

УДК 621.039.54

## ОТРАБОТКА ТЕХНОЛОГИИ ЭЛЕКТРОХИМИЧЕСКОГО РАЗДЕЛЕНИЯ ТОПЛИВНОГО ЭЛЕМЕНТА ВТГР

<sup>1)</sup> Дюсамбаев Д.С., <sup>1)</sup> Гизатулин Ш.Х., <sup>1)</sup> Шаймерденов А.А.,  
<sup>1)</sup> Сильнягин П.П., <sup>1)</sup> Аханов А.М., <sup>1)</sup> Буртебаев Н.Т., <sup>2)</sup> Уета Ш.

<sup>1)</sup> *Институт ядерной физики, Алматы, Казахстан*  
<sup>2)</sup> *Japan Atomic Energy Agency, Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki, Japan*

Высокотемпературный газоохлаждаемый реактор (ВТГР) на две трети состоит из графита. Графит является замедлителем и отражателем нейтронов, а также основным конструкционным материалом активной зоны, что позволяет эксплуатировать реактор при высоких температурах. Графит был выбран из-за его хороших ядерно-физических и теплофизических свойств. Ядерное топливо представляет собой сферические микротвэлы, которые спрессованы в графитовом топливном элементе, из которых далее собираются ТВС. В Институте ядерной физики Республики Казахстан проводятся работы по квалификации облученного топлива ВТГР. Для исследования свойств облученного топлива ВТГР необходимо извлечь микротвэлы из графитовой матрицы. В работе приведены результаты экспериментов по электрохимическому разделению графита и необлученного топлива ВТГР.

**Ключевые слова:** электрохимическое разделение, топливный элемент, ВТГР, ВВР-К.

### ВВЕДЕНИЕ

Ядерные установки (ЯУ) имеют потенциальную опасность для населения и окружающей среды, как и любая другая установка, поэтому главной задачей разработчиков ЯУ является обеспечение их безопасной эксплуатации.



Рисунок 1. Блок-схема исследования облученных топливных элементов

Высокотемпературный газоохлаждаемый реактор (ВТГР) – это один из самых безопасных реакторов, в котором практически полностью исключена такая тяжелая авария, как плавление активной зоны. Важным аспектом также является экономичность реактора. Одним из способов улучшения экономичности является увеличение выгорания топлива с обязательным обеспечением целостности его оболочек, а, значит, и ядерной безопасности.

В РГП «Институт ядерной физики» Республики Казахстан (ИЯФ) совместно с Агентством по атомной энергии Японии проводятся работы по квалификации трехструктурного изотропного топлива реактора ВТГР [1, 2]. Этапы работ приведены на диаграмме (см. рисунок 1).

После извлечения из капсулы облученных топливных элементов (компактов) был проведен их визуальный осмотр с проверкой на изменение размеров (усадка). Следующий шаг – извлечение микротвэлов из графитовой матрицы. Для этой операции был выбран электрохимический метод разделения. Суть метода заключается в пропускании электрического тока через графитовую матрицу с целью ее разрушения.

### МЕТОДЫ

Электрохимический метод основан на пропускании постоянного тока через вещество. Для его реализации было разработано специальное устройство, которое позволяет работать с исследуемым радиоактивным веществом дистанционно в «горячих» камерах (см. рисунок 2). В основу конструкции этого устройства была взята модель, которая использовалась на материаловедческом реакторе JMTR в Японии [3–5]. Устройство было доработано и адаптировано для «горячей» камеры реактора ВВР-К.

Устройство, предназначенное для отделения микротвэлов от графитовой матрицы и выщелачивания урана из микротвэлов с поврежденными оболочками,

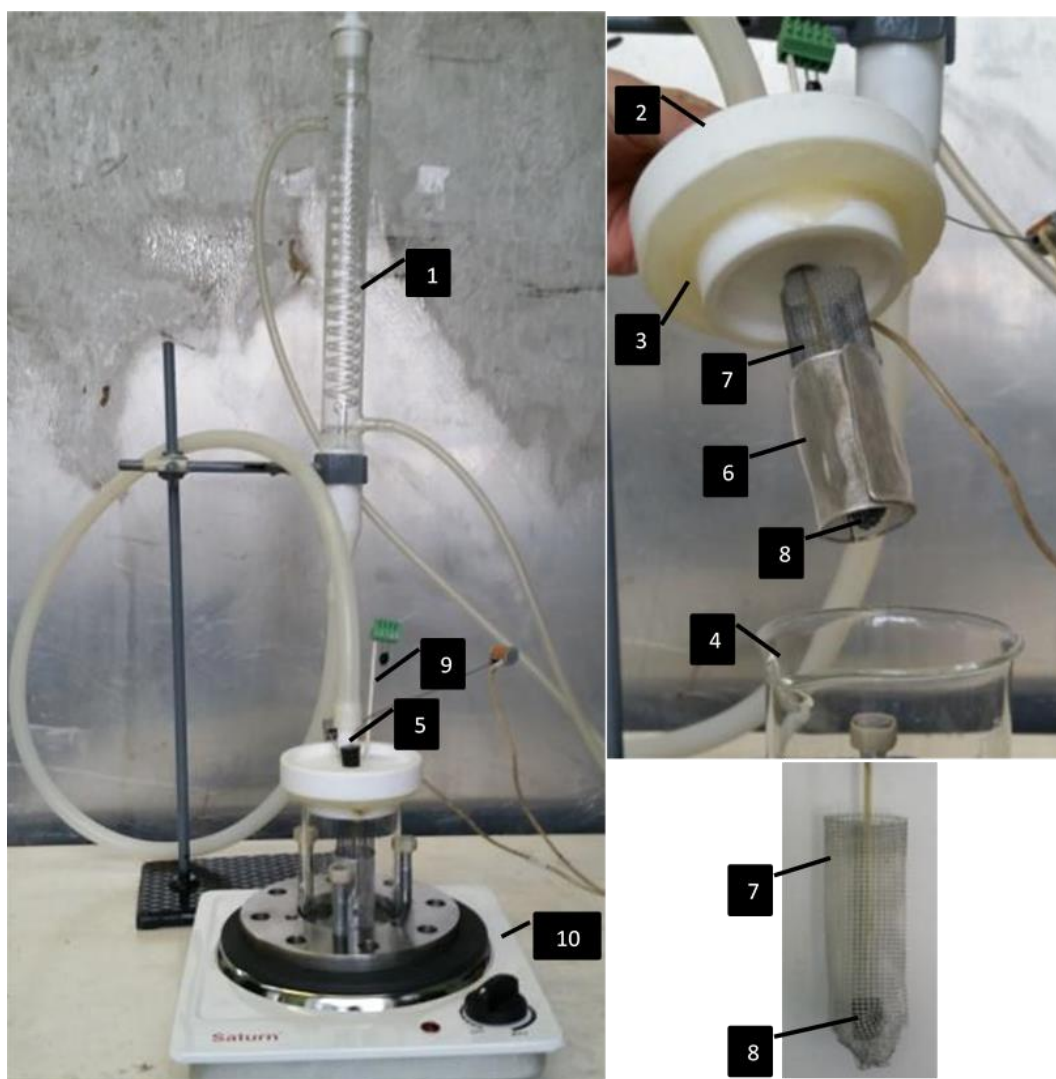
представляет собой стакан из жаропрочного стекла с герметичной крышкой из фторопласта. Стакан заполняется азотной кислотой, которая используется для выщелачивания, и устройство устанавливается на электрическую плиту. Топливный элемент размещается в нейлоновое сито и загружается в стакан. Сито предназначено для исключения короткого замыкания между электродами. Снаружи топливного элемента устанавливается платиновый катод, а в центральное отверстие элемента устанавливается анод. Напряжение на платиновые электроды подавалось от лабораторного стабилизатора ТЕС-13. Контроль температуры проводится с помощью кислотно-стойкой термопары (платинородиевая). Температура азотной кислоты регулировалась с помощью электрического

трансформатора. Для предотвращения выбросов радиоактивных паров кислоты из устройства на его крышке был установлен холодильник Аллина.

В экспериментах обрабатывались разные режимы электрохимического разделения: изменялись температура азотной кислоты, ток, подаваемый на анод и катод, а также длительность электрической диссоциации.

На первом этапе проводились эксперименты с образцами, изготовленными из реакторного графита марки АРВ. Образец полностью воспроизводил внешние размеры топливного элемента.

На втором этапе эксперименты проводились с необлученными топливными элементами.



1 - «холодильник»; 2 – крышка; 3 – прокладка; 4 - стеклянный сосуд; 5 – анод; 6 – катод; 7 - изолирующий экран; 8 - топливный элемент; 9 - платинородиевая термопара; 10 - электрическая плита

Рисунок 2. Устройство для электрохимического разделения топливного элемента

### РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЯ

Отработка технологии электрохимического разделения выполнена с имитаторами элементов, изготовленными из реакторного графита, и с необлученными топливными элементами реактора ВТГР

С графитовым имитатором электрическая диссоциация проведена в азотной кислоте с концентрацией 36 % и плотностью 1,22 г/см<sup>3</sup> (плотность кислоты измерялась с помощью ареометра при температуре 20 °С).

Первый эксперимент был проведен без нагрева кислоты. Температура кислоты была равна 18 °С. Напряжение между анодом и катодом составляло 3 В, а ток – 4 А. Внешний вид образца через час диссоциации показан на рисунке 3-б. Через два часа – на рисунке 3-в.

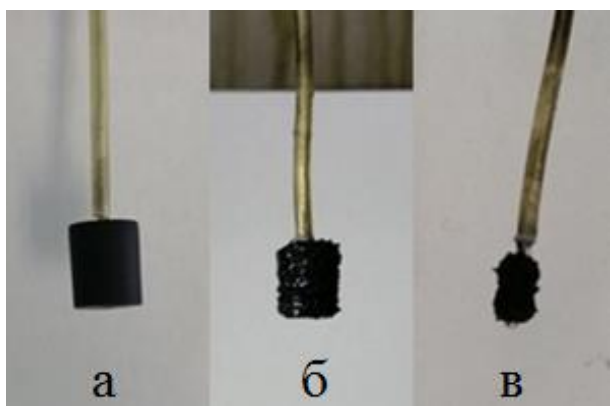


Рисунок 3. Первый эксперимент: (а) исходный образец; (б) образец через 60 мин диссоциации; (в) образец через 120 мин диссоциации

Во втором эксперименте азотную кислоту нагрели до 105 °С и при том же режиме провели диссоциацию. На электроды было подано напряжение 3 В и ток 3 А. Ток сразу начал увеличиваться, достигнув 4 А за 5 минут, в то время как стабилизатор ТЕС-13 автоматически переключился в режим стабилизации тока, поддерживая ток на уровне 4 А до конца эксперимента. После одного часа диссоциации образец почти полностью разрушился – см. рисунок 4-б.



Рисунок 4. Второй эксперимент: (а) исходный образец; (б) образец через 60 мин диссоциации

В третьем эксперименте с необлученным топливным элементом реактора ВТГР азотную кислоту нагрели до 103 °С. На электроды был подан ток 4 А. Вначале напряжение на электродах составляло 3,3 В. Через 6 минут напряжение снижается до 2,3 В, тогда как через 20 минут оно увеличивается до 3,25 В, а ток остается на уровне 4 А. Процесс электрической диссоциации длился 63 минуты.

При выключенном напряжении анод был извлечен из устройства для проверки состояния топливного элемента. На аноде не было элемента, то есть, электрическая диссоциация была полностью завершена. Далее было проведено кислотное выщелачивание образовавшихся микротрещин в течение 23 часов при 95 °С.

После выщелачивания была проведена фильтрация раствора через сито с размером ячейки 0,7×0,7 мм. В результате все частицы топлива и некоторое количество порошка графита остались на сите. Полученную смесь промыли струей обессоленной воды для очистки от графитового порошка. Внешний вид частиц топлива, подвергшихся воздействию этих операций, показан на рисунке 5. Из рисунка видно, что небольшая часть топливного образца не подвергалась диссоциации, оставаясь в виде двух фрагментов. Фрагменты содержат 12–15 частиц топлива. Прилипший графит наблюдается на поверхности некоторых частиц топлива.

Третий эксперимент выявил некоторые недостатки в конструкции устройства. Например, после электрической диссоциации и кислотного выщелачивания часть частиц топлива осталась в сетчатом сите, и их было невозможно извлечь с помощью манипулятора. Другим недостатком был плохой контроль центровки анода и топливного элемента в катод.

Вследствие чего сетчатый экран был заменен, и было сделано дополнительное устройство для центрирования анода. Затем было проведен четвертый эксперимент.

В четвертом эксперименте с необлученным топливным элементом азотную кислоту нагрели до 86 °С. Для достижения полной диссоциации элемента было принято решение снизить ток между электродами до 2 А и увеличить время диссоциации. На начальном этапе испытания напряжение на электроде составляло 2,0 В. Через 20 минут напряжение начало постепенно падать, достигнув 1,5 В через 45 минут. Затем напряжение начало расти, достигнув 2,0 В за 94 минуты при неизменном токе в 2 А. После этого напряжение оставалось неизменным. Процесс электрической диссоциации длился 212 минут.

Напряжение и ток на электродах в зависимости от времени показаны на рисунке 6. Анализ рисунка 6 показал, что уменьшение напряжения на электродах связано с началом разрушения топливного элемента, и оно обратно восстанавливается после полного разрушения топливного элемента.

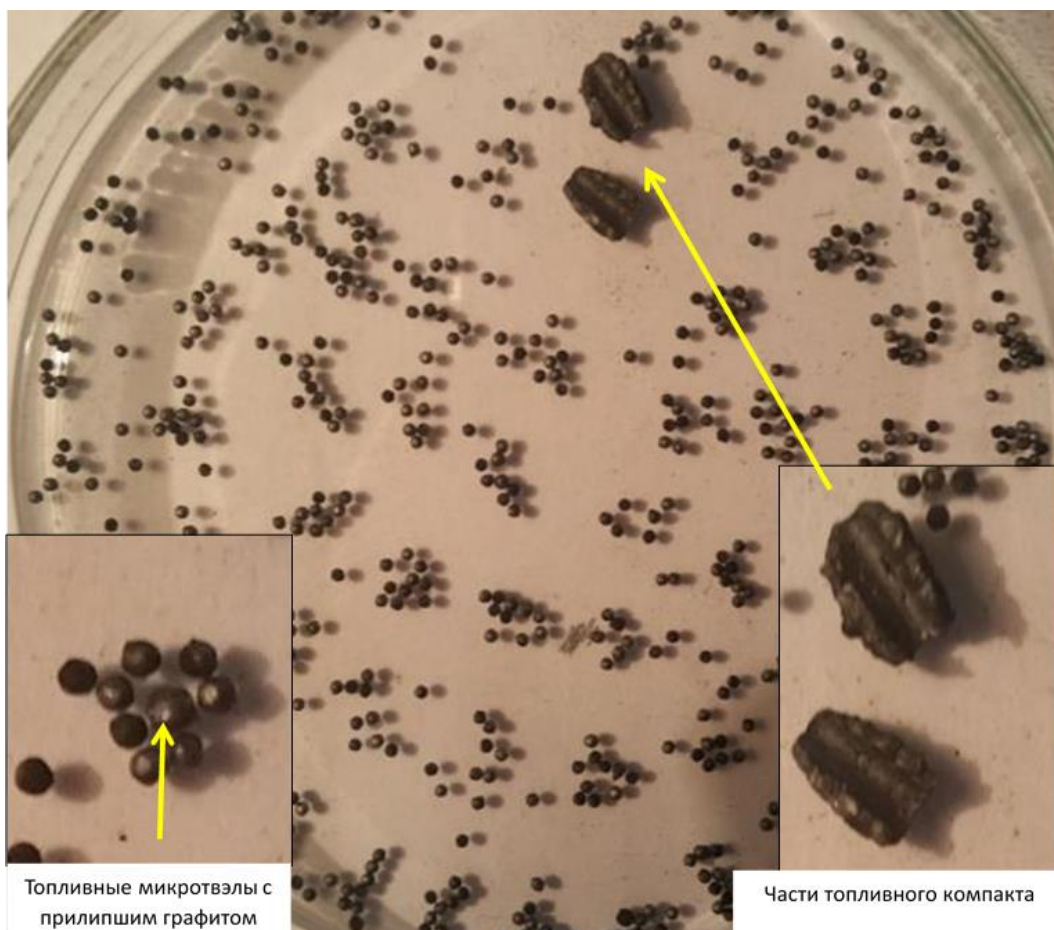


Рисунок 5. Итоги третьего эксперимента

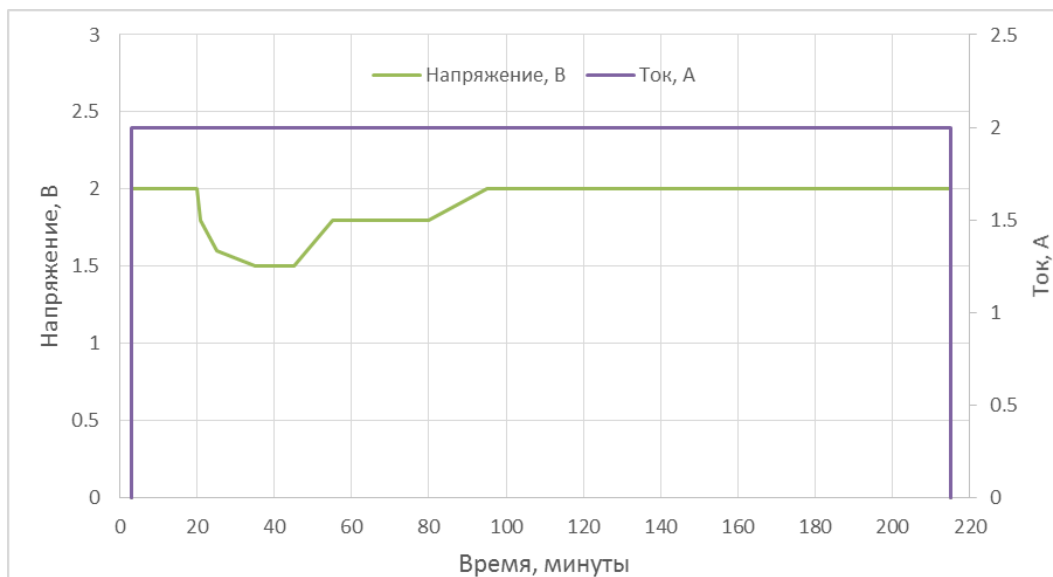


Рисунок 6. Четвертый эксперимент. Напряжение и ток на электродах как функции времени



После выключения напряжения анод был извлечен для проверки состояния топливного элемента. На аноде не было элемента, то есть, электрическая диссоциация завершена полностью (см. рисунки 7 и 8). Затем кислотное выщелачивание проводили при 90–92 °С в течение 24 часов. В дальнейшем были проведены процедуры, аналогичные эксперименту 3. Оставшиеся фрагменты элемента содержат от 5 до 8 микротвэлов.

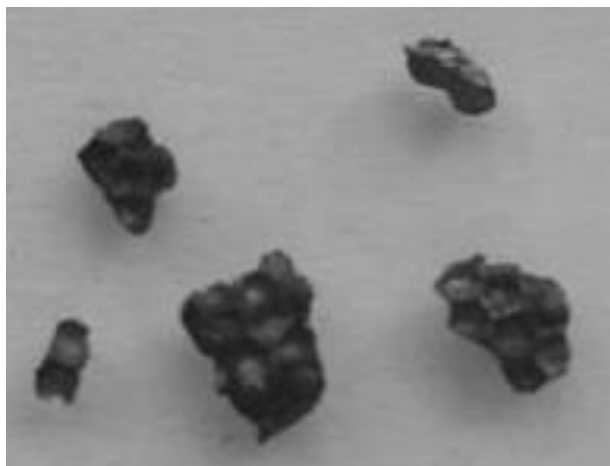


Рисунок 7. Фрагменты топливного элемента после четвертого эксперимента

В итоге из одного элемента были выделены около 500–600 микротвэлов.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработанное устройство доказало свою работоспособность. Операторы «горячих» камер отработали свои навыки работы с данным устройством.

В результате экспериментов был выбран оптимальный режим электрохимического разделения топливного элемента. Время диссоциации будет составлять 180 минут, а напряжение и ток, подаваемые на электрод, будут составлять, соответственно, 2 В и 2 А.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Ueta S. Irradiation test and post irradiation examination of the high burnup HTGR fuel / Shohei Ueta, Jun Aihara, Asset Shaimerdenov, Daulet Dyussambayev, Shamil Gizatulin, Petr Chakrov, Nariaki Sakaba // Proceeding of 8th International Topical Meeting on High Temperature Reactor Technology, November 6–10, 2016 Las Vegas, NV, USA. – pp. 246–252. – 2016.
2. Shaimerdenov A.A. Investigation of irradiated properties of extended burnup TRISO fuel / A.A. Shaimerdenov, Sh.Kh. Gizatulin, Ye.Kenzhin, D.S. Dyussambayev, S. Ueta, T. Shibata // Proceeding of International Conference on High Temperature Reactor Technology, October 8–10, 2018, Warsaw, Poland. – 2018.
3. Saito S. Design of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) / Shinzo Saito, Toshiyuki Tanaka, Yukio Sudo et al. // JAERI-1332. Japan Atomic Energy Research Institute, Japan (1994). – pp. 1–247. – 1994.
4. Sawa K. Investigation of irradiation behavior of SiC-coated fuel particle at extended burnup / K. Sawa, T. Tobita // Nucl. Technol. 142 (2003). – pp. 250–259. – 2003.
5. Ueta S. Preliminary Test Results for Post Irradiation Examination on the HTTR Fuel / S. Ueta, M. Umeda, K. Sawa, S. Sozawa, M. Shimizu, Y. Ishigaki, H. Obata // J. Nucl. Sci. Technol. 44 (2007). – pp. 1081–1088. – 2007.

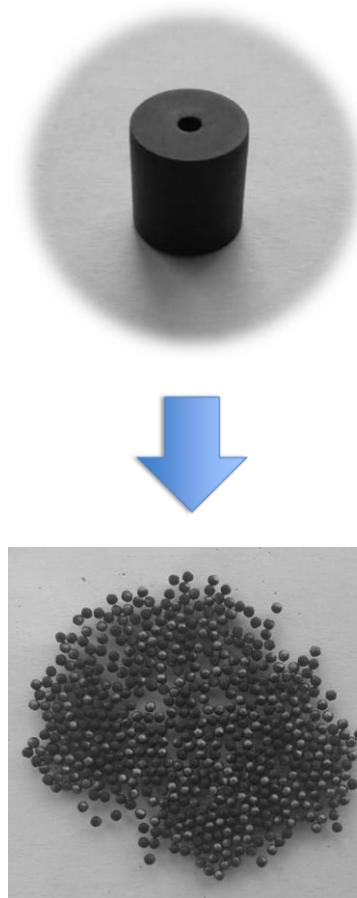


Рисунок 8. Необлученный топливный элемент и выделенные из него микротвэлы

В дальнейшем запланированы разделение и выщелачивание высокоактивных облученных топливных элементов ВТГР.

#### БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают огромную благодарность экспериментальной группе, участвовавшей в проведении данных работ.

**ЖТГР-ДЫҢ ОТЫН ЭЛЕМЕНТІНІҢ ЭЛЕКТРОХИМИЯЛЫҚ ЖОЛМЕН  
БӨЛУДІҢ ТЕХНОЛОГИЯСЫН ДАМУ**

<sup>1)</sup> Д.С. Дюсамбаев, <sup>1)</sup> Ш.Х. Гизатулин, <sup>1)</sup> А.А. Шаймерденов,  
<sup>1)</sup> П.П. Сильнягин, <sup>1)</sup> А.М. Аханов, <sup>1)</sup> Н.Т. Буртебаев, <sup>2)</sup> Ш. Уета

<sup>1)</sup> *Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан*  
<sup>2)</sup> *Жапония Атом Энергиясы агенттігі, Оарай ауылы, Хигасиибараки ауданы,  
Ибараки префектурасы, Жапония*

Жоғары температуралы газбен салқындатылатын реактордың үштен екісі (ЖТГР) графиттен тұрады. Графит нейтрондардың баяулатқышы және шағылдырғышы, сондай-ақ белсенді аймақтың негізгі құрылымдық материалы болып табылады, сондықтан реакторды жоғары температурада пайдалануға мүмкіндік береді. Графит оның жақсы физикалық-ядролық және термофизикалық қасиеттері үшін таңдап алынды. Ядролық отын - сфералық микро жылу шығаратын элемент, ол графит жинағына кіреді, одан кейін отын жинамалары жиналады. Қазақстан Республикасының Ядролық физика институты ЖТГР-дың сәулелендірілген отынның сапасын бағалаудың процесі бойынша жұмыс жүргізеді. Сәулелендірілген ЖТГР отынның қасиеттерін зерттеу үшін графит матрицасынан микро жылу шығаратын элементті алу керек. Бұл жұмыста графит пен сәулелендірілмеген отынның ЖТГР электрохимиялық бөлінуіндегі эксперименттердің нәтижелері келтірілген.

**Түйінді сөздер:** *электрохимиялық бөліну, отын элементі, ЖТГР, ССР-К.*

**DEVELOPMENT OF TECHNOLOGY OF ELECTROCHEMICAL SEPARATION  
OF FUEL ELEMENT OF HTGR**

<sup>1)</sup> D.S. Dyussambayev, <sup>1)</sup> Sh.Kh. Gizatulin, <sup>1)</sup> A.A. Shaimerdenov,  
<sup>1)</sup> P.P. Silnyagin, <sup>1)</sup> A.M. Akhanov, <sup>1)</sup> N. Burtevayev, <sup>2)</sup> Sh. Ueta

<sup>1)</sup> *Institute of Nuclear Physics, Almaty, Kazakhstan*  
<sup>2)</sup> *Japan Atomic Energy Agency, Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki, Japan*

High-temperature gas-cooled reactor (HTGR) by two-thirds consists of graphite. Graphite is a moderator and reflector of neutrons, as well as the main structural material of the active zone, which allows operating the reactor at high temperatures. Graphite is moderator and neutron reflector, and the main structural material of the core, allowing the reactor to operate at high temperatures. Nuclear fuel is a spherical microfuel, which are compressed into a graphite compact, from which fuel assemblies are then assembled. The Institute of Nuclear Physics of the Republic of Kazakhstan is working on the qualification of irradiated fuel HTGR. To study the properties of the irradiated fuel HTGR, it is necessary to extract microfuel from the graphite matrix. The paper presents the results of experiments on the electrochemical separation of graphite and unirradiated fuel HTGR.

**Keywords:** *electrochemical separation, fuel element, HTGR, WWR-K.*