

КОНЦЕПТУАЛЬНАЯ СХЕМА ОБРАЩЕНИЯ С ОЯТ ВЫСОКОГО ОБОГАЩЕНИЯ НА ПРИМЕРЕ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО ИМПУЛЬСНОГО ГРАФИТОВОГО РЕАКТОРА

Бакланова Ю.Ю., Букина О.С., Коянбаев Е.Т., Бакланов В.В., Коровиков А.Г.
(Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан),
Витюк В.А. (РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан)

Введение

Импульсно-графитовый реактор (ИГР) – один из старейших исследовательских реакторов в мире [1]. Он отличается от других импульсных реакторов большей интегральной мощностью и тем, что генерирует нейтронный поток самой высокой плотности ($7 \times 10^{16} \text{ см}^{-2} \times \text{с}^{-1}$), интегральную дозу гамма-излучения за пуск $4,78 \times 10^7$ рад и энерговыделение 5,2 ГДж [2].

ИГР создавался для испытаний тепловыделяющих элементов ядерного ракетного двигателя и должен был служить для получения кратковременных, но весьма интенсивных потоков нейтронов и γ -лучей для облучения образцов [3]. Первые испытания экспериментальных твэлов на реакторе ИГР были проведены в феврале 1962 года по программе создания ядерных ракетных двигателей. В 1967–1968 году была проведена модернизация активной зоны реактора: были увеличены диаметр центрального экспериментального канала со 180 до 290 мм и загрузка активной зоны по ^{235}U с 7,46 до 9,0 кг [3].

Использование в реакторе ИГР тепловыделяющих сборок с обогащением 90% по ^{235}U , позволяет квалифицировать данный материал как потенциально пригодный для изготовления ядерных взрывных устройств. В связи с этим, в рамках трехсторонних переговоров между США, Россией и МАГАТЭ реактор ИГР был включен в список исследовательских реакторов для вывоза его топлива в Российскую Федерацию, как в страну-производитель, в рамках программы RRRFR (Russian Research Reactor Fuel Return program). Вывоз облученного топлива ИГР (активная зона, отработавшая 1962 – 1967 гг) был осложнен тем, что в России нет готовой технологии переработки облученного высокообогащенного уранового (ВОУ) топлива и правовой базы для ввоза в страну отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) с очень низким содержанием урана. Решением данных задач явилась идея разработки такой технологии в организации-пользователе РК.

Таким образом в филиале «Институт атомной энергии» Национального ядерного центра Республики Казахстан остро встал вопрос об иммобилизации имеющегося на хранении облученного уран-графитового топлива, участвовавшего в работе реактора в первые годы его существования.

Технология, по условиям конверсии, должна обеспечивать предварительное снижение обогащения топлива по ^{235}U до $< 20 \%$. Кроме того, было принято решение о поиске возможности вывода получаемого РАО, содержащего ядерный материал, из-под гарантий МАГАТЭ. В связи с этим, экспертами МАГАТЭ были определены соответствующие условия иммобилизации облученного топлива: процесс должен обеспечивать исключение возможности извлечения урана на любом этапе технологического процесса, концентрация ^{235}U в матрице – не более 50 ppm, при этом размер частиц топлива должен быть около 200 мкм и уран должен быть равномерно распределен по объему иммобилизующей матрицы.

1 Основные характеристики облученного топлива ИГР

Топливо реактора ИГР представляет собой графитовые блоки и стержни (рис. 1), пропитанные водным раствором уранилдинитрата до концентрации 3,1 г ^{235}U на один килограмм графита (для штатных элементов второй активной зоны) и 2,7 г/кг (для штатных элементов первой активной зоны). Обогащение изотопом ^{235}U составляет 90 %.. Средняя плотность графита активной зоны 1,71 г/см³, отражателя 1,60 г/см³. Средняя плотность активной зоны 1,43 г/см³ [1]. В такой конфигурации реактор ИГР работает до настоящего времени.

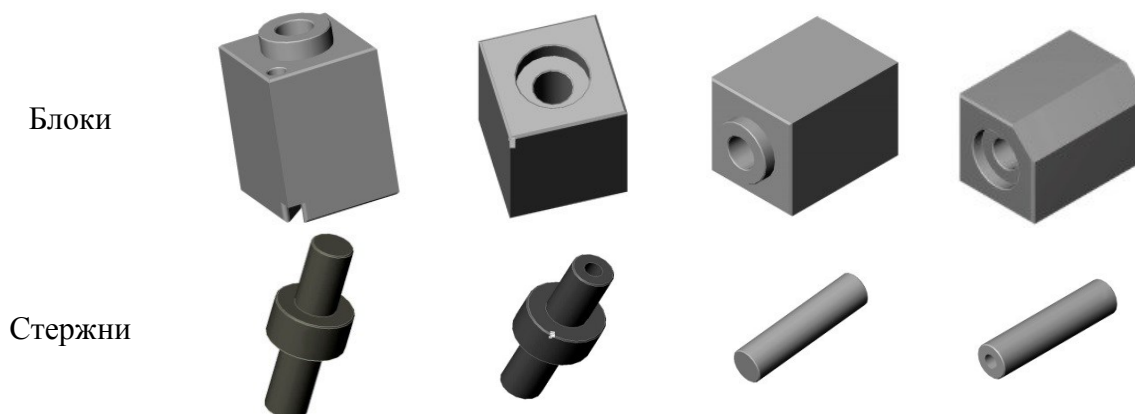


Рис. 1. Внешний вид твэлов ИГР

Следует уточнить, что свойства облученного топлива первой активной зоны неизвестны. Они не исследовались. Однако физико-механические свойства ВОУ топлива, учитывая малую дозу облучения, будут близки к свойствам необлученного (свежего) топлива. Исследования свежего топлива позволили получить базовые характеристики ВОУ топлива реактора ИГР [4].

Элементы активной зоны имеют незначительные отличия в плотности и пористости, что говорит об однородной структуре материала. Измеренная открытая пористость – менее 12 % объемных.

Максимальное значение твердости во всех блоках не превышает 20 HV 10.

Наибольшие значения предела прочности материал блока имеет $\langle \sigma_{сж} \rangle = 57,4 \pm 2,7$ МПа; $\langle \sigma_{н} \rangle = 24,5 \pm 1,3$ МПа, а стержня – $\langle \sigma_{сж} \rangle = 51,7 \pm 1,7$ МПа; $\langle \sigma_{н} \rangle = 20,3 \pm 3,6$ МПа.

По результатам электронно-микроскопических исследований было установлено, что в материале топливных блоков частицы урана и его соединений распределены в двух различных формах: отдельные гомогенные частицы и скопления множества урановых частиц. Среднее содержание ^{235}U составило 0,294 % для блока и 0,288 % для стержня. Коэффициент неравномерности распределения содержания урана изменяется в пределах от 1,06 до 1,54.

Характеристика наиболее значимых радионуклидов в графитовых блоках облученной активной зоны реактора представлена в таблице (данные на 2016 год).

Количество, активность и вид излучения нуклидов [4]

№	Нуклид	N (число ядер нуклида)	Q (активность нуклида), с ⁻¹
1	^{137}Cs	$9,65 \cdot 10^{20}$	$7,03 \cdot 10^{11}$
2	^{90}Sr	$8 \cdot 10^{20}$	$6,15 \cdot 10^{11}$
3	^{151}Sm	$9,03 \cdot 10^{19}$	$2,2 \cdot 10^{10}$
4	^{99}Tc	$2,71 \cdot 10^{21}$	$2,21 \cdot 10^8$
5	^{155}Eu	$1,36 \cdot 10^{16}$	$6,04 \cdot 10^7$

№	Нуклид	N (число ядер нуклида)	Q (активность нуклида), с ⁻¹
6	⁹³ Zr	$3,11 \cdot 10^{21}$	$4,38 \cdot 10^7$
7	¹³⁵ Cs	$3 \cdot 10^{21}$	$2,86 \cdot 10^7$

Как видно из таблицы, преимущественный вклад в уровень гамма-излучения от облучённых уран-графитовых блоков активной зоны реактора ИГР вносит нуклид ¹³⁷Cs.

Расчетное значение степени выгорания ВОУ топлива составило менее 1 % [5].

2 Выбор метода разбавления облученного ВОУ топлива

В открытой печати отсутствует информация по обращению с уран-графитовым топливом. Имеются материалы по технологиям переработки реакторного графита, который использовался в активных зонах реакторов в качестве замедлителя и не содержал топлива. Активность такого графита обусловлена продуктами деления, попадающими на графит в виде просыпей ОЯТ. Графит же ИГР представляет собой топливные графитовые элементы, пропитанные ядерным материалом с обогащением 90 % по ²³⁵U, облученные в реакторе, поэтому для его переработки требуется на первом этапе снизить содержание ²³⁵U до уровня $\leq 20\%$ путем разбавления его природным ²³⁸U и при разработке технологии иммобилизации исключить стадии, позволяющие выделить ²³⁵U.

В качестве примеров существующих технологий переработки реакторного графита был рассмотрен ряд методов [6], из которых предварительно было выбрано и адаптировано для облученного графитового ВОУ топлива, четыре:

- сжигание;
- химическая переработка;
- комбинированный способ, включающий сжигание и химическую переработку;
- сухое смешивание.

В выбранных технологиях предусмотрено разбавление топлива природным ураном до нужной концентрации. Этот этап реализуется следующим образом: мелкодисперсный высокообогащенный уран смешивается с природным с последующим химическим растворением в азотной кислоте или сжиганием этих компонентов. Предложенные методы являются простыми в реализации, однако каждый из них имеет как положительные, так и отрицательные стороны: это возможность компактирования топлива и увеличение объема РАО, соответственно. Четвертый предложенный метод – сухое смешивание, является малоизученным, но он осуществляется по наиболее простой схеме и не требует сложного оборудования. Кроме того, при сухом смешивании исключена возможность извлечения ВОУ топлива на любом из этапов технологической схемы.

3 Выбор метода иммобилизации облученного ВОУ топлива

При анализе существующих способов иммобилизации РАО в качестве матрицы для облученного уран-графитового топлива реактора ИГР были рассмотрены полимерные и цементные системы. В результате предпочтение было отдано матрице на основе портландцемента с модифицирующими добавками в виде золы уноса и доменного шлака.

Добавление модификаторов в цементный раствор, таких как доменный шлак и зола уноса было включено из-за того, что чистый цементный раствор является более химически активными и потенциально может дать нежелательные результаты в виде короткого времени схватывания и высокого тепловыделения, провоцирующего возможное растрескивание цементного камня.

К основным достоинствам матрицы на основе портландцемента относятся доступность материала, относительная дешевизна, достаточная гидrolитическая устойчивость.

Существует такая проблема как отсутствие требований к методу цементирования твердых радиоактивных отходов или отработавшего ядерного топлива в нормативных документах РК. В Правила организации сбора, хранения и захоронения радиоактивных отходов и отработавшего ядерного топлива [7] включены требования только по отношению к цементированию жидких радиоактивных отходов. Для твердых радиоактивных отходов рекомендуются следующие способы переработки: сжигание, прессование, измельчение, переплавка. Этот нюанс является прямым следствием новаторства предлагаемого способа иммобилизации (кондиционирования) облученного топлива реактора ИГР, как РАО.

Учитывая, что измеренная удельная активность графитового топлива по ^{137}Cs составила 0,3 МБк/г, то для цементной матрицы общая активность составит 1,98 ГБк /г (для 6,6 кг графитового топлива в 200-литровой бочке) и 1,23 ГБк/г для полимера объемом 200 литров [6].

Если отталкиваться от проведенных ранее исследований фазового состава ВОУ топлива ИГР [8] то единственными химическими веществами облученного топлива ИГР являются графитовый порошок и оксид урана, и, следовательно, никаких разрушающих химических реакций не ожидается ни в цементе, ни в полимере, ни в геополимере в виде коррозии. Присутствие графита и оксида урана в цементе и полимере по существу химически инертно в течение длительного срока хранения. К тому же, количество топлива, включаемого в матрицу на основе портландцемента, невелико, оно ограничивается содержанием ^{235}U (<50 ppm), что эквивалентно доле графита в матрице <1,7 масс. %. Также маловероятно, что остаточная энергия Вигнера будет присутствовать в графите, которая может высвободиться при застывании цементной матрицы, так как реактор ИГР работает короткими, но мощными импульсами, пиковой мощностью около 10 ГВт, и после каждого импульса он охлаждается в течение нескольких дней естественным теплообменом с окружающей средой. Максимальная температура разогрева активной зоны составила 2000 К, а обычная рабочая температура после импульса около 1000 К [9].

В рамках лабораторных исследований были определены варианты составов цементной матрицы и соотношений ее компонентов, отобрано два наиболее перспективных.

Полномасштабные эксперименты позволили отработать схему подачи компонентов, режимы работы оборудования для смешивания, параметры тепловыделения, распределения урана по объему матрицы, прочности и конечного обогащения топлива в матрице. Работы проводились со свежим топливом реактора ИГР.

Основные требования к матрицам для РАО описаны в документе Nuclear Waste Forms [10]. Они варьируются в зависимости от класса отходов и уровня активности [11, 12]. С учетом международных, государственных норм и требований, условий программы RRRFR и МАГАТЭ для вывода топлива из под гарантий, в рамках научно-исследовательских работ в обоснование технологии разбавления и иммобилизации облученного графитового ВОУ топлива был составлен следующий список критериев приемлемости конечной формы топлива :

- обогащение топлива после разбавления по ^{235}U : ≈ 5 масс.%;
- концентрация ^{235}U в матрице: ≤ 50 ppm;
- размер частиц порошка топлива при измельчении: ≈ 200 μm ;

- равномерность распределения частиц топлива по объему матрицы, которая определяется отсутствием крупных агломераций урана;
- содержание графита в матрице: ≤ 15 масс.%;
- МЭД гамма-излучения на персонал при иммобилизации топлива: ≤ 20 мЗв/год;
- механическая прочность (предел прочности при сжатии): >10 МПа;
- морозостойкость: после 30 циклов замораживания-оттаивания в диапазоне температур от -40 до $+40^{\circ}\text{C}$, значение механической прочности должно быть не менее 10 МПа, а снижение прочности не более чем на 25 %;
- устойчивость к длительному пребыванию в воде: после выдержки в воде в течение 90 дней, значение механической прочности должно быть не менее 10 МПа, а снижение прочности не более чем на 25 %;
- скорость выщелачивания по ^{137}Cs : $\leq 10^{-3}$ г/(см²×сут).

Оба кандидатных состава цементной матрицы успешно прошли испытания и составу, содержащему большее количество воды, было отдано предпочтение только на основании удобства работы с ним.

4 Концептуальная схема обращения с облученным графитовым ВОУ топливом

Технологическая линия концептуально включает:

- ✓ Участок по переупаковке облученного топлива, откуда топливо будет поставляться в контейнерах, содержащих норму топлива для одной бочки.
- ✓ На участке разбавления и иммобилизации облученное ВОУ топливо будет измельчаться, смешиваться с обедненным ураном до обогащения 5% и подаваться в бочку с компонентами цементной матрицы для смешивания. На данном участке также осуществляется выдержка бочек с полученным раствором до полного застывания, что занимает около 28 суток.
- ✓ После получения цементной матрицы, бочки транспортируются на участок временного хранения.
- ✓ Далее, осуществляется снятие иммобилизованного топлива с гарантий. Для этого необходимо, чтобы Регулятор в лице КАЭНК обратился в МАГАТЭ и получил соответствующее разрешение. В рамках разработки технологии были учтены все оговоренные с МАГАТЭ критерии, которые позволят провести эту процедуру успешно, после чего бочки отправляются на захоронение (рис. 2)

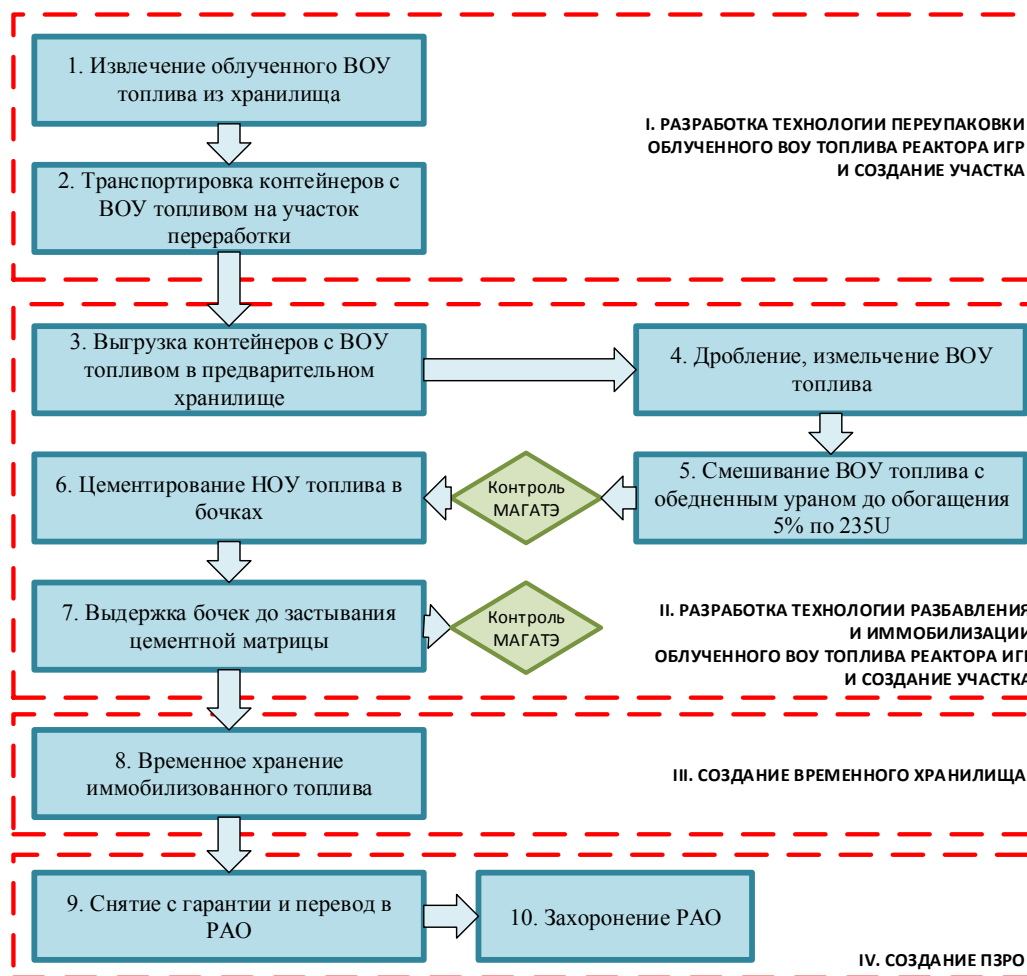


Рис. 2. Схема технологического процесса иммобилизации облученного ВОУ топлива ИГР

Заключение

Результатом научно-исследовательских работ в обоснование выбора технологии иммобилизации облученного топлива импульсно-графитового реактора (ИГР) являлись:

- критерии разбавления и иммобилизации облученного ВОУ топлива;
- метод разбавления ВОУ топлива для снижения его обогащения, посредством измельчения и сухого смешивания топлива с обедненным ураном;
- способ и режимы иммобилизации разбавленного облученного ВОУ топлива реактора ИГР в цементной матрице;
- последовательность этапов технологического процесса;
- основные технические характеристики и конструктивные особенности оборудования для дробления и измельчения облученного графитового топлива.

Завершены лабораторные исследования, в которых был определен состав и соотношение компонентов цементной матрицы для иммобилизации первой активной зоны ИГР.

Проведены полномасштабные испытания в поддержку выбранной технологии и протестированы режимы производственной матрицы;

Разработанная технология была направлена в МАГАТЭ, откуда получила положительное экспертное заключение, и в КАЭНК, откуда было получено одобрение на разработку проекта на объект по иммобилизации облученного топлива.

Список литературы

1. Курчатов И.В., Фейнберг С.М., Доллежалъ Н.А., Алещенков П.И., Дроздов Ф.С., Емельянов И.Я., Жирнов А.Д., Казаченко М.А., Князева Г.Д., Кондратьев Ф.В., Лавреников В.Д., Моргунов Н.Г., Петунин Б.В., Смирнов В.П., Талызин В.М., Филиппов А.Г., Чихладзе И.Л., Чулков П.М., Шевелев Я.В. Импульсный графитовый реактор ИГР // Атомная энергия. – 1964. – Т.17, вып. 6. – С. 463–474.
2. Батырбеков Э.Г., Коянбаев Е.Т., Гныря В.С., Котляр А.Н. Реактор ИГР. Разбавление высокообогащенного уранового топлива // Человек. Энергия. Атом. – 2020. – №1 (33). – С. 23–27.
3. Институт атомной энергии национального ядерного центра республики Казахстан – 60 лет: Книга / Под ред. Батырбекова Э.Г. и Скакова М.К. – Кокшетау: КФ "Кокшетау", 2018. – 300. 51 с.; Батырбеков Э.Г., Коянбаев Е.Т., Гныря В.С., Котляр А.Н. Реактор ИГР. Разбавление высокообогащенного уранового топлива // Человек. Энергия. Атом. – 2020. – №1 (33). – С. 23–27.
4. Отчет № 12-230-02/235вн. от 12.12.2017 по этапу «Технико-экономическое обоснование подготовки НЯЦ к разбавлению реакторного топлива ИГР» контракта № 00173040 «Подготовка НЯЦ к процессу разбавления ВОУ топлива реактора ИГР».
5. Отчет № 36-100-05/375вн. от 01.03.17 по этапу 3.1.4 «Измерение мощности излучения от облученного ядерного топлива реактора ИГР и анализ радионуклидного состава ОЯТ» контракта № 00173040 «Подготовительные работы в НЯЦ РК по разбавлению ВОУ топлива реактора ИГР».
6. Отчет № ... SOW-14709 «Анализ технической осуществимости разбавления облученного топлива реактора ИГР» контракта № 00187855 "Подготовка НЯЦ РК к процессу разбавления ВОУ топлива реактора ИГР» SOW-14709 «Анализ технической осуществимости разбавления облученного топлива реактора ИГР»
7. Правила организации сбора, хранения и захоронения радиоактивных отходов и отработавшего ядерного топлива, утвержденных Приказом Министра энергетики Республики Казахстан от 8 февраля 2016 года № 39.
8. Отчет № 12-230-02/2160вн от 2018 г. по задаче 3.1.2.3 «Характеристика ядерных материалов» контракта № 00187855 «Подготовительные работы НЯЦ по загрузке, перевозке и разбавлению свежего топлива реактора ИГР».
9. Иркимбеков, Р.А. Энерговыделение в модельной ТВС при тепловых испытаниях в импульсной реакторной установке: дис. канд. физ.-мат. наук.: 01.04.14 – НИ ТПУ. – Томск, 2016. – 129 с.
10. Nuclear Waste Forms [Text] / S.V. Stefanovsky, S.V. Yudintsev, R. Giere, G.R. Lumpkin // Energy, Waste and the Environment: A Geological Perspective. Geological Society, London. – 2004. – Special Publication. – V. 236. – P. 37–63.
11. Nuclear Waste Forms [Text] / S.V. Stefanovsky, S.V. Yudintsev, R. Giere, G.R. Lumpkin // Energy, Waste and the Environment: A Geological Perspective. Geological Society, London. – 2004. – Special Publication. – V. 236. – P. 37–63.
12. Строение и гидролитическая устойчивость самарий, гафний и урансодержащих стеклокристаллических материалов для иммобилизации твердых радиоактивных отходов. Малинина Г.А., 05.17.02, М.– 2016.