

Министерство образования и науки Российской Федерации
федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования



**«НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ
ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ»**

Направление подготовки: 14.06.01 «Ядерная, тепловая и возобновляемая энергетика и сопутствующие технологии»

профиль: 05.17.02 «Технология редких, рассеянных и радиоактивных элементов»

Школа: Инженерная школа ядерных технологий

Отделение ядерно-топливного цикла

**Научный доклад об основных результатах подготовленной
научно-квалификационной работы**

Тема научного доклада
Термохимическое окисление фрагментированного отработавшего ядерного топлива УДК <u>621.039.54</u>

Аспирант

Группа	ФИО	Подпись	Дата
А5-81	Аксютин Павел Викторович		

Руководитель профиля подготовки

Должность	ФИО	Ученая степень, звание	Подпись	Дата
Профессор	Жерин И.И.	д.х.н., профессор		

Руководитель отделения

Должность	ФИО	Ученая степень, звание	Подпись	Дата
Руководитель ОЯТЦ	Горюнов А.Г.	д.т.н., доцент		

Научный руководитель

Должность	ФИО	Ученая степень, звание	Подпись	Дата
Профессор	Жерин И.И.	д.х.н., профессор		

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования. Промышленно освоенная гидрометаллургическая технология (ПУРЕКС-процесс) предусматривает кислотное растворение фрагментов отработавшего топлива и последующее экстракционное извлечение ценных компонентов из полученного раствора. При проведении кислотного растворения фрагментов ОЯТ тритий переходит в раствор и затем распределяется по всем продуктам технологической схемы, тем самым существенно затрудняя процесс его локализации. Проведение предварительной окислительной обработки фрагментов топлива перед гидрометаллургическими стадиями переработки отработавшего ядерного топлива технологически целесообразно, по причине получения реакционноспособного порошкообразного материала, удаления из топлива летучих радиоактивных компонентов, а также снижение радиационной нагрузки на экстрагент.

Целью работы являлась разработка и лабораторная апробация комплексного способа низкотемпературной термохимической обработки фрагментированного топлива, включающего подготовку окислительной смеси и последующую очистку отработанного газового потока от вредных химических и радиоактивных веществ.

Во **введении** обоснована актуальность работы, сформулированы основные цели и задачи, научная новизна и практическая значимость проведенных исследований и разработок, представлены выносимые на защиту положения, указан личный вклад автора.

В **первой главе** научно квалификационной работы (НКР) представлен обзор данных научно-технической и патентной литературы российских и зарубежных исследователей в области окислительной обработки керамического топлива на основе диоксида урана. По результатам анализа отмечены главные недостатки существующих высокотемпературных способов окислительной обработки фрагментированного ОЯТ. Наиболее приемлемым представляется проведение низкотемпературной термохимической обработки фрагментированного топлива окислительной смесью ($N_xO_y + O_2 + CO_2 + H_2O_{(пар)}$). По итогам литературного обзора сформулированы цели и задачи научно-квалификационной работы.

Во **второй главе** (методическая часть) НКР представлены характеристики основного технологического оборудования, применяемого в ходе выполнения исследований, методы аналитического контроля технологических продуктов. Описаны методики подготовки каталитически активных насадок на основе платины, а также серебросодержащего сорбента для селективного улавливания молекулярного йода из газовых выбросов.

В **третьей главе** представлены результаты исследований процесса термохимического окисления необлученных таблеток UO_2 в статических условиях с использованием в качестве окислителя кислорода или диоксида азота при различных температурах.

Протекание процесса окисления диоксида урана в атмосфере кислорода или диоксида азота термодинамически весьма вероятно. При этом в обоих случаях наиболее предпочтительно образование в качестве продукта реакции закиси-окси урана.

Экспериментально установлено, что окисление диоксида урана в атмосфере кислорода при температурах 450-500 °С и в атмосфере диоксида азота при температурах 350-370 °С протекает с сопоставимыми скоростями. По результатам гравиметрического анализа полученный порошкообразный материал соответствовал брутто-формуле U_3O_8 .

В **четвертой главе** представлены результаты исследований процесса получения окислительной смеси ($N_xO_y + O_2 + CO_2 + H_2O_{(пар)}$) пригодной для термохимической обработки топлива на основе диоксида урана керамического качества. Для получения окислительной смеси ($N_xO_y + O_2 + CO_2 + H_2O_{(пар)}$), предложен способ каталитического восстановления азотной кислоты с использованием в качестве восстановителя щавелевой кислоты. Процесс получения окислительной смеси в результате каталитического восстановления азотной кислоты термодинамически возможен.

В результате проведения серии экспериментов установлены условия протекания процесса получения окислительной смеси ($N_xO_y + O_2 + CO_2 + H_2O_{(пар)}$) пригодной для термохимической обработки фрагментированного топлива на основе керамического диоксида урана.

В **пятой главе** представлены результаты исследований процесса низкотемпературной термохимической обработки фрагментированного топлива на основе диоксида урана керамического качества окислительной смесью ($N_xO_y + O_2 + CO_2 + H_2O_{(пар)}$): рассмотрены кинетические закономерности процесса, установлено влияние технологических параметров на полноту и скорость окисления топлива.

Для проведения экспериментов использовали аппарат-реактор печного типа с горизонтальной осью вращения внутреннего перфорированного контейнера.

Изучена кинетика процесса низкотемпературной окислительной обработки фрагментированного топлива окислительной смесью ($N_xO_y + O_2 + CO_2 + H_2O_{(пар)}$). Значение кажущейся энергии активации составило 46,6 кДж/моль. Процесс протекает в переходной области, скорость суммарной реакции зависит как от скорости химической реакции, так и от скорости диффузии окислительных реагентов.

При проведении низкотемпературной термохимической обработки фрагментированного топлива на основе диоксида урана керамического качества окислительной смесью ($N_xO_y + O_2 + CO_2 + H_2O_{(пар)}$) получен не пылящий порошкообразный материал, который по результатам гравиметрического и рентгенофазового анализа соответствовал брутто-формуле U_3O_8 .

В **шестой главе** представлены результаты по разработке и экспериментальной апробации способа очистки отработавшего газового потока с операции термохимического окисления фрагментированного топлива, а также показана принципиальная возможность регенерации азотной кислоты из выбросов, содержащих оксиды азота. Определены технологические условия для очистки газовых выбросов от вредных химических и радиоактивных веществ до экологически приемлемых значений.

В лабораторных условиях проведена комплексная проверка разработанного способа поэтапной очистки имитатора отработанного газового потока, содержащего оксиды азота, диоксид углерода, молекулярный йод, пары воды и азотной кислоты, и определены технологические режимы основных операций. Из имитатора отработанного газового потока регенерирована азотная кислота, коэффициент очистки от йода составил не менее 100, от оксидов азота не менее 1000.

В **седьмой главе** представлены результаты проверки разработанного комплексного способа низкотемпературной термохимической обработки фрагментированного топлива, включающего подготовку окислительной смеси, термохимическую обработку топлива и очистку газовых выбросов, с использованием фрагмента ОЯТ ВВЭР-1000 Балаковской АЭС.

В ходе проведения эксперимента по низкотемпературной термохимической обработке фрагмента ОЯТ ВВЭР-1000 Балаковской АЭС, получили достаточно высокую долю отделения топлива от оболочки, количественное удаление из топлива трития и йода при отсутствии уноса цезия в газовую фазу. В результате получен не пылящий порошкообразный материал, брутто формулой U_3O_8 . Из отработанного газового потока операции низкотемпературного термохимического окисления регенерирована азотная кислота в форме пригодной для дальнейшего использования в радиохимическом производстве.

По теме диссертации опубликовано 12 работ, в том числе тезисы 8 докладов, 4 патента, а также 2 отчета о научно-исследовательской работе, содержащих экспериментальные разделы по теме работы.