

Научная статья
УДК 621.039.59
doi:10.37614/2949-1215.2025.16.4.003

ЩЕЛОЧНОЕ РАСТВОРЕНИЕ ТВЭЛОВ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИХ РЕАКТОРОВ С ДИСПЕРСИОННОЙ ТОПЛИВНОЙ КОМПОЗИЦИЕЙ

**Анастасия Геннадиевна Коптяева¹, Сергей Владимирович Артоболевский²,
Любовь Николаевна Подрезова³, Алина Вячеславовна Баркова⁴, Константин Игоревич Линник⁵**

^{1–5}Акционерное общество «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А. А. Бочвара», Москва, Россия

^{4, 5}Российский химико-технологический университет имени Д. И. Менделеева, Москва, Россия

¹AGKoptyaeva@bochvar.ru, <https://orcid.org/0009-0008-8717-747X>

²SVArtobolevsky@bochvar.ru, <https://orcid.org/0000-0002-3136-980X>

³LNPodrezova@bochvar.ru

⁴barkovalinaa@gmail.com

⁵linnik-kostia@yandex.ru

Аннотация

Представлены результаты исследований по определению возможности удаления алюминиевой матрицы дисперсионных твэлов щелочным растворением с последующей передачей нерастворимых соединений ядерных материалов и продуктов деления для переработки по схеме, принятой в настоящее время на ФГУП «ПО «Маяк». Оценено распределение урана, алюминия и кремния по технологическим потокам, образующимся на этапе щелочного растворения, обсуждены преимущества и недостатки предлагаемой операции.

Ключевые слова:

дисперсионное топливо, дисилицид триурана, алюминиевая матрица, щелочное растворение, исследовательский реактор

Благодарности:

исследовательская работа выполнена в рамках Единого отраслевого тематического плана ГК «Росатом» (ЕОТП-ТЦПМ-404).

Финансирование:

Единый отраслевой план НИОКР Госкорпорации «Росатом» (проект ЕОТП-ТЦПМ 404).

Для цитирования:

Коптяева А. Г., Артоболевский С. В., Подрезова Л. Н., Баркова А. В., Линник К. И. Щелочное растворение твэлов исследовательских реакторов с дисперсионной топливной композицией // Труды Кольского научного центра РАН. Серия: Технические науки. 2025. Т. 16, № 4. С. 22–28. doi:10.37614/2949-1215.2025.16.4.003

Original article

ALKALINE DISSOLUTION OF FUEL RODS OF RESEARCH REACTORS WITH A DISPERSION FUEL COMPOSITION

**Anastasia G. Koptyaeva¹, Sergei V. Artobolevskii², Lyubov N. Podrezova³, Alina V. Barkova⁴,
Konstantin I. Linnik⁵**

^{1–5}Joint-stock company «Advanced Research Institute of Inorganic Materials named after Academician A. A. Bochvar», Moscow, Russia

^{4, 5}Mendeleev University of Chemical Technology, Moscow, Russia

¹AGKoptyaeva@bochvar.ru, <https://orcid.org/0009-0008-8717-747X>

²SVArtobolevsky@bochvar.ru, <https://orcid.org/0000-0002-3136-980X>

³LNPodrezova@bochvar.ru

⁴barkovalinaa@gmail.com

⁵linnik-kostia@yandex.ru

Abstract

The results of studies are presented to determine the possibility of removing the aluminum matrix of dispersion fuel rods by alkaline dissolution, followed by the transfer of insoluble compounds of nuclear materials and fission products for processing according to the scheme currently adopted at FSUE "PO "Mayak". The distribution of uranium, aluminum, and silicon along the technological streams formed at the stage of alkaline dissolution is estimated, and the advantages and disadvantages of the proposed operation are discussed.

Keywords:

dispersion fuel, uranium disilicide, aluminum matrix, alkaline dissolution, research reactor

Acknowledgments:

The research work was carried out within the framework of the Unified Sectoral Thematic Plan of the State Corporation Rosatom (EOTP-TCPM 404).

Funding:

Unified Sectoral Thematic Plan of the State Corporation Rosatom (EOTP-TCPM 404).

For citation:

Koptyaeva A. G., Artobolevskii S. V., Podrezova L. N., Barkova A. V., Linnik K. I. Alkaline dissolution of fuel rods of research reactors with a dispersion fuel composition // Transactions of the Kola Science Centre of RAS. Series: Engineering Sciences. 2025. Vol. 16, No. 4. P. 22–28. doi:10.37614/2949-1215.2025.16.4.003.

Введение

Дисперсионное ядерное топливо, обладающее повышенной теплопроводностью и радиационной стойкостью, рассматривается в качестве перспективного варианта топливной композиции атомных станций малой мощности (АСММ), а также находит широкое применение в активных зонах реакторов различных типов: транспортных, материаловедческих и исследовательских [1]. В частности, такой вид топлива используется в исследовательских реакторах типа ИРТ-М — гетерогенных водо-водяных реакторах на тепловых нейтронах бассейного типа со стационарным потоком нейтронов.

Тепловыделяющие сборки (ТВС) ИРТ-2М, ИРТ-3М, ИРТ-4М, разработанные для эксплуатации в исследовательских реакторах типа ИРТ [2], состоят из коаксиальных трубчатых твэлов квадратного сечения с закругленными углами. Поперечное сечение четырехтрубной ТВС ИРТ-2М, восьмитрубных ТВС ИРТ-3М и ИРТ-4М показано на рис. 1 [3]. Твэлы реакторов такого типа имеют трехслойное строение и состоят из оболочки и сердечника, представляющего собой крупку топливной композиции (оксиды или силициды урана), диспергированной в алюминиевой матрице. Оболочки твэлов выполняются из алюминиевого сплава САВ-1, относящегося к группе авиалей (системы Al – Mg – Si с содержанием кремния до 1,2 мас. %). Стандартный состав данного сплава приведен в табл. 1 [4].

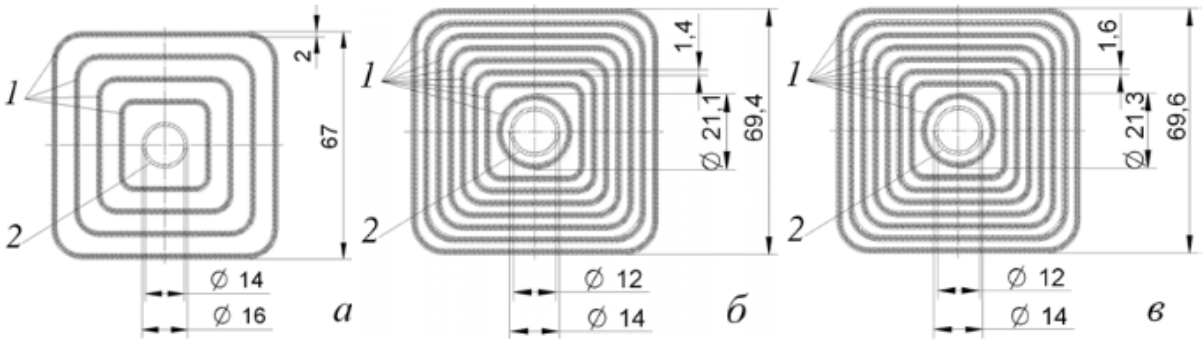


Рис. 1. Поперечное сечение конструктивных элементов ТВС исследовательских реакторов типа ИРТ:
а — трехтрубной ТВС ИРТ-2М; б — восьмитрубной ТВС ИРТ-3М;
в — ИРТ-4М; 1 — оболочка твэла; 2 — труба-вытеснитель [3]

Таблица 1

Состав сплава САВ-1

Элемент	Al	Si	Mg	Zn	Fe	Ni
Мас. доля, %	Основа	0,87	0,6	< 0,05	0,2	< 0,05

В настоящее время на заводе РТ-1 ФГУП «ПО «Маяк» реализован процесс растворения дисперсионного ОЯТ в алюминиевой матрице с применением азотной кислоты, основным недостатком которого можно считать образование большого объема потоков из-за высокой плотности и вязкости алюминийсодержащих растворов. Кроме того, в литературе отмечается достаточно низкая эффективность азотнокислого растворения Al-содержащих компонентов твэлов, в связи с чем рекомендуется катализировать процесс, вводя в систему Hg^{2+} -ионы [5]. Обращение с такими потоками, образующимися после стадии растворения твэлов, существенно усложняет стандартную гидрометаллургическую схему переработки ОЯТ.

В качестве альтернативного варианта предлагается процесс щелочного растворения, при котором достигается практически полное удаление дисперсионной матрицы (алюминия или его сплавов). Предполагается, что потери ядерных материалов (ЯМ) при использовании данного подхода будут минимальными по причине низкой растворимости оксидов U, Pu и Np [6–9]; тем не менее имеющиеся данные являются противоречивыми и требуют уточнения. ЯМ и продукты деления (ПД) после

фильтрации предлагается растворять в азотной кислоте и перерабатывать по схеме PUREX-процесса. Гидроксид натрия, применяемый в процессе щелочного растворения, возможно регенерировать с использованием различных методов, в том числе осадительных и ионообменных. Применение нитратов щелочных металлов позволяет минимизировать выделение водорода на данной операции, что повышает пожаровзрывобезопасность предлагаемого метода [10].

Целью данной работы стало исследование процесса щелочного растворения фрагментов твэлов типа ИРТ-М с дисперсионной топливной композицией.

Результаты исследований

Были проведены две серии экспериментов по изучению процесса щелочного растворения материалов тепловыделяющих элементов реакторов типа ИРТ. В первой серии были использованы модельные образцы фрагментов твэлов — спрессованные таблетки, содержащие 30 масс. % U_3Si_2 , диспергированного в матрице алюминиевой пудры ПА-4; во второй — стандартные необлученные твэлы, полученные от ПАО «НЗХК». Фотографии образцов приведены на рис. 2.

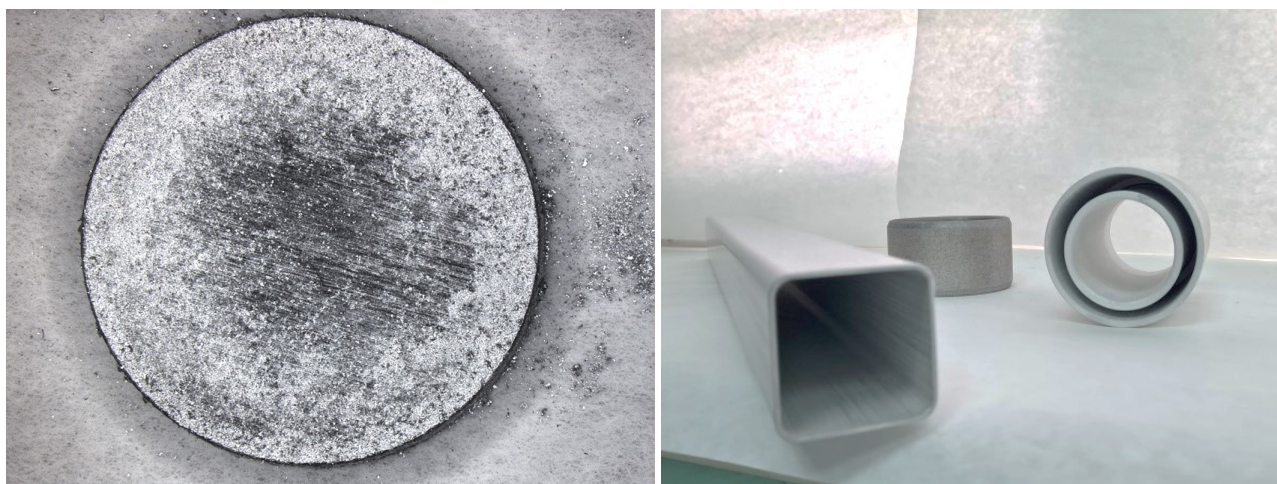
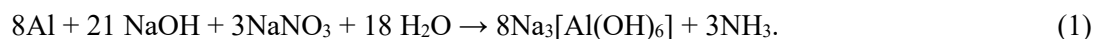


Рис. 2. Слева — спрессованная таблетка состава $U_3Si_2 - Al$, применяемая в качестве имитатора состава твэлов реакторов ИРТ. Справа — твэлы, полученные от ПАО «НЗХК»

Для проведения экспериментов исходные образцы помещали в термостойкую коническую колбу, добавляли $NaOH$ и $NaNO_3$, нагревали при температуре $\sim 100^\circ C$ при постоянном перемешивании с обратным холодильником в течение 1,5 ч. При использовании нитрата натрия реакция растворения алюминия в щелочной среде протекает по уравнению, приведенному ниже [10], в результате чего образуется аммиак, обладающий меньшей по сравнению с водородом взрывоопасностью (допустимая концентрация в воздухе составляет до 33,6 % об. [11]):



В ходе протекания данной реакции (1) наблюдали вспенивание раствора и выделение газа, который отводился в прямой холодильник, растворялся в парах воды и поступал в колбу-приемник, заполненную раствором сульфата меди (II). Образование аммиака в системе фиксировали по качественной реакции образования гидроксида меди (II) при недостатке NH_3 , а затем — темно-синего комплекса сульфата тетрааминмеди (II) ($[Cu(NH_3)_4]SO_4$) — при его избытке [12].

Исследование осадков, полученных в ходе экспериментов, проводилось с использованием порошкового рентгеновского дифрактометра Colibri и сканирующего электронного микроскопа Сохет CX-200 Plus, оснащенного модулем энергодисперсионной спектроскопии (ЭДС-спектроскопии) с возможностью высокоточного картирования.

Полученные в результате экспериментов растворы после предварительного разбавления анализировались на оптико-эмиссионном спектрометре с индуктивно-связанной плазмой (ИСП-ОЭС) EXPEC 6500, оборудованном системой автоподачи проб. Для генерации плазмы использовался аргон чистотой 99,9995 %. Для определения концентраций элементов использовались спектральные линии, приведенные в табл. 2. В табл. 2 также приведены коэффициенты детерминации для указанных элементов, полученные при построении калибровочных графиков. Для калибровки использовались стандартные многоэлементные растворы (МЭС-1 СОП-15616-2014, МЭС-2 СОП-15616-2014), а также стандартный раствор, содержащий уран, с массовой концентрацией 10 г/л.

Данные о составе жидкой фазы наиболее репрезентативного эксперимента и параметрах ω приведены в табл. 3.

Таблица 2

Линии, использованные для спектрального анализа некоторых элементов

Элемент	Длина волны, нм	R^{2*}
Уран	409,014	1,00000
Алюминий	396,152	0,99997
Кремний	212,412	0,99960

* Коэффициент детерминации, показывающий долю отклонения массива значений экспериментальных данных от предполагаемой линейной зависимости $I_{\lambda} \sim f(C)$.

Таблица 3

Состав жидкой фазы после растворения образца в смеси NaOH + NaNO₃ и доли элементов, перешедшие в раствор

$c(\text{Al})$, г/л	$c(\text{U})$, г/л	$c(\text{Si})$, г/л	$\omega^*(\text{Al})$, %	$\omega^*(\text{U})$, %	$\omega^*(\text{Si})$, %
25,89	0,03	0,09	99,99	0,20	7,66

* Массовые доли элементов в водной фазе, $\omega = 100 \cdot (m_{i, \text{р-р}}/m_{i, \text{общ}})$, где $m_{i, \text{р-р}}$ — масса i -го элемента в растворе, $m_{i, \text{общ}}$ — общая масса i -го элемента в образце.

Анализируя полученные данные, можно сделать вывод, что при реализации эффективного режима проведения процесса ($t = 100$ °С за 1,5 ч) топливная композиция в основном остается в твердом состоянии, в то время как алюминиевая оболочка и матрица растворяются практически полностью.

Все имеющиеся отражения на порошковой дифрактограмме осадка, полученного после проведения данной операции, соответствуют таковым для исходного материала — порошка топливной композиции производства ПАО «НЗХК» (рис. 3). Анализ состояния поверхности осадка и его состава методом ЭДС-спектроскопии показал наличие только двух элементов — U и Si (рис. 4).

Таким образом, можно отметить, что при соблюдении указанных условий на операции щелочного растворения дисперсионных топливных композиций в алюминийсодержащих матрицах образуется прозрачный раствор, содержание Al в котором практически полностью соответствует его исходному количеству в образце; осадок представляет собой преимущественно фазу U₃Si₂, который предлагается направлять на переработку согласно технологическому регламенту, принятому на заводе РТ-1.

Оценивая возможность применения операции щелочного растворения в технологической схеме переработки дисперсионного ОЯТ, необходимо учитывать тот факт, что образующиеся в ходе данного процесса алюминийсодержащие растворы представляют собой радиоактивные отходы (РАО), подлежащие остекловыванию. Учитывая типичный состав алюмофосфатного стекла, использующегося при иммобилизации РАО (24 % Al₂O₃, 24 % Na₂O, 52 % P₂O₅), для утилизации алюминия потребуется 7,34 м³/т ОЯТ алюмофосфатного стекла (РАО 3-го класса). Более серьезную проблему представляет утилизация натрия, масса которого составляет 9,6 т/т ОЯТ. Направление такого количества натрия на остекловывание приведет к образованию более 20 м³/т ОЯТ алюмофосфатного

стекла (РАО 3-го класса). С целью сокращения объемов образующихся РАО целесообразно в дальнейшем рассмотреть варианты регенерации щелочных растворов в схеме переработки уран-силицидного ОЯТ с оболочками из алюминиевого сплава.

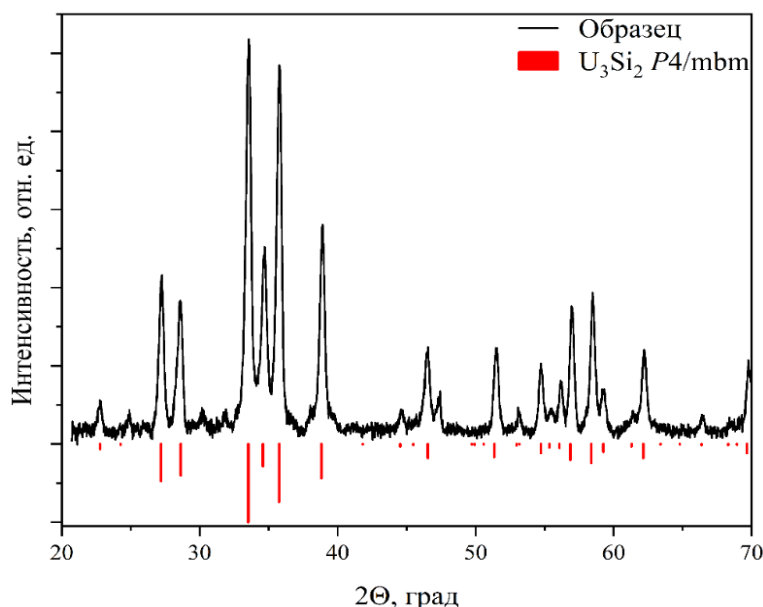


Рис. 3. Дифрактограмма осадка, полученного при растворении образца второй серии экспериментов в NaOH + NaNO₃. Линии соответствуют карточке U₃Si₂ 01-075-1941 [6]

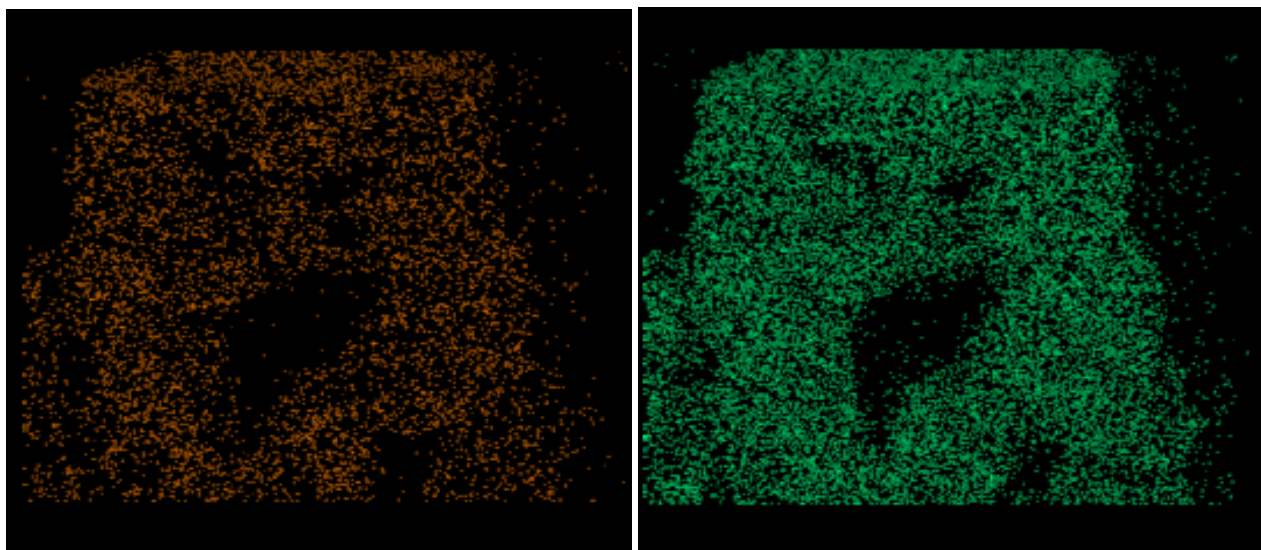


Рис. 4. Картированные ЭДС-спектры осадка, полученного после щелочного растворения

Выводы

Показана принципиальная возможность применения операции щелочного растворения для эффективного удаления алюминийсодержащих матриц дисперсионного ОЯТ на примере твэлов реакторов типа ИРТ-М производства ПАО «НЗХК». Рекомендовано проводить процесс при температуре ~ 100 °С в течение 1,5 ч. При соблюдении указанных условий подтверждаются данные о низкой растворимости U₃Si₂ в растворах NaOH и о возможности минимизации выделения

водорода в ходе проведения процесса. Дана оценка распределения целевых элементов по потокам — доли U, Si и Al, перешедшие в раствор, составляют 0,2, 7,66 и 99,99 масс. % соответственно. Приведены рекомендации относительно дальнейшего обращения с образующимися потоками.

Список источников

1. Алексеев С. В., Зайцев В. А., Толстоухов С. С. Дисперсионное ядерное топливо. М.: Техносфера, 2015. 248 с.
2. Рязанцев Е. П. К 50-летию ИРТ (история создания и развития) // Атомная энергия. 2008. Т. 104. С. 359–368.
3. Определение скорости воды в зазорах ТВС ИРТ-3М, -4М / В. А. Насонов, Е. П. Рязанцев, А. В. Талиев, А. Ф. Яшин // Атомная энергия. 2011. Т. 110. С. 317–321.
4. Волков В. Г. Обращение с отработавшим ядерным топливом исследовательских реакторов РНЦ «Курчатовский институт» // Атомная энергия. 2009. Т. 106. С. 99–105.
5. Rice R. W., Sarode D. V. Mercury-Catalyzed Dissolution of Aluminum in Nitric Acid // Industrial & Engineering Chemistry Research. 2001. № 40. P. 1872–1878.
6. Allar B. Solubilities of actinides in neutral or basic solutions // Proceedings of the Actinides-1981 Conference. California, USA, 10–15 September 1981. P. 553.
7. Delegard C.H. Solubility of $\text{PuO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ in Alkaline Hanford High-Level Waste Solution // Radiochimica Acta. 1987. Vol. 41. P. 11–21.
8. Тананаев И. Г. О формах существования нептуния(V) в растворах тетраалкиламмония // Радиохимия. 1994. Т. 36. С. 15–18.
9. Neck V., Kim J. I., Kanellakopulos B. Solubility and Hydrolysis Behaviour of Neptunium(V) // Radiochimica Acta. 1992. Vol. 56. P. 25–30.
10. Васильков И. В., Шадрин А. Ю. Совершенствование технологии извлечения гранул из сплава U-9%Mo из дисперсионных композиций на основе алюминия и алюминиевых сплавов // Атомная энергия. 2019. Т. 127. С. 76–81.
11. Перелыгин И. А., Кочетов Н. М. Пожаро- и взрывоопасность аммиачных объектов // Безопасность труда в промышленности. 2012. № 11. С. 67–72.
12. Schweizer E. Das Kupferoxyd-Ammoniak, ein Auflösungsmittel für die Pflanzenfaser // Journal für praktische Chemie. 1857. Bd. 72. S. 109–111.

References

1. Alekseev S. V., Zajcev V. A., Tolstouhov S. S. Dispersionnoe yadernoe toplivo [Dispersion nuclear fuel]. Moscow, Tekhnosfera, 2015, 248 p (In Russ.).
2. Ryazancev E. P. K 50-letiyu IRT (istoriya sozdaniya i razvitiya) [To the 50th anniversary of IRT reactors (history of creation and development)]. *Atomnaya energiya* [Atomic Energy], 2008, Vol. 104, pp. 359–368 (In Russ.).
3. Nasonov V. A., Ryazancev E. P., Taliev A. V., Yashin A. F. Opredelenie skorosti vody v zazorah TVS IRT-3M, -4M [Determination of water velocity in gaps of fuel assemblies IRT-3M, -4M]. *Atomnaya energiya* [Atomic Energy], 2011, Vol. 110, pp. 317–321 (In Russ.).
4. Volkov V. G. Obrashchenie s otrabotavshim yadernym toplivom issledovatel'skih reaktorov RNC «Kurchatovskij institut» [Handling of spent nuclear fuel from research reactors of the Russian Scientific Center “Kurchatov Institute”]. *Atomnaya energiya* [Atomic Energy], 2009, Vol. 106, pp. 99–105 (In Russ.).
5. Rice R. W., Sarode D. V. Mercury-Catalyzed Dissolution of Aluminum in Nitric Acid. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2001, No. 40, pp. 1872–1878.
6. Allar B. Solubilities of actinides in neutral or basic solutions. *Proceedings of the Actinides-1981 Conference*, California, USA, 10–15 September 1981, pp. 553.
7. Delegard C. H. Solubility of $\text{PuO}_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ in Alkaline Hanford High-Level Waste Solution. *Radiochimica Acta*, 1987, Vol. 41, pp. 11–21.
8. Tananaev I. G. O formah sushchestvovaniya neptuniya(V) v rastvorah tetraalkilammoniya [On the forms of existence of neptunium(V) in tetraalkylammonium solutions]. *Radiohimiya* [Radiochemistry], 1994, Vol. 36, pp. 15–18 (In Russ.).
9. Neck V., Kim J. I., Kanellakopulos B. Solubility and Hydrolysis Behaviour of Neptunium(V). *Radiochimica Acta*, 1992, Vol. 56, pp. 25–30.
10. Vasil'kov I. V., Shadrin A. Yu. Sovershenstvovanie tekhnologii izvlecheniya granul iz splava U-9%Mo iz dispersionnykh kompozitsiy na osnove alyuminiya i alyuminievykh splavov [Improving the technology of extracting granules from the alloy U-9%Mo from dispersion compositions based on aluminum and aluminum alloys]. *Atomnaya energiya* [Atomic Energy], 2019, Vol. 127, pp. 76–81 (In Russ.).

11. Perelygin I. A., Kochetov N. M. Pozharo- i vzryvoopasnost' ammiachnyh ob"ektov [Fire and explosion hazard of ammonia facilities]. *Bezopasnost' truda v promyshlennosti* [Occupational safety in industry], 2012, No. 11, pp. 67–72 (In Russ.).
12. Schweizer E. Das Kupferoxyd-Ammoniak, ein Auflösungsmittel für die Pflanzenfaser. *Journal für praktische Chemie*, 1857, Bd. 72, pp. 109–111.

Информация об авторах

А. Г. Коптяева — аспирант, инженер-технолог;

С. В. Артоболевский — аспирант, младший научный сотрудник;

Л. Н. Подрезова — кандидат технических наук, начальник отдела;

А. В. Баркова — студент специалитета, стажер;

К. И. Линник — студент специалитета.

Information about the authors

A. G. Koptyaeva — Graduate Student, Process Engineer;

S. V. Artobolevskii — Graduate Student, Junior Researcher;

L. N. Podrezova — PhD (Technology), Head of Department;

A. V. Barkova — Specialist degree Student, Intern;

K. I. Linnik — Specialist degree Student.

Статья поступила в редакцию 22.06.2025; одобрена после рецензирования 25.08.2025; принята к публикации 27.08.2025.

The article was submitted 22.06.2025; approved after reviewing 25.08.2025; accepted for publication 27.08.2025.