловых нейтронах (РТН) сокращает потребность в создании при АЭС дорогостоящих хранилищ для отработавших сборок твэлов и позволяет повторно использовать в топливном цикле уран (после соответствующего обогащения по  $^{235}\text{U}$ ) при изготовлении новых твэлов для РТН и плутоний — при изготовлении уран-плутониевого топлива для реакторов на быстрых нейтронах (РБН). С помощью комплексной переработки топлива можно получать также нептуний и радионуклиды, использующиеся в «малой» энергетике [7] (стронций, цезий, америций, лантаноиды), а в перспективе — и другие элементы, представляющие интерес для народного хозяйства (палладий, технеций и пр.).

В 10-й пятилетке объем топлива, подлежащего регенерации, определялся числом твэлов ВВЭР

и РБМК [3]. Однако по мере введения в строй новых АЭС с РБН стала актуальной проблема переработки и твэлов этих реакторов. Поскольку реакторы-размножители предназначены как для производства энергии, так и для расширенного воспроизводства делящихся материалов, работа АЭС с РБН целесообразна только при условии регенерации и достаточно быстрого и полного возвращения в цикл нарабатываемого делящегося материала, что повышает требования к регенерационной части топливного цикла.

В настоящее время наибольший опыт накоплен в области регенерации топлива энергетических тепловых реакторов. Одна из самых эффективных схем переработки этого топлива — водно-экстракционный процесс [2].

Для переработки топлива РБН разрабатывают как водные, так и неводные технологические схемы, причем водные, близкие по многим параметрам к схеме переработки топлива РТН, оценивают как более приемлемые для ближайшей, а невод-

ные — как более приемлемые для отдаленной перспективы [4].

**Переработка топлива РТН.** Основные научно-технические решения по технологии и аппаратуре для регенерации топлива РТН, принятые в СССР, подробно описаны в работах [2, 3, 5, 8—11]. Сборки твэлов с выгоранием до 30 гВ·сут/т и временем выдержки не менее 3 лет сплюсывают с помощью специального устройства, затем с помощью пресса рубки разрезают на куски длиной  $\leq 40$  мм и растворяют в азотной кислоте. Полученный азотнокислый раствор осветляется на фильтрах с металлокерамическими перегородками [12, 13] и поступает на экстракцию; нерастворившиеся остатки (обрезки оболочек) удаляются из аппарата-растворителя и направляются на захоронение. Возможность применения такого способа вскрытия твэлов (рубка — растворение), впоследствии принятого во всех странах, перерабатывающих топливо, впервые продемонстрирована советскими учеными еще в 1957 г. [14].

Азотнокислый раствор направляется на совместную экстракцию урана, плутония и нептуния 30%-ным раствором трибутилфосфата (ТБФ) в углеводородном разбавителе. Критерии выбора оптимального состава разбавителя, учитывающие как результаты исследования физико-химических свойств, радиационной и химической устойчивости насыщенных углеводородов с различной длиной алкильных цепочек и с различным содержанием примесей, так и оценку (с помощью шкалы параметров ВР [15]) влияния компонентов разбавителя на экстракционную способность ТБФ, проанализированы в работе [16]. Показано, что разбавитель имеет достаточно высокую температуру вспышки ( $> 85^\circ$ ), приемлемо низкую температуру плавления ( $< 5^\circ$ ), удовлетворительные вязкость, плотность и поверхностное натяжение, высокую химическую и радиационную устойчивость при вполне удовлетворительной для переработки твэлов РТН емкости органической фазы по плутонию (IV) в том случае, если длина углеводородной цепочки насыщенных углеводородов нормального строения находится в пределах  $C_{12}$ — $C_{15}$ , содержание спиртов не превышает 0,1%, ароматических соединений 0,5% и олефинов 0,01% [16].

В первом цикле экстракции извлекающиеся совместно уран, плутоний и нептуний отделяют от основной массы радионуклидов — продуктов деления и примесей, остающихся в водно-хвостовом растворе, который поступает на упарку и отверждение. Затем из экстракта с помощью восстановительных реакций (а иногда и комплексообразователей) избирательно реэкстрагируют плутоний и нептуний, после чего проводят также реэкстракцию урана разбавленным раствором азотной кислоты.

Водные потоки, содержащие уран, а также плутоний и нептуний, направляют на соответ-

ствующие циклы конечной очистки [3, 11, 17] и последующее выделение твердых соединений.

Как отмечалось [3], схемы, разработанные в СССР, отличаются в первом цикле чрезвычайно высокими коэффициентами очистки ценных компонентов от  $\beta$ - и  $\gamma$ -активных радионуклидов, превышающими  $10^5$ , что на 1—2 порядка больше опубликованных значений для схем очистки уран-плутониевого топлива, основанных на экстракции трибутилфосфатом. Такие показатели достигаются за счет соответствующего выбора структуры потоков и условий проведения процессов.

В циклах конечной очистки плутония и нептуния широко используют рефлекс-процесс, что также способствует повышению коэффициентов очистки при значительном дополнительном концентрировании ценных элементов [3, 18]. Оптимальные условия проведения процесса экстракции выбирают, как правило, с помощью математического моделирования на ЭВМ [19—23] и поддерживают автоматическим регулированием. Цель автоматического регулирования — обеспечение условий, максимально благоприятствующих очистке и концентрированию ценных компонентов при гарантированном поддержании других показателей (например, извлечения) на требуемом уровне.

Поскольку важной операцией первого цикла является восстановление плутония и нептуния, подробно изучены [24—26] восстановительные реакции, основанные на применении растворов урана (IV) и некоторых других восстановителей, и выбраны условия, обеспечивающие глубокую очистку урана от реэкстрагируемого плутония при достаточном концентрировании и очистке последнего от урана. Тем не менее продолжается работа, направленная на замену процессов с использованием химических реагентов на электрохимические процессы, не требующие введения солей и легче поддающиеся автоматизированному управлению.

Актуальность таких исследований стала очевидной в связи с последними открытиями некоторых особенностей процесса восстановительной реэкстракции плутония ураном (IV). Установлено, что при концентрации урана (IV) в экстракте  $> 0,03$  М он подвергается автокаталитическому окислению, причем скорость процесса прогрессивно возрастает с увеличением концентрации. Электрохимическое восстановление с распределением электродов по всем ступеням аппарата восстановительной реэкстракции позволяет, в принципе, поддержать на всем протяжении контактора относительно низкую, но достаточную для проведения процесса концентрацию урана (IV), что обеспечивает снижение потерь последнего и более полное восстановление и удаление плутония из экстрагента. При переходе к топливу РТН с высоким накоплением плутония и, особенно, к топливу РВН электрохимическое восстановление может

стать важным резервом требуемого повышения коэффициента очистки урана от плутония.

В настоящее время установлено также [27], что причиной ухудшения показателей операций восстановительной реэкстракции при кислотности водной фазы более 1,5 М  $\text{HNO}_3$  может быть образование в экстрагенте азотистой кислоты, окисляющей уран (IV) и плутоний (III). Эффективным средством противодействия этому явлению служит введение в экстрагент растворимых в органической фазе «антинитритов» (ацетальдоксима или гидрофобных восстановителей, например диэтилгидроксиламина), что, по данным работы [27], позволяет количественно реэкстрагировать плутоний из 30%-ной ТВФ при концентрации азотной кислоты в реэкстракте до 3,5 М. Эффективность действия растворимых в органической фазе восстановителей и антинитритов впервые показана в работах советских исследователей [28—30].

В качестве аппаратов для проведения процессов экстракции используют как смесители-отстойники, так и колонны [8, 31], а в циклах конечной очистки также центробежные экстракторы [32]. Смесители-отстойники (аппараты, наиболее легко моделируемые и поддающиеся простым масштабным переходам при конструировании) обеспечивают стабильную работу даже при периодических остановках процесса, позволяют выводить потоки растворов с любой ступени противоточной экстракции. Этими же достоинствами обладают центробежные экстракторы (ЦБЭ), которые характеризуются малым временем пребывания растворов и небольшими объемами продукта и экстрагента в цикле, что повышает безопасность процесса и снижает объем незавершенного производства. Вместе с тем сложность конструкции ЦБЭ повышает требования к качеству их изготовления, обслуживанию и ремонту. В отличие от указанных типов экстракторов в колоннах вероятность накопления осадков и межфазных образований меньше; по времени пребывания материала в аппарате колонны имеют преимущества перед смесителями-отстойниками (но уступают ЦБЭ), для них характерна простота конструкции. Однако при конструировании колонны требуют более сложного моделирования процесса, а при эксплуатации более чувствительны к остановкам и нарушениям режима, обеспечивая хорошие показатели при стабильной непрерывной работе.

Перевод очищенных плутония и непутия из растворов в форму конечных твердых продуктов можно осуществлять путем осаждения их оксалатов и прокаливания последних затем до окислов. Уран можно осаждать в виде диураната аммония, а при необходимости получения смешанного уран-плутониевого топлива — в виде смеси диураната аммония — гидроокиси плутония (IV) с последующим прокаливанием и восстановлением до  $(\text{U, Pu})\text{O}_2$ . Исследованы также процессы получе-

ния окислов (индивидуальных и смешанных) путем прямой термической денитрации реэкстрактов после их концентрирования.

Требования, предъявляемые к дальнейшему использованию конечных регенерированных продуктов, предполагают контроль за изотопным составом последних и, в частности, за содержанием нуклидов — источников дочерних элементов высокоактивных  $\gamma$ -излучателей. Обзор данных о возможном накоплении первичных и вторичных радионуклидов в конечных продуктах регенерации отработавшего топлива приведен в работе [33]. Там же приведены опубликованные данные об условиях, при которых не возникает существенных ограничений, связанных с защитой от  $\gamma$ -излучения на стадиях повторного использования регенерированных урана и плутония в топливном цикле.

По мере увеличения объема топлива, подлежащего переработке, возрастает значение проблемы локализации трития, содержащегося в твэлах. Возможны два пути решения этого вопроса: зацикловка трития в схеме или удаление его в голове процесса путем окислительной перекристаллизации нарубленного топлива. Поступающий с твэлами тритий частично остается в оболочках, частично выделяется в газовую фазу при рубке, но основная его часть попадает в раствор, получаемый после растворения топлива, и затем в рафинаты первого цикла экстракции, а после их упарки — в отогнанную кислоту и воду. В схеме с зацикловкой трития эти продукты возвращаются на операцию первого цикла, что уменьшает количество выводимых из процесса и подлежащих захоронению тритийсодержащих растворов. При полной замене в первом цикле свежей воды рециклируемой объем выводимой тритиевой воды в принципе может быть снижен до относительно небольшого количества, образующегося из свежей азотной кислоты в результате реакции окисления урана (IV) до урана (VI) на стадии растворения. Другой путь удаления трития — окислительная перекристаллизация топлива перед растворением — наиболее подробно исследован при разработке неводных методов регенерации топлива, описанных ниже. Этот метод позволяет отогнать тритиевую воду, а также ряд газообразных и летучих продуктов деления до растворения топлива и таким образом локализовать их в малом объеме. Оба метода, к достоинствам которых принадлежат простота аппаратного оформления для рецикла и совмещение удаления трития и некоторых других летучих продуктов деления в малый объем для окисления, требуют для своей реализации решения ряда технологических и конструкторских проблем.

Дальнейшие исследовательские работы по развитию основной технологии регенерации отработавшего топлива направлены на создание процес-

сов и аппаратов более высокого быстродействия с меньшим временем пребывания материалов и с большей единичной мощностью. Эти изыскания являются главным резервом повышения производительности труда персонала и производительности оборудования, сокращения капитальных и эксплуатационных затрат — актуальной задачи в связи с неуклонным ростом мощностей ядерной энергетики СССР и, соответственно, увеличением потребности в регенерации топлива.

Созданная в СССР технология регенерации твэлов РТН предусматривает их комплексную переработку и получение наряду с ураном и плутонием также концентратов трансплутониевых (ТПЭ) и редкоземельных элементов (РЗЭ) и стронция [3, 7]. Перед циклом извлечения этих элементов водно-хвостовой раствор первого цикла, содержащий всю сумму продуктов деления, упаривается (с целью удаления азотной кислоты) и частично нейтрализуется. Затем из водного раствора с помощью 0,6 М раствора ди-(2 этилгексил)-фосфорной кислоты (ДЭГФК) в углеводородном разбавителе извлекаются совместно америций, кюрий, стронций и РЗЭ. Разделяют эти элементы с помощью последовательных стадий реэкстракции. Вначале разбавленной азотной кислотой (0,4 М в реэкстракте) проводится избирательная реэкстракция стронция, затем 0,8 М раствором молочной кислоты с добавкой 0,05 М диэтилтриаминоэтилтаацетата натрия реэкстрагируется америций и кюрий, после чего 3 М раствором азотной кислоты реэкстрагируются РЗЭ. Эта схема позволяет получать стронциевый концентрат с выходом  $>95\%$  и содержанием америция, кюрия и РЗЭ не более 1,5 % каждого. Выход америция и кюрия превышает 92 % (содержание РЗЭ 0,015 %), выход РЗЭ составляет 94 % (содержание америция и кюрия по 1 %) [7].

Необходимость снижения концентрации кислоты в растворах перед экстракцией ДЭГФК требует специальных операций по отгонке или нейтрализации  $\text{HNO}_3$ . Поэтому ведутся поиски экстрагентов, способных извлекать трехвалентные актиноиды и лантаноиды, стронций и цезий непосредственно из растворов 2—3 М  $\text{HNO}_3$ . Хотя существуют технологические трудности, пока ограничивающие возможность практического применения найденных новых экстрагентов, установлено, что трансплутониевые и редкоземельные элементы хорошо извлекаются из кислых растворов диоксидом фосфина [34, 35] и бидентатными экстрагентами, содержащими одновременно Р=О и С=О группы [36], а цезий и стронций извлекаются из 2—3 М  $\text{HNO}_3$  дикарболлидами — производными карбоанов [18, 37].

В перспективе по мере возникновения недостаточного спроса в народном хозяйстве из рафинатов экстракционной схемы переработки твэлов можно извлекать также некоторые другие ценные эле-

менты, например технеций и палладий. Возможность извлечения из азотнокислых растворов технеция методом экстракции показана в работах [18, 38], сорбцией на анионитах — в работе [39]. Палладий также может быть извлечен из рафинатов экстракционным [18, 40] или анионообменным методом.

Основой дальнейшего усовершенствования технологии переработки твэлов РТН должны служить проводящиеся теоретические исследования в области кинетики экстракционных процессов [41—44], математического моделирования противоточной экстракции [20—23], прогнозирования свойств экстрагентов различного строения и разбавителей различной природы [15, 19, 45], работы по препаративной химии твердых соединений плутония и других актиноидов [25]. Успехи в исследованиях научных основ технологии регенерации топлива РТН являются также базой для создания технологической схемы переработки топлива РБН, отвечающей современным требованиям.

**Переработка топлива РБН водными методами.** Водно-экстракционная технология переработки твэлов РБН-размножителей во многом совпадает с технологией переработки топлива РТН; использование такой технологии для твэлов РБН облегчается наличием большого объема информации по промышленной переработке топлива РТН, поэтому водные методы переработки топлива РБН рассматриваются в СССР как наиболее подготовленные в настоящее время к промышленному внедрению [4, 6].

Принципиальная схема переработки сборок твэлов РБН, созданная в нашей стране, описана в работах [4, 46, 47]. Сборки твэлов предварительно обрабатывают для отделения следов теплоносителя — натрия и направляют на разделку — механическую рубку (при переработке топлива с выдержкой 1 год и более) или на вскрытие методом оплавления оболочки (при выдержке менее 1 года). Затем топливо растворяют в азотной кислоте, раствор поступает на осветление, а нерастворившийся остаток — на контрольное дорастворение в азотной кислоте с добавкой плавиковой кислоты. После механического вскрытия обрезки оболочки, отделенные от раствора, могут быть переплавлены в компактные слитки для уменьшения объема необходимых хранилищ [48]. Осветленный раствор, содержащий уран, плутоний, нептуний, продукты деления, трансплутониевые элементы и неактивные примеси, направляется на операцию отгонки иода и, в случае необходимости, стабилизации валентности плутония и нептуния. Подготовленный раствор поступает на совместную экстракцию урана и названных элементов 30 %-ным раствором ТБФ в парафиновом разбавителе. Экстракция урана включает три цикла, причем плутоний извлекается совместно с ураном не только в первом, но и во втором цикле. Во втором цикле

плутоний отделяется от урана с помощью восстановительной реэкстракции, если требуется получить чистый плутониевый продукт, или с помощью вытеснительной реэкстракции, если требуется получить смешанный уран-плутониевый продукт (с отношением  $U : Pu \geq 3 : 1$ ). В обоих случаях плутонийсодержащие водные растворы направляются на цикл доочистки и затем на получение окислов. Оставшийся в экстракте второго цикла уран, практически полностью очищенный от плутония, поступает на реэкстракцию, на третий цикл доочистки и затем на получение окислов. Продукты деления и примеси практически полностью остаются в водно-хвостовом растворе первого цикла, который упаривается и затем может быть направлен на доизвлечение ценных элементов — ТПЭ и некоторых продуктов деления. Проверка технологической схемы на облученных материалах подтвердила возможность ее использования для регенерации отработавшего топлива РБН при вполне удовлетворительных показателях извлечения и очистки ценных компонентов. Как известно, имеются существенные отличия между топливом РБН и РТН, состоящие главным образом в более высоком содержании плутония и продуктов деления в твэлах РБН.

В связи с этим изучено распределение больших концентраций (20—50 г/л) плутония между азотнокислыми растворами и 30 %-ной ТБФ и созданы соответствующие математические модели распределения для значений концентраций, близких к насыщению органической фазы ураном и плутонием [46—51]; такие модели использованы при анализе распределения плутония в первом цикле экстракции, а также в условиях цикла вытеснительного разделения урана и плутония [46]. Получены данные о емкости 30 %-ной ТБФ в додекане по отношению к нитрату плутония (IV) в различных условиях [47]. Продолжены исследования влияния  $\alpha$ - и  $\gamma$ -радиолиза в водных растворах на валентное состояние плутония [52—54]. Также изучено влияние высокой концентрации плутония на  $\alpha$ -радиолиз ТБФ и исследован механизм протекающих при этом процессов и состав образующихся соединений [54]. Поскольку при обработке нерастворившихся остатков в голове процесса может вводиться HF, представляют интерес исследования механизма и закономерностей влияния ионов фтора на экстракцию азотной кислоты и плутония (IV) ТБФ из нитратных растворов [55—57].

Влияние макроконцентраций продуктов деления, находящихся в растворах при переработке топлива РБН, на процессы радиационно-химического разложения ТБФ рассмотрено в работах [58, 59]. Показано, что если при переработке топлива РТН работоспособность экстрагента в основном обеспечивается внутрициклового содовой или щелочной промывкой, то при переработке топлива

РБН могут оказаться необходимыми операции глубокой регенерации ТБФ с периодическим выведением части экстрагента из цикла. Решению этой задачи помогают исследования глубокой регенерации экстрагента с помощью промывки различными реагентами [59], а также сорбционными [60] и электрохимическими методами. Сохранению работоспособности экстрагента, очевидно, должно способствовать и сокращение времени контакта экстрагента с высокоактивными растворами. Исследования кинетики экстракции [43, 61—64] позволяют оценить допустимые пределы снижения этого времени. Экстракционная химия некоторых элементов — продуктов деления, находящихся в граммовых концентрациях в растворах при переработке топлива РБН, например палладия и технеция, ранее была относительно мало изучена. Недостаток данных о химии этих элементов в последние годы в значительной мере восполнен в работах, выполненных в СССР и в странах — членах СЭВ [48, 37—40, 65—70].

Водно-экстракционная технология переработки топлива РБН несомненно будет в дальнейшем усовершенствоваться. Однако уже в настоящее время степень ее проработки достаточна для практического использования.

**Переработка топлива РБН неводными методами.** Наиболее разработанная из неводных схем регенерации топлива РБН включает операции вскрытия топлива термическим методом, его окисления, фторирования и переработки гексафторидов. Операции вскрытия и окисления проверены на урановом и уран-плутониевом топливе, фторирование и последующие операции очистки урана и плутония — на урановом топливе [53].

Опыты по вскрытию проводили с топливом, имеющим выгорание 135 ГВт·сут/т и время охлаждения ~200 сут. Соотношение сталь : топливо (по массе) в исходном материале составляло ~4 : 3. В результате оплавления оболочки достигали практически полное отделение стали от топлива [54—56]. При вскрытии уран-плутониевого топлива выход плутония составлял ~99,7 %, содержание стали в топливе < 3 %, плутония в слитке стали 0,003 %, в футеровке тигля ~0,02 %.

Следующая операция неводной схемы переработки топлива — окислительная перекристаллизация — приводит к измельчению материала до частиц, удобных для фторирования, обеспечивает удаление некоторых газообразных и летучих продуктов деления, а также облегчает гравитационное отделение оставшегося в топливе после оплавления небольшого количества нержавеющей стали. Условия проведения операции окисления проверены вначале на необлученном материале, содержащем до 15 % плутония [54]. Показано, что скорость окисления растет при увеличении температуры и перемешивании материала. Топливо, вскрытое термическим способом из-за трещин,

возникающих от термического напряжения, окисляется быстрее, чем вскрытое механическим способом. Скорость окисления для брикетов, изготовленных из смешанных окислов, меньше, чем для брикетов из чистой двуокиси урана. Облученное топливо в результате окисления диспергируется в меньшей степени, чем необлученное [71], вероятно, вследствие высокого (до 12 %) содержания продуктов деления. Результаты, полученные в СССР и за рубежом [74], указывают на возможность почти полного удаления газообразных продуктов деления в процессе высокотемпературной окислительной перекристаллизации топлива. Процесс отгонки этих элементов происходит более полно при перемешивании слоя окисляемого материала.

На пилотной демонстрационной установке получен большой экспериментальный материал по технологическим показателям процесса фторирования и последующей газофторидной переработки топлива РБН на основе двуокиси урана [71] (перерабатывалось топливо с выгоранием 10—12 % и выдержкой от 4 до 48 мес). Схема включала операции фторирования топлива, сорбции гексафторида урана на фториде натрия, десорбции и повторной сорбции  $UF_6$  на  $NaF$ , десорбции и конденсации гексафторида урана с последующей перекоденсацией его в емкость — сборник готового продукта. Во всех опытах достигнуто удовлетворительное извлечение урана и достаточно высокие коэффициенты очистки его от продуктов деления. Выход урана в конечный продукт превышает 99,6 %. Найденны эффективные приемы повышения степени очистки для отдельных операций схемы. Дальнейшая исследовательская работа по газофторидной схеме будет направлена на оптимизацию условий переработки уран-плутониевого топлива.

Одна из возможностей повышения эффективности рассмотренной неводной технологии — дополнение ее солевым процессом извлечения тех ценных компонентов, которые задерживаются в нелетучих остатках фторирования. Эти остатки растворяются в расплавленных фтористых солях с последующим выделением из расплава и возвращением в схему твердых окислов урана и плутония с помощью фторкислородного обмена. Процесс основан на добавлении в расплав окислов алюминия или кальция, переводящих фториды четырехвалентных актиноидов в их окислы, нерастворимые во фторидном расплаве [75]. Применение солевого процесса, вероятно, могло бы повысить общее извлечение ценных компонентов в газофторидной схеме и приблизить ее по этому показателю к водно-экстракционной.

Комплекс проведенных исследовательских работ по созданию водной и неводной технологий регенерации облученного топлива РБН, а также опыт создания и использования схем регенера-

ции топлива РТН является основой для решения задач по регенерации топлива, которые будут возникать по мере развития атомной энергетики СССР, в том числе в связи со строительством АЭС с РБН.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Петросьянц А. М. Современные проблемы атомной науки и техники в СССР. М., Атомиздат, 1976.
2. Атомная наука и техника в СССР. Под ред. И. Д. Морозова. М., Атомиздат, 1977.
3. Фомин В. В.— Атомная энергия, 1977, т. 43, вып. 6, с. 481.
4. Демьянович М. А. и др.— Атомная энергия, 1977, т. 43, вып. 6, с. 486.
5. Галкин Б. Я. и др.— В кн.: Труды IV симп. СЭВ «Исследования в области переработки облученного топлива». Карловы Вары, 1977, т. 1, с. 14.
6. Землянухин В. И. и др.— В кн.: Труды IV симп. СЭВ «Исследования в области переработки облученного топлива». Карловы Вары, 1977, т. 1, с. 28.
7. Шевченко В. Б. и др.— В кн.: Труды III симп. СЭВ «Исследования в области переработки облученного топлива». Марианске Лазне, 20—26 апр. 1974, т. II, с. 144.
8. Асиновский П. В. и др.— Там же, с. 50.
9. Воден В. Г. и др.— Там же, т. I, с. 14.
10. Шевченко В. Б. и др.— Там же, т. II, с. 206.
11. Шевченко В. Б. и др. IV Женевск. конф. 1971, докл. СССР № 435.
12. Розен А. М. и др.— Там же, с. 152.
13. Нудель А. М. и др.— Там же, с. 184.
14. Шевченко В. Б. и др. II Женевск. конф. Т. 4. М., Атомиздат, 1959, с. 28.
15. Шмидт В. С.— Успехи химии, 1978, т. 47, с. 1730.
16. Егоров Г. Ф. и др.— Атомная энергия, 1979, т. 47, вып. 2, с. 75.
17. Шевченко В. Б. и др.— [7], с. 206.
18. Mасаšek F. e. a.— In: Proc. Intern. Conf. «ISEK — 80». Liège, 6—12 Sept. 1980, Rep. 80-139.
19. Шмидт В. С., Шестериков В. Н.— Радиохимия, 1975, т. 17, с. 729.
20. Розен А. М. и др.— [5], с. 108.
21. Зельвенский М. Я. и др.— [5], с. 126.
22. Розен А. М.— Атомная энергия, 1976, т. 41, вып. 2, с. 91.
23. Розен А. М.— Радиохимия, 1976, т. 18, с. 572.
24. Колтунов В. С. Кинетика окислительно-восстановительных реакций актиноидных элементов. М., Атомиздат, 1974.
25. Чайхорский А. А. Химия нептуния. М., Атомиздат, 1977.
26. Рыков А. Г.— Радиохимия, 1979, т. 21, с. 49.
27. Colarik Z.— [48], Rep. 80-214.
28. Шмидт В. С. и др. Тезисы докладов на XI Менделеевском съезде, 1975. Тезисы секции неорганической химии и радиохимии. М., Наука, 1975.
29. Шевченко В. Б. и др.— [7], с. 206.
30. Шмидт В. С. и др.— Радиохимия, 1976, т. 18, с. 216.
31. Карпачева С. М. и др.— [7], с. 228.
32. Кузнецов Г. И. и др.— [7], с. 216.
33. Матвеев Л. В., Центер Э. М.— Атомная техника за рубежом, 1980, № 4, с. 10.
34. Розен А. М. и др. [28].
35. Чмутова Н. К. и др. Радиохимия, 1978, т. 20, с. 713.
36. Мазухе Н. e. a.— [48], Rep. 80-193.
37. Лазарев Л. И. и др.— В кн.: Получение и выделение радиоактивных изотопов. Тезисы докладов I Всесоюзного совещания. Ташкент, ФАН, 1980, с. 12.

38. Волк В. И. и др.— Там же, с. 35.
39. Спицын В. И. и др.— Там же, с. 32.
40. Скороваров Д. И. и др.— Там же, с. 14.
41. Фомин В. В. и др.— Радиохимия, 1975, т. 17, с. 754.
42. Фомин В. В.— Там же, с. 747.
43. Фомин В. В. Кинетика экстракции. М., Атомиздат, 1977.
44. Пушленков М. Ф. и др. [5], с. 90.
45. Шмидт В. С. Экстракция аминами. М., Атомиздат, 1980.
46. Ренард Э. В. и др.— [5], с. 132.
47. Ренард Э. В.— Радиохимия, 1976, т. 18, с. 560.
48. Новоселов Г. П., Перевозчиков С. А. Высокотемпературные методы подготовки материалов оболочек твэлов АЭС к хранению. Докл. на конф. МАГАТЭ по обращению с альфа-активными отходами. Париж, 1977.
49. Верещагин В. Е.— Атомная энергия, 1978, т. 44, вып. 4, с. 422.
50. Верещагин В. Е. и др.— Радиохимия, 1975, т. 17, с. 766.
51. Ренард Э. В. и др.— Радиохимия, 1979, т. 21, с. 386, 548.
52. Колтунов В. С. и др.— [5], 1977, с. 46.
53. Рыков А. Г.— Радиохимия, 1979, т. 21, с. 849.
54. Владимирова М. В. и др. Докл. на конф., посвященной памяти Н. А. Бах. М., изд. Ин-та электрохимии АН СССР, 1979.
55. Купрюнин Г. И., Ренард Э. В.— Радиохимия, 1980, т. 22, с. 119.
56. Купрюнин Г. И., Ренард Э. В.— Там же, с. 126.
57. Купрюнин Г. И., Ренард Э. В.— Там же, с. 386.
58. Повак З. и др.— [5], с. 8.
59. Васильев В. Г. и др.— [5], с. 60.
60. Егоров Г. Ф. и др.— Радиохимия, 1980, т. 22, с. 394.
61. Шпитц П.— [5], с. 84.
62. Пушленков М. Ф.— [5], 1977, т. II, с. 90.
63. Тарасов В. В., Ягодин Г. А. Итоги науки и техники. Сер. Неорганическая химия. Т. 4, М., ВИНТИ, 1974.
64. Пушленков М. Ф. Препринт НИИАР П-116, 1971.
65. Мацашек Ф. и др.— [5], с. 188.
66. Волк В. И. и др.— Jadrna energie, v. 20, p. 380.
67. Пржигода И.— [5], с. 198.
68. Горский Б. и др.— [5], 1977, т. 1, с. 98.
69. Gorski V.— Isotopenpraxis, 1978, B. 14, S. 137.
70. Mikulay V. e. a.— J. Radioanal. Chem., 1979, v. 51, p. 55.
71. Новоселов Г. П.— Атомная энергия, 1979, т. 46, вып. 3, с. 254.
72. Прусаков В. И. и др.— [5], т. 1, с. 264.
73. Кириллович А. П. и др.— [5], 1977, т. 1, с. 276.
74. Галкин Н. П. и др.— [5], 1977, т. 1, с. 282.
75. Горбунов В. Ф. Тезисы докл. на III Всесоюзн. конф. по химии урана. М., Наука, 1978.
76. Vesely V.— Jadrna energie, 1980, v. 26, p. 189.

УДК 621.039.71

## Обращение с радиоактивными отходами АЭС и регенерации отработавшего ядерного топлива

НИКИФОРОВ А. С., ЖИХАРЕВ М. И., ЗЕМЛЯНУХИН В. И., КУЛИЧЕНКО В. В.,  
НАХУТИН И. Е., ПОЛЯКОВ А. С., РАКОВ Н. А.

### Методы переработки, отверждения и захоронения жидких радиоактивных отходов

**Жидкие отходы низкого и среднего уровней активности.** К таким отходам принадлежат отходы АЭС с радиоактивностью не выше  $1 \cdot 10^{-4}$  Ки/л ( $1 \text{ Ки} = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ Бк}$ ). В СССР эксплуатируют АЭС с реакторами ВВЭР (водо-водяные) и РБМК (кипящие), которые являются источниками следующих основных видов жидких радиоактивных отходов (ЖРО).

#### Гомогенные отходы:

растворы для регенерации ионообменных фильтров очистки контурной воды, конденсатов турбин и т. п.;

растворы от дезактивации контура, оборудования, помещений, пневмокостюмов, спецодежды, персонала;

протечки воды из контура, а также из коммуникаций, емкостей, и т. п.

#### Гетерогенные отходы:

пульпы фильтроперлита и ионообменных смол (КУ-2 и АВ-17) от намывных механических и ионообменных фильтров очистки контурной воды, конденсатов и других малосолевых вод.

Регенерационные растворы, а также растворы от дезактивации контура и оборудования относятся

к группе солевых отходов, так как представляют собой смесь кислых и щелочных растворов достаточно высокой концентрации (до 5 мас. %). Другие отходы относятся к группе малосолевых, поскольку в их состав входит небольшое количество продуктов коррозии, аммиака, борной кислоты (протечки контурной воды) или добавок, способствующих улучшению дезактивации [поверхностно-активные вещества (ПАВ), перманганат калия, щавелевая кислота, сода, фосфаты и др.]. Обычно растворы для регенерации и дезактивации приготавливают на оборотном конденсате; только в саншлюзах, прачечных и душевых используют водопроводную воду, которая и является источником попадания в ЖРО солей жесткости и ионов хлора.

Отличия в составах ЖРО и их источниках для АЭС с реакторами ВВЭР и РБМК не носят принципиального характера, и поэтому схемы их локализации практически одинаковы.

В настоящее время в СССР на АЭС ЖРО перерабатывают по следующей технологии [1, 2]. Все гомогенные отходы собирают в приемные емкости для смешения и усреднения. После отделения грубой взвеси и корректировки pH до  $\sim 11$  смесь упаривается до насыщения 300 г/л по солям. Концентрат направляется в хранилище жидких