

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ПРОМЫШЛЕННЫХ ОТХОДОВ

УДК 621.039.59

Комплексное использование
минерального сырья. № 1. 2018.

А. В. БАЛИХИН

*Всероссийский институт научной и технической информации Российской академии наук,
Москва, Россия, e-mail: metall@viniti.ru*

О СОСТОЯНИИ И ПЕРСПЕКТИВАХ РАЗВИТИЯ МЕТОДОВ ПЕРЕРАБОТКИ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА. ОБЗОР

Резюме: Рассмотрены некоторые методы переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) и концепция развития реакторов на быстрых нейтронах (РБН) с натриевым теплоносителем. Россия в настоящее время является безусловным лидером в области разработок, а также обладает необходимым опытом эксплуатации РБН – инновационной технологии атомной энергетики. Это обеспечивает эффективное использование урановых ресурсов и безопасность обращения с ОЯТ. На объектах «Росатома» накоплено более 24 тыс. т ОЯТ. Ежегодно из реакторов российских АЭС выгружается примерно 650 т отработавшего топлива, при этом перерабатывается не более 15 % этого объема. Плутоний, выделенный при переработке ОЯТ реакторов на тепловых нейтронах, может быть использован в виде МОХ-топлива (Mixed Oxide fuel) – смесь $UO_2 + PuO_2$. Применение выделенного Pu в МОХ-топливе позволяет снизить потребность в U на величину до 30 %. Содержание PuO_2 в МОХ составляет от 1,5 до 25-30 мас. %. Такое топливо эффективно использовать в РБН. Одним из достоинств такого топлива является то, что при его производстве необратимо утилизируются излишки оружейного плутония, которые в противном случае могли бы использоваться для создания ядерного оружия странами с нестабильными режимами. В России программа развития атомной энергетики ориентирована на замкнутый ядерный топливный цикл (ЗЯТЦ) на базе РБН. Лишь частичное или полное замыкание топливного цикла может обеспечить устойчивое развитие атомной энергетики. Другим долгосрочным вариантом может стать использование тория. Технологическая и экологическая целесообразность переработки ОЯТ АЭС зависит от полноты вовлечения в ЯТЦ регенерированных ядерных материалов – урана и энергетического плутония. Поэтому крайне важно своевременное строительство серии энергоблоков типа БН-1200, которые должны стать основными потребителями энергетического плутония, получаемого при переработке ОЯТ.

Ключевые слова: отработавшее ядерное топливо, переработка отходов, уран, плутоний, оксиды, кислотное выщелачивание, жидкостная экстракция, электролиз расплавов, ядерные реакторы, атомная энергетика

Введение. В настоящее время обращение с отработавшим ядерным топливом (ОЯТ) является стадией, ограничивающей перспективы развития атомной энергетики. Во всех странах с атомной энергетикой (кроме Франции) накоплены колоссальные объемы ОЯТ, и нерешенность данной проблемы ставит под сомнение реализацию дальнейших планов развития атомных проектов. Современное состояние развития ядерных технологий характеризуется переходом к новой технологической платформе на основе расширенного воспроизводства топлива и сжигания плутония, америция, кюрия и нептуния в быстрых энергетических реакторах нового поколения, а также трансмутацию долгоживущих продуктов деления. В России обширная номенклатура накопленного топлива связана с историей развития атомной энергетики. Частичное повторное использование ядерных материалов сокращает объемы ОЯТ и высокоактивных отходов (ВАО), одновременно снижая потребность в

природном уране. Поэтому для решения проблемы ОЯТ необходимо развитие целого ряда уникальных технологий и создание комплекса объектов инфраструктуры.

Современное состояние обращения с ОЯТ. Сложившаяся в России система обращения с ОЯТ включает хранение, транспортировку и переработку ОЯТ. Хранение осуществляется в приреакторных и пристанционных хранилищах атомных электростанций и исследовательских реакторов. В хранилищах бассейнового типа на двух комбинатах Госкорпорации «Росатом» – ФГУП «Железногорский ГХК» и ФГУП ПО «Маяк» – скопилось соответственно по 8600 т и 2500 т. отходов. ОЯТ транспортных реакторов хранятся на судах технологического обслуживания атомного ледокольного флота и береговых технических базах.

На объектах «Росатома» накоплено более 24 тыс. т ОЯТ и более 350 тыс. т в хранилищах других стран с ядерной энергетикой и вооружением. Еже-

годно из реакторов российских АЭС выгружается примерно 650 т отработавшего топлива, при этом перерабатывается не более 15 % этого объема [1]. Глубина выгорания топлива реакторов для получения плутония существенно отличается от глубины выгорания топлива энергетических реакторов. Схема обращения с ОЯТ различных видов на период до 2030 г. представлена на рисунке 1.

Первоначально ОЯТ подвергалось переработке исключительно с целью извлечения плутония при производстве ядерного оружия. В настоящее время наработка оружейного плутония практически прекращена. Впоследствии возникла необходимость в переработке топлива энергетических реакторов. Одна из целей переработки топлива энергетических реакторов – повторное использование в качестве энергетического реакторного топлива, в том числе в составе MOX-топлива (Mixed Oxide fuel – смесь $UO_2 + PuO_2$) или для реализации закрытого топливного цикла. К 2025 г. планируется создать крупномасштабный перерабатывающий радиохимический завод, который решит проблему

ОЯТ, выгружаемого из существующих и планируемых к созданию АЭС. На Железногорском ГХК предполагается перерабатывать ОЯТ водородных энергетических реакторов – ВВЭР-1000 и большую часть отходов кипящих реакторов большой мощности канального типа – РБМК-1000 в опытно-демонстрационном центре (ОДЦ) и на крупномасштабном производстве. Продукты регенерации будут использоваться в ядерном топливном цикле, уран – в производстве топлива для реакторов на тепловых нейтронах (РТН), плутоний (совместно с непунием) – для РБН, которые обладают нейтронно-физическими свойствами, обеспечивающими возможность эффективного замыкания ЯТЦ. При этом темпы переработки ОЯТ РБМК будут зависеть от востребованности продуктов регенерации (как урана, так и плутония) в ядерном топливном цикле. Подобные подходы легли в основу «Программы создания инфраструктуры и обращения с ОЯТ на 2011-2020 годы и на период до 2030 года», утвержденной в ноябре 2011 года [2].



Рисунок 1 – Схема обращения с ОЯТ различных видов

В России первым предприятием, способным перерабатывать ОЯТ, является ПО «Маяк», основанное в 1948 г. для наработки оружейного плутония. Другие крупные радиохимические заводы – Сибирский химический комбинат и Железногорский горно-химический комбинат. Крупные радиохимические производства действуют в Англии (завод Селлафилд), во Франции (завод Cogema); планируются производства в Японии (Rokkasho), Китае (Lanzhou). В США отказались от массовой переработки выгруженного из реакторов топлива и хранят его в специальных хранилищах. Для переработки чаще всего применяются химические методы разделения [3]. Наиболее простыми являются методы переработки в растворах, однако они дают наибольшее количество жидких радиоактивных отходов, поэтому такие методы были популярны только на заре ядерной эры. В настоящее время ищут методы с минимизацией количества отходов, предпочтительно твердых, которые проще утилизировать остекловыванием. Наиболее активно занимается переработкой топлива Франция на радиохимических заводах в Ла-Аг (LaHague), расположенном на мысе Аг в Нормандии. Причем на этих заводах перерабатываются не только отходы французских предприятий, но и других стран (Японии, Германии). Радиохимические заводы на мысе Аг, принадлежащие фирме Cogema (коммерческий филиал French government's CEA – Atomic Energy Commission), становятся международным центром по переработке облученного топлива. Разработана технология отверждения радиоактивных отходов методом остекловывания. К финансированию сооружения завода UP-3 на компенсационной основе были привлечены заинтересованные заказчики. Так, по контракту с Японией на переработку 1600 т облученного топлива по цене 300 долл./кг U большая часть суммы заказа оплачивалась авансом. Аналогичный контракт на переработку топлива фирмой Cogema заключен с ФРГ. Контрактами предусмотрено, что радиоактивные отходы в остеклованном виде возвращаются заказчику, начиная с 1990 г., в тех же контейнерах, в которых было доставлено облученное топливо. Важнейшими показателями технического совершенства технологии химической переработки и очистки отработавшего топлива являются безвозвратные потери и конечная чистота регенерированных урана и плутония после их аффинажа. Принятый в настоящее время во Франции вариант цикла использования ядерных материалов основывается на «замкнутом» подходе к его реализации. Технологии будущего

должны соблюдать принцип многократного повторного использования плутония вплоть до его полной утилизации. Большинство европейских стран с атомной энергетикой ориентируются на передачу ОЯТ на заводы Франции и России, осуществляющих переработку на коммерческой основе. Пионерами в деле захоронения ОЯТ сегодня выступают Финляндия и Швеция. Финский могильник Онкало для хранения контейнеров с ОЯТ после его выдержки в течение 30 лет в пристанционных хранилищах АЭС будет располагаться в скальной породе на глубине более 500 м под дном Балтийского моря. В настоящее время проработана система захоронения с обеспечением нескольких степеней защиты: топливные сборки будут помещаться в герметичный чугунный кожух для предотвращения смещения сборок, чугунный кожух будет помещен в медную капсулу для защиты от коррозии, а между медными капсулами и скальной породой будет залита бентонитовая глина для обеспечения стабильного положения капсул в породе. После спуска на горизонт захоронения капсулу перевезут в туннель размещения размерами $3,5 \times 4$ м, в полу которого через каждые 10 м высверлен колодец глубиной 8 и диаметром 1,8 м. Практически аналогичную технологию выбрали для захоронения ОЯТ в Швеции. Здесь также намерены складировать ОЯТ в скальных породах, возраст которых составляет около 1,8 млрд. лет и которые расположены на глубине примерно 500 м. Вблизи города Остхеммар в гранитных породах на уровне 450 м под землей создана исследовательская лаборатория, где контейнеры (рисунок 2) для ОЯТ проходят натурные испытания. Причем шведские ученые, в отличие от финских, допускают в будущем возможность извлечения и переработки замурованного глубоко под землей ОЯТ. Шведская технология предусматривает техническое решение для его извлечения.



Рисунок 2 – Шведская капсула для захоронения ОЯТ

Промышленный пуск обеих площадок по захоронению ОЯТ намечен на 2020-е годы. В настоящее время на площадках идут масштабные испытания и пробные закладки партий ОЯТ. Захоронением радиоактивных отходов занимаются и в Литве после закрытия Игналинской АЭС под сильнейшим давлением функционеров Европейского Союза, испугавшихся конкуренции дешёвой электроэнергии, производимой реакторами РБМК. Учитывая сложность и высокую стоимость создания могильников, ограниченность территорий большинства стран, имеющих ядерные реакторы и планирующих их постройку, можно утверждать, что концепция «окончательного» захоронения ОЯТ является тупиковым направлением.

В основе всех современных технологических схем переработки ОЯТ лежат экстракционные процессы, чаще всего так называемый Пьюрекс-процесс (PUREX от англ. Pu- U- Recovery by Extraction), который заключается в восстановительной экстракции плутония из совместного экстракта с ураном и продуктами деления. Конкретные схемы переработки отличаются набором применяемых реагентов, последовательностью отдельных технологических стадий, аппаратным оформлением. Усовершенствованные технологии переработки направлены на отделение также других радиоизотопов (в частности, минорных актинидов и некоторых продуктов деления) или на их включение в поток плутония.

Плутоний, выделенный при переработке, может быть использован в виде МОХ-топлива. Почти две трети плутония МОХ-топлива приходится на изотопы Pu-239 и Pu-241 и около трети на Pu-240, из-за чего он не может быть использован для изготовления надежных и предсказуемых ядерных зарядов (изотоп Pu-240 является загрязнителем). Такое топливо наиболее эффективно использовать в реакторах на быстрых нейтронах. Применение выделенного Pu в виде МОХ-топлива в тепловых реакторах позволяет снизить потребность в уране до 30 %. Содержание PuO_2 в МОХ составляет от 1,5 до 25-30 мас. % [3].

МОХ-топливо, состоящее из 7-11 % плутония, смешанного с обедненным ураном, эквивалентно топливу оксида урана, обогащенному примерно до 4,5 % U-235, при условии, что плутоний имеет около двух третей делящихся изотопов.

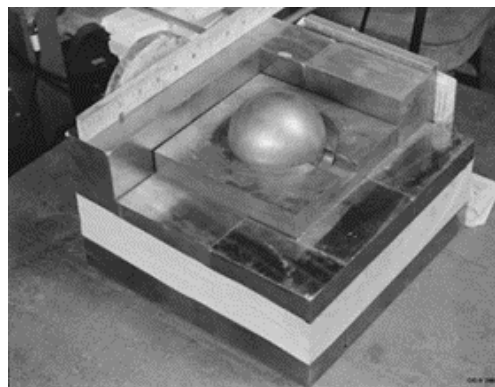
Если используется оружейный плутоний (> 90 % Pu-239), в смеси необходимо всего около 5 % плутония. Содержание плутония в коммерческом МОХ-топливе доходит до 10,8 % в зависимости от конструкции топлива и составляет в

среднем около 9,5 %. Топливо с 30 % МОХ, котором менее 10,8 % в плутония, эквивалентно 4,2 % обогащенного уранового топлива [4]. Одним из достоинств такого топлива является то, что при его производстве необратимо утилизируются излишки оружейного плутония (рисунок 3), которые в противном случае стали бы радиоактивными отходами или могли бы использоваться для создания ядерного оружия странами с нестабильными режимами. В России создание производства МОХ-топлива обусловлено также необходимостью утилизации 34 т оружейного плутония по соглашению с США [4, 5], которое 3 октября 2016 г. приостановлено «в связи с коренным изменением обстоятельств ...» [6].

В нашей стране производство МОХ-топлива для быстрого реактора БН-800 (рисунок 4) создавалось с 2011-го по 2014-й годы на Горно-химическом комбинате с привлечением ведущих институтов и предприятий «Росатома». Промышленный комплекс по производству МОХ-топлива создан на ГХК впервые в мире. Это уникальное предприятие с подземным расположением основных ядерных производств до 1995 года производило плутоний в трёх реакторах-накопителях в оборонных целях. Оборонный заказ на производство плутония был снят, началась конверсия предприятия. Проекты, которые сейчас выполняются на ГХК, с начала 60-х годов производившем оружейный плутоний и уважительно именуемого атомщиками «Гора» или «Скала», обеспечивают лидерство «Росатома» в мирных технологиях, связанных с замыканием ядерного топливного цикла. Это признаёт World Nuclear Association, которая прогнозирует мировые мощности по производству МОХ-топлива в 2017/2020 годах (т/год): Франция (MeloX) 195/195, Япония (Токай) 10/10, Япония (J-MOX Rokkasho) 0/140, Россия (Железногорский ГХК) 60/60 [5]. В 2014 г. на ГХК была выпущена промышленная партия таблеток (20 кг) МОХ-топлива, которое будет применяться в РБН. Закончилось строительство цеха по производству МОХ-топлива для БН-800 четвёртого энергоблока Белоярской АЭС и собрана ТВС с МОХ-топливом для этого реактора. 17 августа 2016 г. энергоблок № 4 вышел на режим работы мощности 100 %, а с декабря в объединённую систему «Урал» поступает энергия, выработанная на быстром реакторе. На 1 ноября 2017 года энергоблок выдал в энергосистему 5855,31 млн. кВт-ч электроэнергии. С 2020 года предполагается выпуск на Белоярской АЭС для медицинских целей изотопа кобальт - 60. Таким образом, сего дня



а



б



в



г

а – кольцо диаметром 11 см и массой 5,3 кг электролитически рафинированного оружейного плутония (чистота 99,96 %), производившегося в Лос-Аламосе для Роки-Флетс (США);
 б – сферический плутониевый заряд, легированный галлием в пластинах из карбида вольфрама;
 в – таблетки из смеси UO_2 и PuO_2 – основа ЗЯТЦ;
 г- тепловыделяющая сборка (ТВС) с МОХ-топливом

Рисунок 3 – Образы из цикла превращения оружейного плутония в энергетический



Рисунок 4 – Реактор БН-800 на Белоярской АЭС

Россия является абсолютным лидером в области быстрых реакторов, внедрившим на практике перспективные технологии замкнутого топливного цикла.

БН-800 с натриевым теплоносителем, на котором проводится окончательная отработка технологий, является прототипом более мощного коммерческого энергоблока БН-1200. Технический проект был разработан Опытным конструкторским бюро машиностроения им. И.И. Африкантова, входящим в состав холдинга «Атомэнергомаш» госкорпорации «Росатом» и представлен 3-4 апреля 2015 г. в рамках новой технологической платформы ядерной энергетики «Прорыв» [7]. Основные технические характеристики энергоблоков с реакторными установками (РУ) БН-600, БН-800 и БН-1200 приведены в таблице 1.

Технико-экономические показатели РУ БН-1200, по сравнению с уже работающими РУ БН-600 и БН-800, удалось улучшить, в частности, за счёт оптимизации промежуточного контура.

Таблица 1 – Основные технические характеристики энергоблоков с РУ БН-600, БН-800, БН-1200

Технические характеристики	БН-600	БН-800	БН-1200
Номинальная тепловая мощность, МВт	1470	2100	2800
Электрическая мощность, брутто, МВт	600	880	1220
Количество тепловыделяющих петель	3	3	4
Температура теплоносителя по первому контуру, °С (на входе/выходе ПТО)	535/368	547/354	550/470
Температура теплоносителя по второму контуру, °С (на входе/выходе ПГ)	505/318	505/309	527/355
Параметры третьего контура: температура острого пара, °С давление острого пара, МПа температура питательной воды, °С	505 14 240	490 14 210	510 17 275
КПД, брутто/нетто, %	42,5/40	41,9/38,8	43,5/40,7
Проектный коэффициент использования установленной мощности (КИУМ)	0,8	0,85	0,9
Среднее выгорание топлива, МВт-сут/кг	70	70-100	до 120
Удельная металлоёмкость реакторной установки т/МВт(тепл.)	5,6	4,1	2,4
Проектный срок службы, лет	30	40	60



АТО САОТ- автономный теплообменник системы аварийного отвода тепла;

ГЦН- главный циркуляционный насос;

СУЗ – система управления и защиты; в активной зоне – тепловыделяющие сборки

Рисунок 5 – Схема реактора БН-1200 (вертикальный разрез)

Проект позволяет использовать как МОХ-, так и нитридное топливо [7]. Таким образом, концепция дальнейшего развития российской атомной энергетики основывается на использовании оксидного и нитридного топлива. Схема реактора с коэффициентом воспроизводства 1,2 представлена на рисунке 5.

При создании аналогичного производства в США по французской технологии МОХ-топлива для тепловых реакторов за 8 лет израсходовано более 7,7 млрд. долларов и результат не был достигнут. В настоящий момент объявлено, что завод на площадке в Саванна-Ривер признан слишком дорогостоящим и его строительство не будет продолжено. Сделанные вложения, которые почти в 50 раз превышают инвестиции России, свидетельствуют о том, что Соединенные Штаты имели очень серьезные намерения освоить эту технологию, однако их усилия не завершились успехом [8]. Администрация Дональда Трампа предлагает прекратить строительство МОХ-завода в Саванна-Ривер, пишет «Aiken Standard». В проекте государственного бюджета США на 2018 финансовый год, подготовленного в президентской администрации, предлагается выделить 270 млн. долларов на нужды закрытия проекта. Кроме того, проект бюджета предусматривает выделение 9 млн. долларов на работы по утилизации оружейного плутония методом разбавления [9]. Однако Сенат США (законопроект «National Defence Authorization Act») поддержал выделение из госбюджета суммы в 340 млн. долларов на нужды МОХ-проекта в 2018 финансовом году. Окончательное решение по судьбе МОХ-топлива будет принято по итогам согласительных процедур. Также испытывают серьезные трудности проекты МОХ-топлива для тепловых реакторов, реализуемые в Японии и Великобритании. Между тем, японское правительство приняло решение полностью вывести из эксплуатации АЭС «Мондзю» – единственную в стране станцию с РБН. Причиной этого стала высокая стоимость её модернизации, в 1,44 раза превосходящая расходы по её ликвидации, которые составляют 3,2 млрд. долларов на 30 лет. На эти средства в 2022 г. планируется извлечь топливо из реактора и в 2047-м завершить его разборку. Для сравнения, общий объём инвестиций в АЭС «Мондзю» к настоящему времени составил 8,7 млрд. долларов [10]. На площадке ГХК задача решена за 2,5 года. Ключевым преимуществом производства МОХ-топлива, созданного на ГХК, является воз-

можность использовать «высокофоновые» ядерные материалы, в том числе – регенерированный уран и плутоний, полученные после переработки ОЯТ энергетических реакторов [8]. Основным достоинством РБН можно считать возможность вовлечь в топливный цикл как уран-238, так и торий-232, что значительно расширит топливную базу ядерной энергетики, избавившись от самых активных и долгоживущих изотопов в ОЯТ. Кроме того, в РБН нет высокого давления, нет риска потери теплоносителя по причине выкипания, нет риска пароциркониевой реакции, ставшей одной из причин взрывов на Фукусимской АЭС.

Методы переработки ОЯТ. Методы переработки облученного топлива можно классифицировать как водные (висмут-фосфатный, в основе которого лежит окислительно-восстановительный процесс ацетатного осаждения уранил-триацетата урана, экстракция аминами, аква-фтор-процесс и др.) и неводные (возгонка фторидов, плавка-рафинирование с селективным окислением, электролиз в солевых расплавах). Они хорошо изучены и работы по их совершенствованию продолжаются [3]. В промышленном масштабе реализована только гидрометаллургическая технология переработки ОЯТ тепловых реакторов – так называемый Пьюрекс-процесс, в основе которого лежит жидкостная экстракция с использованием экстрагента – раствора трибутилфосфата. Технология разработана и запатентована в конце 40-х годов прошлого века в США Леарнедом Аспреем и освоена на заводе в Саванна-Ривер в 1954 г. для переработки облученного природного урана в оружейных целях и сформировалась в виде сильнокислотной версии к 1961 г. на заводе в Ханфорде, ставшей основой схем всех работающих радиохимических заводов. Эта технология обеспечивала извлечение в 1-ом экстракционном цикле U, Pu, Np и Tc и отделение Np и Tc от Pu с потоком U с окончательной очисткой U и Pu от примесей с аффинажных циклов [11]. В энергетических реакторах типа PWR (реактор с водой под давлением) и BWR (кипящий водяной реактор) выгорание топлива возросло с 0,5 до 70 ГВт·сут/т топливных материалов, вследствие чего выросло содержание в нём трансурановых элементов и продуктов деления, часть которых экстрагируется ТБФ, а другие (Mo+Zr, Ba) склонны к осадкообразованию при растворении ОЯТ и упа-

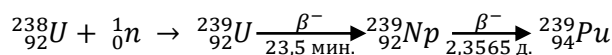
ривании высокоактивных отходов (ВАО). Тс катализирует окисление гидразина-стабилизатора U(IV), используемого вместо сульфата Fe(II). Это привело к вводу в 1-ый цикл операции кислотной реэкстракции Тс с сопряжённым полным выведением Np с U в ходе реэкстракции Pu путём восстановления U(IV) и разделением U и Np на 2-ом U-цикле. Позднее в цикл был введён блок барьерной промывки экстракта U от Pu, превратив структуру цикла из четырёхблочной в семиблочную, что не решило проблемы осадкообразования при упаривании ВАО [11]. В этой же работе приводятся схемы 1-го цикла экстракции на заводах в Ханфорде, обработки высокоактивных растворов в проекте ОДЦ, характеристики потоков кислотной переработки раствора ОЯТ ВВЭР-1000, потоков при реэкстракции Zr с Np, Pu, Тс и U по схеме РЕМИКС (от английского REMIX – Regenerated Mixture of U-, Pu-oxides).

Наиболее привлекательный вариант, позволяющий осуществить эффективный запуск замкнутого ЯТЦ для РБН, – модернизация существующей инфраструктуры РТН с использованием РЕМИКС-топлива и последующим созданием собственной инфраструктуры замкнутого ЯТЦ РБН.

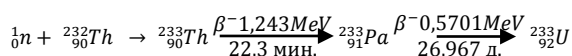
Классический подход к использованию делящихся нуклидов урана и плутония, содержащихся в ОЯТ, состоит в их выделении при переработке, повторном дообогащении регенерированного урана и использовании плутония для изготовления МОХ-топлива с обедненным ураном. Из-за сложности данная схема не реализована ни в одной стране мира. В последнее время в России прорабатывается предложение

Радиового института им. В.Г. Хлопина по использованию в реакторах ВВЭР-1000 РЕМИКС-топлива, получаемого непосредственно из неразделенной смеси урана и плутония, которые выделяются при переработке ОЯТ после подпитки природным обогащенным ураном. Эта технология подразумевает повторное использование не только плутония, содержащегося в ОЯТ, но и остаточного количества U-235. Идея ЗЯТЦ состоит в возвращении Pu-239 и U-235 в топливный цикл и сокращении потребления природного урана. Использование основной массы урана – U-238, составляющего 99,28 % природного урана (образцы урановой руды представлены на рисунке 6), возможно путём его превращения в Pu-239

с помощью реакции захвата нейтрона. Необходимые для этого условия имеют РБН, энергетический спектр которых определяет соотношение сечений реакции деления и радиационного захвата при высоком значении выхода вторичных нейтронов в расчёте на 1 деление ядра атома топлива – U-238 или Pu-239. Это приводит к избытку нейтронов, которые и обеспечивают процесс превращения U-238 в Pu-239:



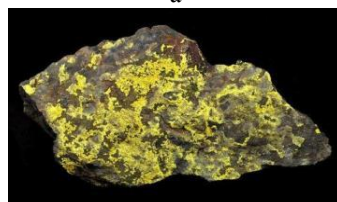
Для природного тория:



При небольшой энергии поглощение нейтрона ураном-238 имеет резонансный характер: U-238 становится U-239, который с периодом полураспада 23,54 мин. превращается в Np-239, а тот, с периодом полураспада 2,3565 дня, – в долгоживущий Pu-239. Th-232 становится U-233. В активной зоне РБН для создания высокого избытка нейтронов по своим ядерно-физическим характеристикам больше всего подходит Pu-239. Но плутоний отсутствует в природе и его необходимо извлечь из ОЯТ РТН путём переработки, решив тем самым вопрос об обращении с ОЯТ и создав замкнутый топливный цикл атомной энергетики. Это даст, как и вовлечение в атомную энергетику природного тория, значительную экономию минеральных ресурсов, содержащих уран. Предполагается, что технология производства



а



б

а – уранинит (от UO₂ до U₃O₈ + ThO₂, CeO₂) – наиболее распространённый минерал урана (Канада),
б – туюмунит (Ca[UO₂][V₂O₈]·8H₂O) – минерал месторождения Тюя-Муюн (Киргизия)

Рисунок 6 – Образцы урановой руды

РЕМИКС-топлива станет элементом технологии переработки ОЯТ реакторов ВВЭР-1000, разработанной в Радиовом институте им. В.Г. Хлопина и реализуемой на ОДЦ Железнодорожного ГКХ. В основе технологии лежит упрощенный PUREX-процесс, преимущества которого – исключение сброса жидких радиоактивных отходов в окружающую среду и создание полного замкнутого кислото- и водооборота. Схема основных этапов подготовки и радиохимической переработки ОЯТ АЭС методом жидкостной экстракции хорошо известна [3, 11].

Целевые продукты ОДЦ, заложенные в проекте: регенерат урана в виде закиси-оксида и так называемый плутониевый продукт – порошок смешанных оксидов на основе непутия, регенерата урана и плутония. Плутониевый продукт может быть использован, как и предполагается в проекте ОДЦ, при фабрикации МОХ-топлива для РБН, однако он не подходит для производства РЕМИКС-топлива из-за наличия Np-237 . Таким образом, в проекте ОДЦ нет продукта для производства РЕМИКС-топлива. Адаптация технологии ОДЦ для получения РЕМИКС-топлива заключается в оптимизации экстракционного цикла с целью исключения

непутия из состава плутониевого раствора, используемого при получении порошков смешанных оксидов [12].

К плюсам РЕМИКС-топлива можно отнести тот факт, что нейтронно-физические характеристики активной зоны реактора ВВЭР-1000 при полной загрузке РЕМИКС- и традиционным урановым топливом практически не отличаются. Поскольку эти характеристики влияют на безопасность работы реактора, можно говорить о принципиальной возможности полной загрузки реактора ВВЭР-1000 РЕМИКС-топливом. Что же касается МОХ-топлива, для него загрузка активной зоны ограничена, как правило, 30 %.

Кроме того, использование РЕМИКС-топлива экономит природный уран, предположительно на 20-25 %. К этому следует добавить, что работа разделения, необходимая для обогащения урановой подпитки, практически не изменяется.

Наконец, важная особенность РЕМИКС-топлива заключается в возможности рециклирования плутония без его существенной деградации. После переработки и соответствующего дообогащения РЕМИКС-топливо может многократно возвращаться в реактор, что



Рисунок 7 – Схема многократного рециклирования регенерированного урана и плутония в виде РЕМИКС-топлива в реакторах ВВЭР-1000

приводит к существенному сокращению темпов накопления ОЯТ. МОХ-топливо за период работы деградирует настолько, что не может быть повторно использовано в реакторах на тепловых нейтронах. Схема многократного рециклирования регенерированных урана и плутония в виде РЕМИКС-топлива в реакторах ВВЭР-1000 представлена на рисунке 7. Проблемы, связанные с использованием РЕМИКС-топлива, в частности, затраты на обращение с ним, заключаются в превышении соответствующих затрат для традиционного уранового топлива. Это обстоятельство связано с необходимостью обеспечения радиационной безопасности в связи с появлением Pu и U-235 в свежем топливе [12].

Одной из трудностей при запуске атомной энергетики с использованием РБН является создание собственной инфраструктуры, начиная с переработки ОЯТ и заканчивая изготовлением МОХ-топлива. Поскольку на начальном этапе количество РБН будет невелико, то загрузка обслуживающих их предприятий будет мала, и, следовательно, экономически не выгодна. Пусковой этап может продлиться достаточно долго, и все это время необходимо будет вкладывать дополнительные средства. Эта проблема может быть решена за счет использования на начальном этапе инфраструктуры РТН, полагают специалисты Радиевого института им. В.Г. Хлопина [13]. К достоинствам РБН можно отнести большую степень выгорания топлива, а к недостаткам – дороговизну из-за невозможности использовать воду в качестве теплоносителя (обычно используется натрий, т.к. вода является замедлителем), большую стоимость высокообогащенного топлива, высокие капитальные затраты и конструкционные сложности. Удельные капиталовложения в АЭС с РБН могут в 1,5-2 раза превышать удельные капиталовложения в АЭС с РТН. Сдерживающее влияние на развитие энергетики с РБН оказывает также благополучное пока положение в

мире с ресурсами относительно дешёвого урана – не более 150 долл/кг [14]. По оценкам, экономические показатели БН-1200 будут находиться на сопоставимом уровне с ВВЭР аналогичной мощности. В перспективе себестоимость электроэнергии БН-1200 должна стать ниже, чем ВВЭР, в связи с истощением минерально-сырьевых ресурсов Земли и ожидаемым ростом цен на природный уран. В долгосрочном плане цена природного урана определяется спросом и предложением, т.е. соотношением мировых потребностей и производства урана. В следующем

десятилетии ожидаемый дефицит природного урана может быть компенсирован привлечением вторичных ресурсов, в том числе складских запасов. К 2035 году из них будет использовано только на ядерную энергетику России и стран с российскими реакторами 140 тыс.т, а с учётом экспорта – 360 тыс.т, что явно превышает реальные возможности. Из этого следует необходимость бережного отношения к вторичным ресурсам, сохранить их на уровне, способном снизить риск необеспеченности ядерной энергетики природным ураном, увеличить производство внутри страны и, по возможности, сохранить поставки из Казахстана. При этом надо учитывать, что по запасам урана в недрах Россия занимает третье место в мире (после Австралии и Казахстана), но по качеству запасов уступает всем ведущим производителям [15]. АО «НАК «Казатомпром» с 2009 года является мировым лидером по добыче урана, обеспечивая на сегодня продукцией (рисунок 8) около 20 % общемировых потребностей рынка.



Рисунок 8 – Жёлтый кек (U_3O_8) – концентрат природного урана

В добычную группу Холдинга входят 16 предприятий с полным и частичным правом собственности, которые занимаются разработкой 20 рудников подземным скважинным выщелачиванием. Урановые месторождения расположены на территории Южно-Казахстанской, Кызылординской и Акмолинской областей.

Наиболее экономный способ, с точки зрения использования плутония и минимизации объемов переработки ОЯТ РТН, представляет собой вариант пуска РБН с загрузкой 100 % активной зоны топливом из обогащенного урана с последующим переходом на МОХ-топливо. При этом ОЯТ РБН из обогащенного урана перерабатывается совместно с ОЯТ ВВЭР-1000, а ОЯТ МОХ-топлива – вместе с ОЯТ РБМК. Выделенный плутоний поступает на изготовление свежего МОХ-топлива.

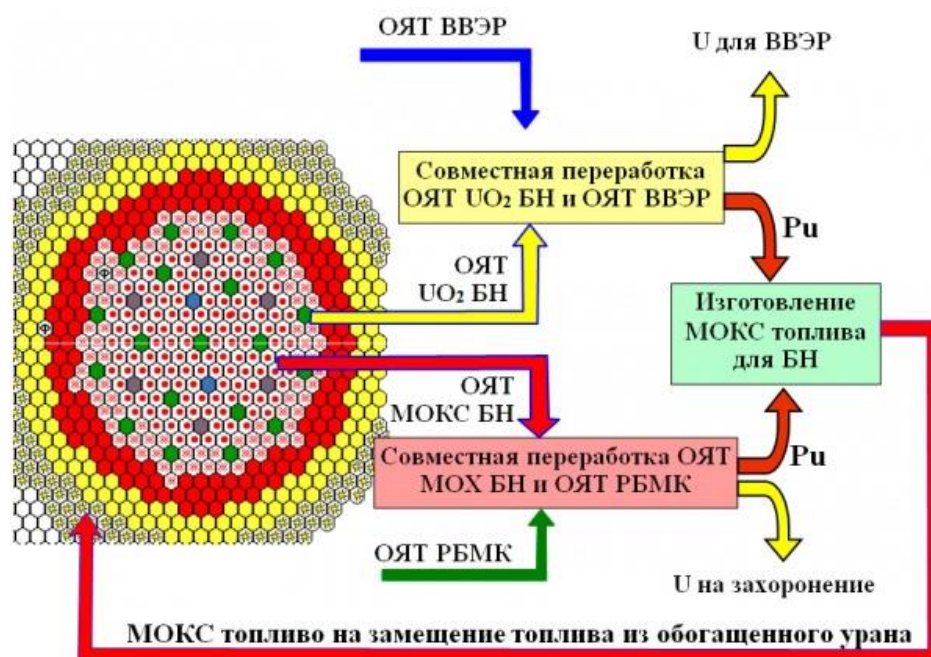


Рисунок 9 – Схема постепенного замещения топлива из обогащенного урана в активной зоне РБН МОХ-топливом, получаемом при совместной переработке ОЯТ РБН и ОЯТ РТН [13]

Уран, полученный при переработке ОЯТ РБН и ВВЭР, идет на получение топлива для ВВЭР, выделенный при переработке ОЯТ РБН и РБМК – на захоронение, так как содержание U-235 в этом продукте будет существенно ниже, чем в природном уране (рисунок 9). Такую переработку возможно провести с использованием гидрометаллургических методов. Гидрометаллургическая схема переработки ОЯТ начинается с измельчения ТВЭЛов и растворения их в азотной кислоте. Выбор метода перевода облученного топлива в раствор зависит от химической формы топливной композиции, способа предварительной подготовки топлива, необходимости обеспечения определённой производительности. Металлический уран растворяют в 8-11 М HNO_3 , а оксиды урана – в 6-8 М HNO_3 при 80-100 °С с образованием уранил-нитрата $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$. В качестве экстрагента используется ТБФ в смеси с органическим разбавителем для снижения вязкости. Плотность смеси ТБФ+разбавитель равна 0,8-0,9 г/см³, водного раствора ОЯТ – 1,1-1,2 г/см³.

Работа [16] посвящена снижению температуры процесса. Растворение оксидов урана в гетерогенной системе $\text{NO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ проходит с получением растворов нитрата уранила. При растворении UO_3 в гетерогенной системе $\text{NO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ происходит образование плотной корки, мешающей доступу растворяющего реагента к образ-

цу. Дальнейшие исследования по растворению проводили на образцах UO_2 и U_3O_8 . По диаграммам фазового состояния системы $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3 - \text{H}_2\text{O}$ определены области устойчивости при температурах 55 и 80 °С.

Содержание азотной кислоты в однофазной области изученной системы не превышает 18 % (3,2 моль/дм³). Максимальная концентрация урана при 55 °С составляет 830 г/дм³, при 80 °С – 1040 г/дм³. Максимальная концентрация азотной кислоты в растворе в диапазоне температур 25-80 °С уменьшается с 5,6 до 3,2 моль/дм³.

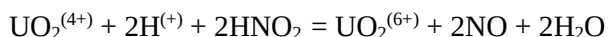
Растворение UO_2 при 25 °С проходит только в кинетическом режиме, при 55 °С на начальном этапе процесс растворения проходит в кинетическом режиме, а после накопления азотной кислоты в растворе в диффузионно-кинетическом, при 80 °С проходит только в диффузионно-кинетическом режиме. Для кинетического режима определена энергия активации (E_A) – 38,7 кДж/моль. Растворение U_3O_8 при 25 и 55 °С на начальном этапе проходит в кинетическом режиме, а после накопления азотной кислоты в растворе в диффузионно-кинетическом, при 80 °С только в диффузионно-кинетическом режиме (оценка кажущейся E_A – 22 ± 3 кДж/моль). Растворение неволоксидированного ОЯТ ВВЭР-1000 в гетерогенной системе $\text{NO}_2 -$

H₂O при температуре 55 °С проходит без образования молибден- и цирконий содержащих осадков.

Определены условия растворения волоксидированного ОЯТ ВВЭР-1000 без образования молибден- и цирконий содержащих осадков. Концентрация азотной кислоты в таком растворе должна составлять не менее 3,5 моль/дм³.

Автором [16] разработан способ растворения ОЯТ в гетерогенной системе NO₂-H₂O при температуре 55 °С и проверен на модельных образцах и реальном ОЯТ ВВЭР-1000. Показана тождественность состава осадков, получаемых при растворении имитаторов и реального ОЯТ. Предложена технологическая схема процесса растворения ОЯТ ВВЭР-1000 с использованием NO₂.

Скорость растворения ОЯТ в азотной кислоте повышается с увеличением концентрации кислоты. Скорость также зависит от температуры, условий облучения материала в реакторе. Изучение механизма растворения ОЯТ в HNO₃ при изменении температуры от 30 до 95 °С и концентрации кислоты от 0,3 до 10 моль/дм³ проведено в Японии. Было показано, что процесс растворения определяется реакцией межфазного переноса электрона между твёрдой фазой UO₂ и протоном в растворе кислоты [17], и реакция растворения может быть представлена уравнением:

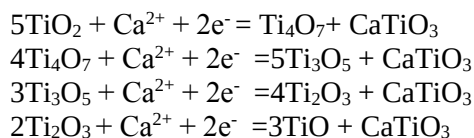


Этими же специалистами в Японском институте атомной энергии изучался процесс растворения U₃O₈ с целью выбора оптимальных параметров растворения топлива после волоксидации. Установлено, что скорость растворения U₃O₈ растёт с увеличением температуры процесса от 30 до 95 °С и с повышением кислотности раствора. На скорость растворения влияет также интенсивность перемешивания.

Учёные из уральского Института высокотемпературной электрохимии (ИВТЭ) предложили новый эффективный способ переработки ядерного топлива с помощью расплавленных солей металлов, что позволит повторно использовать облучённое топливо. Работы велись со смесью хлоридов лития, калия и цезия. Исследования, которые ведутся с 2014 г., показывают, что солевые расплавы могут успешно применяться при переработке высокоактивного малоудержанного топлива энергетических реакторов на быстрых нейтронах. В ядерной энергетике есть три базовых принципа: естественная без-

опасность атомных электростанций, нераспространение ядерных материалов и ЗЯТЦ. Пирохимический метод, над которым идет работа, предполагает электрохимическое выделение основных компонентов топлива для повторного использования и трансмутацию наиболее опасных продуктов деления. Это позволяет уменьшить количество ядерных отходов и повторно использовать уран и плутоний. В настоящее время при переработке ОЯТ широко применяют гидрометаллургический метод, однако при этом нельзя использовать высокоактивное ядерное топливо из-за протекания реакции радиолитического разложения химических соединений под действием ионизирующих излучений), и, кроме того, это приводит к большому количеству жидких радиоактивных отходов [18]. Основными достоинствами пирометаллургических методов являются меньшее количество жидких радиоактивных отходов и устойчивость рабочих сред к воздействию радиации. Главный недостаток – сравнительно высокие рабочие температуры, которые определяются в том числе и температурами плавления используемых солей.

В последнее время поступает информация, что в лабораториях университета в Ноттингеме ведутся работы по переработке ОЯТ электрохимическими методами с применением FFC Cambridge-процесса [19]. Разработанная в конце 1990-х для получения титана технология позволила проводить катодное твердофазное восстановление оксидов электрохимически в расплаве CaCl₂. О механизме процесса подробно говорилось в русскоязычных работах [20, 21] на примере восстановления диоксида титана в хлоридных расплавах кальция, описанном в англоязычных источниках [22-30]. Лабораторные эксперименты по катодному восстановлению TiO₂ проводили в расплаве CaCl₂ при 900 °С и напряжении на электродах 2,5 - 2,9 В. Катоды извлекали из электролита через различные промежутки времени от 0,5 до 120 ч и исследовали методами: рентгеноструктурным, сканирующей электронной микроскопии и энергодисперсионной рентгенофлуоресценции. Показано, что восстановление TiO₂ является многоступенчатым и происходит по стадиям:

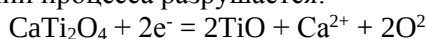


При этом ион Ca²⁺ не восстанавливается, а переходит в расплав CaCl₂ в виде перовскита CaTi-

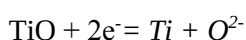
iO_3 , оставаясь в двухвалентном состоянии. На следующей стадии при взаимодействии перовскита с TiO образуется фаза CaTi_2O_4 по реакции:



Эта фаза обнаруживается в катодном осадке рентгенографически и при дальнейшем протекании процесса разрушается:



На последней стадии электролиза (по прошествии ~100 ч) на катоде из TiO образуется металлический титан:



В применении к ОЯТ это выглядит как изготовление из отработавших оксидов катодных брикетов и их восстановление до металлов, которые легче разделить по сравнению с применяемыми сегодня пирометаллургическими методами отделения U от Pu и Ce . Исследования проводили в расплавах CaCl_2 при 810 °C и $\text{LiCl} - \text{CaCl}_2$ при 600 °C [19].

Последний состав электролита (60, 62 и 65 мол. % LiCl) использовали для понижения

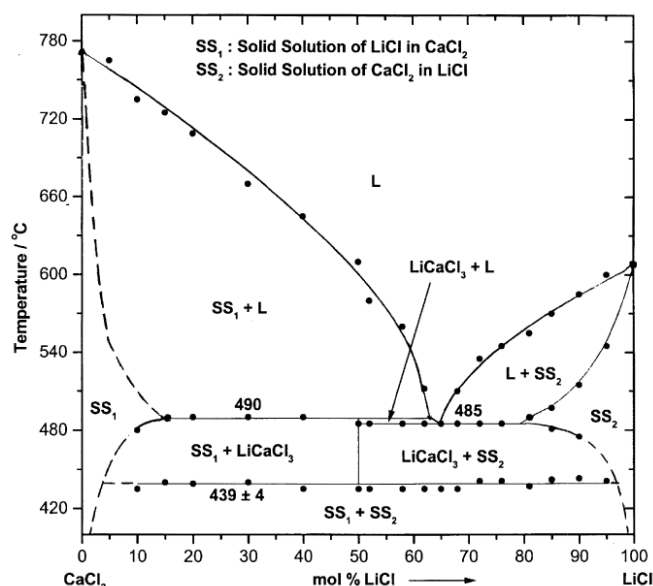
температуры расплава из-за относительно низкой (около 640 °C) температуры плавления Pu . На рисунке 10 представлена фазовая диаграмма системы $\text{LiCl} - \text{CaCl}_2$ [31].

Исходными материалами для катодов служили смешанные порошки оксидов ОЯТ, которые после холодного прессования или шликерного литья спекали, получая электроды с различной степенью пористости. В таблице 2 представлены исходные оксиды для получения металлов из ОЯТ [19].

Таблица 2 – Исходные материалы для катодов

Исходный оксид	Поставщик	Чистота, %	Размер частиц, мкм	Плотность, г/см ³
NiO	Sigma-Aldrich	99,99	< 2	6,67
CeO_2	Sigma-Aldrich	99,9	<5	7,65
ZrO_2	Sigma-Aldrich	99		5,68
TiO_2^*	Sigma-Aldrich	99,8	<0,3	3,78
Cr_2O_3	Acros organics	99	<5	5,22
PuO_2	Sellafield Ltd.	>99	10	11,50
5 %MOX	Sellafield Ltd.	>99	~10	11,00

*Оксид в форме анатаза



SS_1 – твёрдый раствор LiCl в CaCl_2 ; SS_2 – твёрдый раствор CaCl_2 в LiCl

Рисунок 10 – Фазовая диаграмма системы $\text{LiCl} - \text{CaCl}_2$

Выводы. Рассмотренные варианты переработки ОЯТ требуют дальнейшего обсуждения и более детального экономического расчета. Однако очевидно, что существующий в России инновационный технологический задел, связанный с топливным циклом, предоставляет все условия для развития и прогресса в этой области. Развитие атомной энергетики за счет создания АЭС с реакторами на быстрых нейтронах при загрузке их МОХ-топливом во многом решает проблему замыкания ЯТЦ также и АЭС с реакторами на тепловых нейтронах. Генерируемый и уже накопленный на складах энергетический плутоний используется в стартовых загрузках быстрых реакторов, которые в ближайшие годы начнут конкурировать с существующими и перспективными тепловыми. Поскольку экономически (по себестоимости электроэнергии) быстрые реакторы вполне сопоставимы с реакторами ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200, затраты на изготовление МОХ-топлива и переработку полученного ОЯТ будут играть существенную роль в развитии энергетики с реакторами на быстрых нейтронах. Однако существует заметное сопротивление реализации проектов атомной энергетики, в том числе с использованием РБН. Кроме трудностей технологических приходится преодолевать сопротивление по причинам политико-экономическим. Дело в том, что в случае перехода ядерной энергетики на РБН резко обрушатся экономические (а значит и политические) позиции одной из самых влиятельных мировых отраслей – углеводородной энергетики. И потому против РБН много лет идет очень активная борьба. Кроме «королей тепловой энергетики» и «экологистов» к ней подключаются противники ядерных вооружений, которые считают, что РБН надо вообще запретить, поскольку они могут гораздо успешнее, чем РТН, нарабатывать плутоний – материал для самых эффективных ядерных боезарядов, а также, что РБН принципиально ненадежны и могут устроить на планете «ядерный апокалипсис». Тем не менее, в настоящее время специалистам понятно, что без реакторов на быстрых нейтронах, способных работать на природных уране и тории с добавлением рециклированного плутония, у атомной энергетики большого будущего нет [32]. В сложившихся в последние годы условиях России необходимо удерживать передовые позиции в высокотехнологичной области производства электроэнергии и экологической безопасности.

ЛИТЕРАТУРА

- 1 Хаперская А.В. Проблемы обращения с ОЯТ в России и перспективы их решения. // Безопасность ядерных технологий и окружающей среды. – 2012. – № 3. – С. 50–56.
- 2 Государственная корпорация по атомной энергии «Росатом». Программа создания инфраструктуры и обращения с отработавшим ядерным топливом на 2011-2020 годы и на период до 2030 года. // Безопасность ядерных технологий и окружающей среды. – 2012. – № 2. – С. 43–55.
- 3 Жерин И.И., Амелина Г.Н. Химия тория, урана, плутония: Учебное пособие. – Томск: ТПУ, 2010. – С. 147.
- 4 Глазов А.Г., Горбачёв М.К. Создание промышленного производства МОКС-топлива. // Безопасность ядерных технологий и окружающей среды. – 2012. – № 1. – С. 20–21.
- 5 Mixed Oxide (MOX) Fuel. World Nuclear Association. [Электрон. ресурс]. – 2017. – URL: <http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/fuel-recycling/mixed-oxide-fuel-mox.aspx> (дата обращения: 03.09.2017).
- 6 Указ № 511 Президента Российской Федерации // Собрание законодательства РФ. – 10.10.2016. – № 41. – С. 5803.
- 7 Шепелев С.Ф. Технический проект РУ БН-1200. – 2015. – URL: <http://www.innov-rosatom.ru/files/articles/b4589ee208b5b20af9c07c28921d4891.pdf> (дата обращения 05.02.2018).
- 8 Производство МОКС-топлива. ФГУП «ГХК». [Электрон. ресурс]. – 2014. – URL: <http://www.sibghk.ru/activity/moks-fuel-production-creating.html> (дата обращения: 03.09.2017).
- 9 Трамп закрывает МОХ-проект. Atom Info. Ru. [Электрон. ресурс]. – 2017. – URL: <http://www.atominfo.ru/newsp/w0890.htm> (дата обращения: 03.09.2017).
- 10 Monju prototype reactor, once a key cog in Japan's nuclear energy policy, to be scrapped. // The Japan Times. Newspaper. – 21. 12. 2016.
- 11 Голецкий Н.Д., Зильберман Б.Я., Фёдоров Ю.С., Пузиков Е.А. Варианты разделения технеция и неоптуния в 1-м цикле экстракционной переработки ОЯТ АЭС с высоким выгоранием. // 5 Междунар. конф-школа по хим. технол.: матер конф. (Сателлитная конференция 20 Менделеевского съезда по общей и прикладной химии, Екатеринбург), Волгоград, Россия, 2016. – Т.2. – С. 454–457.
- 12 Рыжов И.В. От слов к делу. Интервью. // Атомный эксперт. – 2015. – № 9. – С. 22–25.
- 13 Масленников И.А., Фёдоров Ю.С., Шадрин А.Ю., Зильберман Б.Я., Бабин В.А., Бибичев Б.А. Переработка облученного топлива: новые требования и инновационные подходы. // Безопасность окружающей среды. – 2010. – № 1. – С. 90–94.
- 14 Бакихин А.В., Барковская О.Э. О переработке отработавшего ядерного топлива. // Деп. научные работы ВИНТИ РАН. № 123-B2017 от 09.10.2017. Аннотир. Библ. указатель. – 2017. – № 6. – С. 12.
- 15 Тарханов А.В. Ядерная энергетика: минимизировать риски // Редкие земли. – 2017. – № 1 (8). – С. 160–167.
- 16 Рябкова Н.В. Растворение оксидов урана и отработавшего ядерного топлива в гетерогенной системе NO₂–H₂O: дис. ... канд. хим. наук: 05.17.02. / Радиевый институт им. В.Г. Хлопина. – Санкт-Петербург: 2016. – С. 101.
- 17 Akihiko, I. Mechanism of the oxidative dissolution of UO₂ in HNO₃ solution // Journal of Nuclear Materials. – 1986. – V. 138. – № 1. – P. 152–154.
- 18 Пресс-служба Уральского федерального университета: Уральские учёные предложили новый способ переработки ядерного топлива. Сообщение 29.09.2016 на 20 Мен-

делеевском съезде по общей и прикладной химии. [Электрон. ресурс] – 2016 – URL: <http://www.tass.ru/ural-news/3663550>. (дата обращения 03.09.2017)

19 Stevenson, Anthony John. Development of a Novel Electrochemical Pyroprocessing Methodology for Spent Nuclear Fuels // Proceedings of University of Nottingham. – 2016. – XXX – P. 338.

20 Бакихин А.В. Перспективы производства дешёвого титана методом электролиза его диоксида в расплавленных солях // Электрометаллургия. – 2014. – № 10. – С. 14–18.

21 Бакихин А.В., Симонов М.И. Получение титана, сплавов и композиционных материалов методом электролиза оксидов в расплаве хлорида кальция: FFC Cambridge process. Обзор // Комплексное использование минерального сырья. – 2017. – № 4. – С. 12–20.

22 Pat. 9964638A1 WO. Removal of oxygen from metal oxides and solid solutions by electrolysis in a fused salt. / Fray D.J., Farthing T.W., Chen G.Z. [Электронный ресурс]. – 1999. – URL: [file:///C:/Users/1/Downloads/WO9964638A1FFC1999%20\(1\).pdf](file:///C:/Users/1/Downloads/WO9964638A1FFC1999%20(1).pdf) (дата обращения 19.06.2017).

23 Schwandt C., Dougty G.R., Fray D.J. The FFC-Cambridge Process for Titanium Metal Winning // J. Key Engineering Materials. – 2010. – V. 436. – P. 13–25.

24 Alexander D.T.L., Schwandt C., Fray D.J. Microstructural kinetics of phase transformations during electrochemical reduction of titanium oxide in molten calcium chloride // Acta Materialia. – 2006 – V. 54. – P. 2933–2944.

25 Schwandt C., Fray D.J. Determination of the kinetic pathway in the electrochemical reduction of titanium dioxide in molten calcium chloride // Electrochimica Acta. – 2005. – V. 51. – P. 66–76.

26 Schwandt C., Alexander D.T.L., Fray D.J. The electro-deoxidation of porous titanium dioxide precursors in molten calcium chloride under cathodic potential control // Electrochimica Acta. – 2009. – V. 54. – P. 3819–3829.

27 Yuan Chang-long, Zhang Ting-an, Dou Zhi-he. Investigation of Anode and Electrode Processes of Solid State in Situ Electrochemical Reduction from TiO₂ to Ti // Journal of Northeastern University. Natural Science. – 2012. – V. 33, № 9. – P. 1307–1310.

28 Oosthuizen S.J. In search of low cost titanium: FFC Cambridge process // Journal of the Southern African Institute of Mining and Metallurgy. – 2011. – V. 111, № 3. – P. 199–202.

29 Benson L.L., Mellor I., Jackson M. Direct reduction of synthetic rutile using the FFC process to produce low-cost novel titanium alloys // Journal of Materials Science. – 2016. – V. 51. – P. 4250–4261.

30 Chen G. Z., Gordo E., Fray D. J. Direct electrolytic preparation of chromium powder // Metall. Mater. Trans. – 2004. – V. B 35. – P. 223–233.

31 Mahendran K. H., Nagaraj S., Sridharan R., Gnasekaran, T. Differential scanning calorimetric studies on the phase diagram of the binary LiCl–CaCl₂ system // Journal Alloys Compd. – 2001. – V. 325. – P. 78–83.

32 Васильев Б.А. Без реакторов на быстрых нейтронах у атомной энергетики большого будущего нет // Портал «Центр энергетической экспертизы». [Электронный ресурс]. – 2017. – URL: <http://www.energy-experts.ru/articles21804.html> (дата обращения 03.06.2017).

REFERENCES

1 Khaperskaya A.V. *Problemy obrashcheniya s OYAT v Rossii i perspektivnykh resheniya* (Problems with spent fuel management in Russia and their solution prospective). Be-

zopasnost' yadernykh tekhnologiy i okruzhayushchej sredy = Nuclear and Environmental Safety. 2012. 3. 50–56. (in Russ.)

2 Gos. Korpor. po atom. energii "Rosatom" (State corporation on atomic energy "Russian atom") *Programma sozdaniya infrastruktury i obrashcheniya s OYAT na 2011–2020 godovuyu period do 2030 goda* (Program for Spent Fuel Management and the Creation of Associated Infrastructure for the years 2011–2020 and until 2030). *Bezopasnost' yadernykh tekhnologiy i okruzhayushchej sredy = Nuclear and Environmental Safety*. 2012. 2. 43–55. (in Russ.)

3 Zherin I.I., Amelina G.N. *Khimiya toriya, urana i plutoniya* (Chemistry of thorium, uranium and plutonium): *Uchebnoe posobie* (Tutorial). Tomsk: TPU. 2010. 147. (in Russ.)

4 Glazov A.G., Gorbachev M.K. *Sozdanie promyshlennogo proizvodstva MOKS-topliva* (Creation of Industrial-Scale MOX Fuel Fabrication). *Bezopasnost' yadernykh tekhnologiy i okruzhayushchej sredy = Nuclear and Environmental Safety*. 2012. 1. 20–21. (in Russ.)

5 Mixed Oxide (MOX) Fuel. World Nuclear Association. Updated June 2017. [Electron resource]. 2017. URL: <http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/fuel-recycling/mixed-oxide-fuel-mox.aspx> (date of access: 03.09.2017). (in Eng.)

6 Ukase N 511 of Russian Federation President. *Sobranie zakonodatel'stv RF* (Collection of legislation of Russian Federation). 10.10.2016. 41. 5803. (in Russ.)

7 Shepelev S.F. *Tekhnicheskij projekt RU BN-1200* (Technical project RP FN-1200). 2015. URL: <http://www.innovrosatom.ru/files/articles/b4589ee208b5b20af9c07c28921d4891.pdf> (date of access: 05.02.2018). (in Russ.)

8 *Proizvodstvo MOKS-topliva* (MOX Fuel Fabrication). FGUP «GKhK». [Electron resource]. 2014. URL: <http://www.sibghk.ru/activity/moks-fuel-production-creating.html> (date of access: 03.09.2017). (in Russ.)

9 *Tramp zakryvayet MOKS-proekt* (Tramp intends to close MOX-project). AtomInfo.Ru. [Electron resource]. 2017. URL: <http://www.atominfo.ru/newsp/w0890.htm> (date of access: 03.09.2017). (in Russ.)

10 Monju prototype reactor, once a key cog in Japan's nuclear energy policy, to be scrapped. *The Japan Times Newspaper*. 21.12.2016. (in Eng.)

11 Goletskij N.D., Zilberman B.Ya., Fiodorov Yu.S., Puzikov E.A. *Varianty razdeleniya tekhnetsiya i neptuniya v 1-m tsikle ehkstraktsionnoj pererabotki OYAT AEHS s vysokim vygo-raniem* (Options for the separation of technetium and neptunium in the 1st extraction cycle of processing spent nuclear fuel NPP with high burnout). 5 Mezhdunar. konf. pokhimich. Tekhnol. (5th Internation. conf. on chem. technol. (Satellite conf. of 20 Mendeleev meeting on general and applied chem., Ekaterinburg). Volgograd, Russia, May, 16–20, 2016. 454–457. (in Russ.)

12 Ryzhov I.V. *Otslov k delu. Interv'yu* (From words to deeds. Interview). *Atomnyj ehkspert = Atomic expert*. 2015. 9. 22–25. (in Russ.)

13 Maslennikov I.A., Fiodorov Yu.S., Shadrin A.Yu., Zilberman B.Ya., Babin V.A., Bibichev B.A. *Pererabotka oblu-chennogo yadernogo topliva: novyye rebovaniya i innovatsionnye podkhody* (Processing of spent nuclear fuel: new requirements and innovative approaches). *Bezopasnost' okruzhayushchej sredy = Environmental safety*. 2010. 1. 90–94. (in Russ.)

14 Balikhin A.V., Barkovskaya O.Eh. *O pererabotke otrabotavshego yadernogo topliva* (About recycling of spent nuclear fuel). *Deponir. Nauchnye raboty VINITI RAN*. № 123-B2017. (Depositing in VINITI of Russian Academy of Sciences sci. works. № 123-B2017 from 09.10.2017). *Annotirovannyj*

bibliograficheskij ukazatel' = Annotated bibliography. **2017.** 6. 12. (in Russ.).

15 Tarkhanov A.V. *Yadernaya ehnergetika: minimizirovat' riski* (Nuclear energy: to minimize the risks). *Redkie zemli = Rare earths.* **2017.** 1 (8). 160–167. (in Russ.).

16 Ryabkova N.V. *Rastvorenie oksidov urana i otrabotavshego yadernogo topliva v geterogennoj sisteme NO₂–H₂O* (Dissolution of uranium oxides and spent nuclear fuel in heterogeneous system NO₂–H₂O): *diss ... cand. khim. nauk* (thesis for chem. sci. cand.): 05.17.02. / V.G. Khlopin Radium Institute: Sankt-Petersburg. **2016.** 101. (in Russ.).

17 Akihiko, I. Mechanism of the oxidative dissolution of UO₂ in HNO₃ solution. *Journal of Nuclear Materials.* **1986.** 138. 1. 152–154. (in Eng.).

18 *Pres sluzhba Uralskogo Federalnogo Universiteta: Uralskiye uchionye predlozili novyj sposob pererabotki yadernogo topliva* (The Press service of the Ural Federal University: the Ural scientists have proposed a new method of processing nuclear fuel). *Soobshchenije 29.09.2016 na 20 Mendeleevskom s"ezde po obshchej i prikladnoj khimii.* (Report from 29.09.2016 at the 20th Mendeleev Congress on General and Applied Chemistry) [Electron resource]. **2016.** URL: <http://www.tass.ru/ural-news/3663550> (date of access: 03.09.2017). (in Russ.).

19 Stevenson, Anthony John. Development of a Novel Electrochemical Pyroprocessing Methodology for Spent Nuclear Fuels. *Proceedings of University of Nottingham.* **2016.** XXX. 338. (in Eng.).

20 Balikhin A.V. *Perspektivy proizvodstva deshevoogo titana metodom ehlektroliza ego dioksida v rasplavennykh solyakh.* (Prospects of cheap titanium production by electrolysis of dioxide in molten salts). *Ehlektrometallurgiya = Electrometallurgy.* **2014.** 10. 14–18. (in Russ.).

21 Balikhin A.V., Simonov M.I. *Poluchenie titana, splavov i kompozitsionnykh materialov metodom ehlektroliza oksidov v rasplave khlorida kal'tsiya: FFC Cambridge process.* *Obzor* (Production of titanium, alloys and composite materials by electrolysis of oxides in melt calcium chloride: FFC Cambridge process. Review). *Kompleksnoe ispol'zovanie mineral'nykh resursov* (Complex use of mineral resources). **2017.** 4. 12–20. (in Russ.). Patent 9964638A1 WO. Removal of oxygen from metal oxides and solid solutions by electrolysis in a fused salt / Fray D.J., Farthing T.W., Chen G.Z. [Electron resource]. **1999.**

22 URL: [file:///C:/Users/1/Downloads/WO9964638A1FFC-1999 % 20\(1\). pdf](file:///C:/Users/1/Downloads/WO9964638A1FFC-1999%20(1).pdf) (date of access: 19.06.2017). (in Eng.).

23 Schwandt C., Dougty G.R., Fray D.J. The FFC-Cambridge Process for Titanium Metal Winning. *Journal Key Engineering Materials.* **2010.** 436. 13–25. (in Eng.).

24 Alexander D.T.L., Schwandt C., Fray D.J. Micro structural kinetics of phase transformations during electrochemical reduction of titanium oxide in molten calcium chloride. *Acta Material.* **2006.** 54. 2933–2944. (in Eng.).

25 Schwandt C., Fray D.J. Determination of the kinetic pathway in the electrochemical reduction of titanium dioxide in molten calcium chloride. *Electrochimica Acta.* **2005.** 51. 66–76. (in Eng.).

26 Schwandt C., Alexander D.T.L., Fray D.J. The electro-deoxidation of porous titanium dioxide precursors in molten calcium chloride under cathodic potential control. *Electrochimica Acta.* **2009.** 54. 3819–3829. (in Eng.).

27 Yuan Chang-long, Zhang Ting-an, Dou Zhi-he. Investigation of Anode and Electrode Processes of Solid State in Situ Electrochemical Reduction from TiO₂ to Ti. *Journal of Northeastern University. Natural Science.* **2012.** 33. 9. 1307–1310. (in Eng.).

28 Oosthuizen S.J. In search of low cost titanium: FFC Cambridge process. *Journal of the Southern African Institute of Mining and Metallurgy.* **2011.** 111. 3. 199–202. (in Eng.).

29 Benson L.L., Mellor I., Jackson M. Direct reduction of synthetic rutile using the FFC process to produce low-cost novel titanium alloys. *Journal of Materials Science.* **2016.** 51. 4250–4261. (in Eng.).

30 Chen G. Z., Gordo E., Fray D. J. Direct electrolytic preparation of chromium powder. *Metall. Mater. Trans.* **2004.** B35. 223–233. (in Eng.).

31 Mahendran K. H., Nagaraj S., Sridharan R., Gnanaesekaran, T. Differential scanning calorimetric studies on the phase diagram of the binary LiCl–CaCl₂ system. *Journal Alloys Compd.* **2001.** 325. 78–83. (in Eng.).

32 Vasil'ev B.A. *Bez reaktorov na bystrykh nejtronakh u atomnoj ehnergetiki bol'shogo budushchego net* (Without fast-neutron reactors the nuclear energetics has no future). *Portal «Tsentr ehnergeticheskoy ehkspertizy»* (Website The center for energy expertise) [Electron resource]. **2017.** URL: <http://www.energy-experts.ru/articles21804.html> (date of access: 03.06.2017). (in Russ.).

ТУЙІНДЕМЕ

Пайдаланылған ядролық отынның (ПЯО) қайта өңдеу әдістері және жылу тасығыш натриен жылдам нейтрондар реакторларының (ЖНР) даму концепциясы қарастырылған. Ресей бүгін ПЯО пайдалану әдістерін дамытуда сөзсіз көшбасшы болып табылады, сонымен қатар атом энергиясын дамытудағы өзекті мәселелерді шешетін ЖНР – инновациялық технологиялардың қажетті эксплуатациялық тәжірибесіне ие. Осының бәрі ПЯО-мен урандық қорларды және айналымның қауіпсіздігін тиімді пайдалануды қамтамасыз етеді. «Росатом» объектісінде 24 мың тоннадан астам ПЯО жинақталған. Жыл сайын ресейлік АЭС реакторларынан шамамен 650 т пайдаланылған отын түсіріледі, сонымен бірге осы көлемнің 15 % қайта өңделеді. ПЯО реакторларының жылулық нейтронды қайта өңделгенде бөлінген плутоний МОХ-жылулық түрінде пайдаланылуы мүмкін (Mixed-Oxidefuel) – қоспа UO₂+PuO₂. МОХ-жылулықтағы Pu бөлінісінің қолданылуы U-да 30 % дейінгі көлемде керегін төмендетуге мүмкіндік береді. МОХ-таPuO₂ мөлшері 1,5-тен 25-30 мас %-дейін құрайды. Бұндай отынның құны болып керісінше жағдайда радиоактивті қалдықтар болып немесе тұрақсыз режимді елдер ядролық қару жасауға қолдануға болар еді және оны өндіруде қарулы плутонийдің қалдықтары қайтымсыз жойылады. Ресейде атом энергиясын дамыту программасы (ЖНР) базасындағы бекітілген ядролық отындық циклге (БЯОЦ) бағытталған. Атом энергиясының тұрақты дамуын тек бөлек немесе толық тұйықталған отын циклі қамтамасыз ете алады. Басқа ұзақ уақытты болатын түрі торийді пайдалану болып табылады. ПЯО қайта өңдеу мақсаттылығы болып технологиялық және экологиялық мақсаттылығының қайта өңдеу ПЯО нақты сұрағы болып, уран мен энергиялық плутонийден бұрын толық тартылған ЯОЦ-дегі қалпына келтірілген материалдар АЭС болып табылады. Сондықтан өте маңызды болып ПЯО қайта өңдеуде алатын, энергиялық плутонийдің негізгі қолданылатын БН-1200 типінің уақытымен құрылған энергоблок сериялары ұсынылады.

Түйін сөздер: пайдаланылған ядролық отын, қалдықтарды өңдеу, уран, плутоний, оксидтер, кышқылдық сілтісіздендіру, сұйықтық экстракциясы, балқыма электролизі, ядролық реакторлар, атом энергиясы

ABSTRACT

The paper describes some methods of reprocessing of spent nuclear fuel and concept for development of fast neutron reactors with sodium coolant. Now Russian Federation is the undoubted leader in development of fast reactors – the innovative technology, which is capable solving fundamental problems of the nuclear industry, such as effective use of uranium resources and safe management of spent nuclear fuel. Rosatom Corporation sites currently store more than of 24 thousands ton of spent fuel. The total annual discharge of spent fuel from the Russian NPS (Nuclear Power Stations) is approximately 650 tones, and only about 15 % of them reprocessed. Plutonium recovered from spent nuclear fuel of thermal neutron reactors can be used in the form of mixed oxide fuel $UO_2 + PuO_2$ (MOX fuel) The use of separated Pu in MOX fuel allows to lower the need for uranium by up to 30 %. The MOX fuel includes from 1.5 to 30 mass. % of PuO_2 . Reactors on fast neutrons effectively use this fuel. In its production irreversibly disposed surplus of weapons-grade plutonium. They could be became a radioactive waste or used for create nuclear weapons by countries with unstable regimes. The Russian program of development of nuclear energetics focuses on closed nuclear fuel cycle based on fast reactors. Only partial or complete closure of the fuel cycle can provide sustainable development of nuclear energetics. Another long-term option could be the use of thorium. A key issue associated with technological and environmental expediency of reprocessing spent NPS fuel is completeness of recycling of the recovered nuclear materials – primarily uranium and reactor-grade plutonium. So it is very important timely building series of fast BN-1200 reactors, which will become the main consumers of reactor-grade plutonium recovered from spent fuel at its reprocessing.

Keywords: spent nuclear fuel, recycling, uranium, plutonium, oxides, acid leaching, liquid extraction, melt electrolysis, nuclear reactors, atomic power engineering

Поступила 05.01.2018.