

**ПРОБЛЕМЫ ЯДЕРНОЙ, РАДИАЦИОННОЙ
И ЭКОЛОГИЧЕСКОЙ БЕЗОПАСНОСТИ**

УДК 533.9 (075.8)

**ПЛАЗМЕННАЯ УТИЛИЗАЦИЯ И ИММОБИЛИЗАЦИЯ ОТХОДОВ
ПЕРЕРАБОТКИ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА**

© 2014 г. А.Г. Каренгин, О.Д. Подгорная, Е.Э. Шлотгауэр

*Национальный исследовательский Томский политехнический институт,
г. Томск, Томская область*

В данной работе рассмотрен вопрос плазменной утилизации и иммобилизации отходов переработки отработавшего ядерного топлива. Целью данной работы является определение и оценка процесса утилизации и иммобилизации отходов переработки отработавшего ядерного топлива с применением плазменного оборудования в порошки оксидов металлов для дальнейшего хранения и использования. На основе термодинамического моделирования и экспериментальных исследований показана возможность такой переработки. Результаты проведенных исследований могут быть использованы для разработки плазменной технологии и оборудования для утилизации и обезвреживания отходов переработки отработавшего ядерного топлива.

Ключевые слова: плазма, утилизация, иммобилизация, магнитная сепарация.

Поступила в редакцию 30.05.2014 г.

В настоящее время одной из проблем ядерной энергетики является обращение с радиоактивными отходами (РАО). Эта проблема широко обсуждается в правительственных, научных и общественных кругах многих стран в связи с необходимостью обеспечения безопасной жизни на Земле в условиях интенсивного развития атомной энергетики [1].

Целью переработки ОЯТ является извлечение делящихся нуклидов, образовавшихся при работе реактора АЭС. Кроме того, переработка ОЯТ является промежуточным этапом на пути удаления высокоактивных радионуклидов из сферы деятельности человека. Выделение из ОЯТ долгоживущих радионуклидов позволяет сделать продукты переработки менее опасными и заметно сократить их объем.

Концепция замкнутого ядерного топливного цикла предусматривает утилизацию всех видов радиоактивных отходов с получением отвержденных продуктов, пригодных для длительного хранения. Основная масса продуктов деления (более 99%) остается в водной фазе, которую направляют в хранилище высокоактивных жидких радиоактивных отходов (отходов переработки ОЯТ) [3]. В этих растворах присутствуют различные нерадиоактивные продукты распада, такие как молибден и РЗЭ, а также конструкционные материалы (цирконий, железо, никель, хром, марганец).

Существенное снижение энергозатрат на процесс утилизации отходов переработки ОЯТ может быть достигнуто при их плазменной переработке в виде оптимальных по составу водно-органических композиций (ВОК), имеющих высокую взаимную растворимость [5-8,11]. Как показали опыты по сжиганию жидких горючих отходов различных органических веществ, достаточное и полное их сгорание в камерах с небольшими потерями тепла в окружающую среду наблюдается у отходов, имеющих адиабатическую температуру горения не менее 1200 °С [12]:

$$t_{ад} = \frac{Q_n^p + C_{омх} \cdot t_{омх} + \alpha \cdot v^0 \cdot C_{ок} \cdot t_{ок}}{v \cdot C + \frac{W \cdot C_{H_2O}}{100} + \frac{A \cdot C_A}{100}},$$

На рисунке 1 показано влияние содержания отходов переработки ОЯТ на адиабатическую температуру горения различных по составу ВОК на основе этилового спирта (а) и ацетона (б).

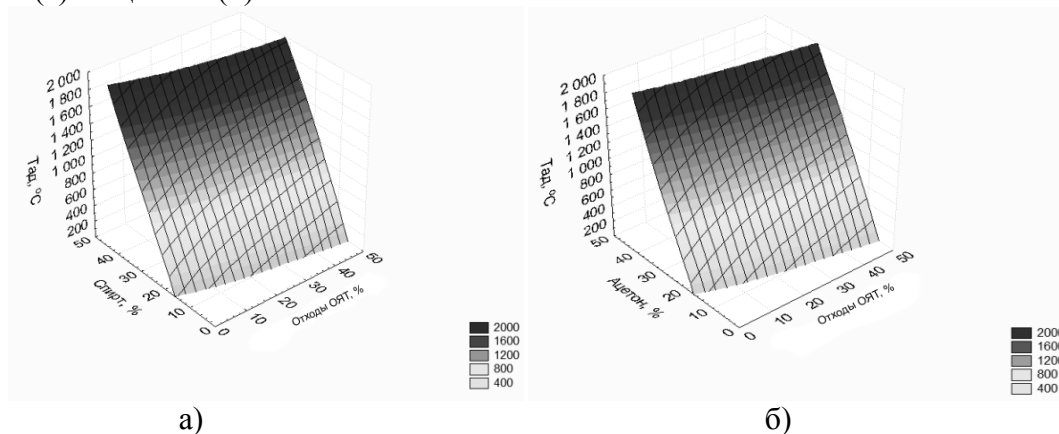


Рис. 1. Влияние содержания отходов переработки ОЯТ на адиабатическую температуру горения ВОК на основе этилового спирта (а) и ацетона (б)

Полученные зависимости позволяют определять оптимальные по составу водно-органические композиции, имеющие адиабатическую температуру горения ≈ 1200 °C и обеспечивающие эффективную и экологически безопасную утилизацию этих отходов. Так, массовая доля этилового спирта и ацетона для оптимальных по составу водно-органических композиций на основе отходов переработки ОЯТ составляет $\approx 35\%$.

На рисунке 2 представлены характерные равновесные составы основных конденсированных продуктов плазменной утилизации в воздушной плазме отходов переработки ОЯТ в виде оптимальных по составу водно-органических композиций на основе этилового спирта при массовой доле воздушного плазменного теплоносителя 65% (а) и 70% (б).

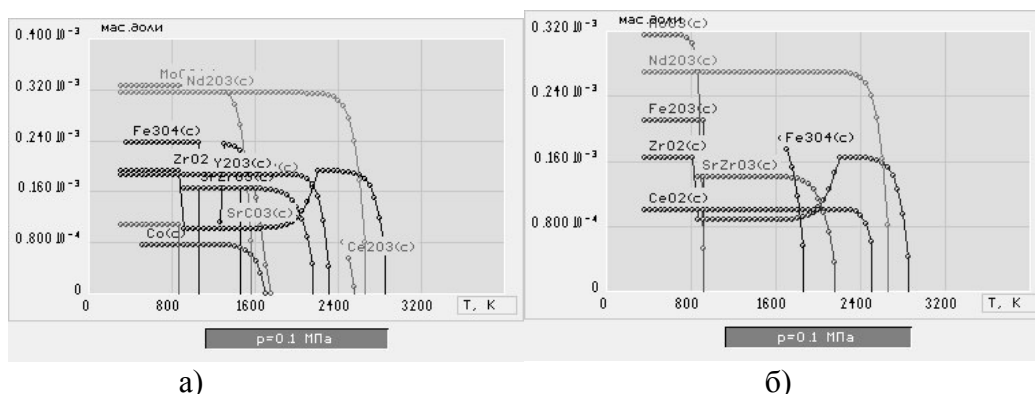


Рис. 2. Равновесный состав конденсированных продуктов плазменной утилизации отходов переработки ОЯТ в воздушной плазме

При массовой доле воздушного плазменного теплоносителя 65% (а) плазменная утилизация отходов переработки ОЯТ в виде оптимальной по составу водно-

органической композиции приводит к образованию в конденсированной фазе оксидов различных металлов. При этом следует отметить, что при температурах до 1200 К образуется в конденсированной фазе магнитная окись железа $Fe_3O_4(c)$. Повышение массовой доли воздушного плазменного теплоносителя с 65% до 70% (б) приводит к образованию в конденсированной фазе немагнитной окиси железа $Fe_2O_3(c)$.

С учётом полученных результатов могут быть рекомендованы для процесса прямой плазменной утилизации отходов переработки ОЯТ в воздушной плазме следующие оптимальные режимы:

- интервал рабочих температур (1200±100) К;
- состав ВОК (65% отходы переработки ОЯТ : 35% спирт);
- массовое отношение фаз (65% воздух : 35% ВОК).

На рисунке 3 представлена схема плазменного стенда «Плазменный модуль на базе высокочастотного генератора ВЧГ8-60/13-01», на котором проведены исследования процесса плазменной утилизации отходов переработки ОЯТ в воздушной плазме ВЧФ-разряда в виде различных по составу ВОК.

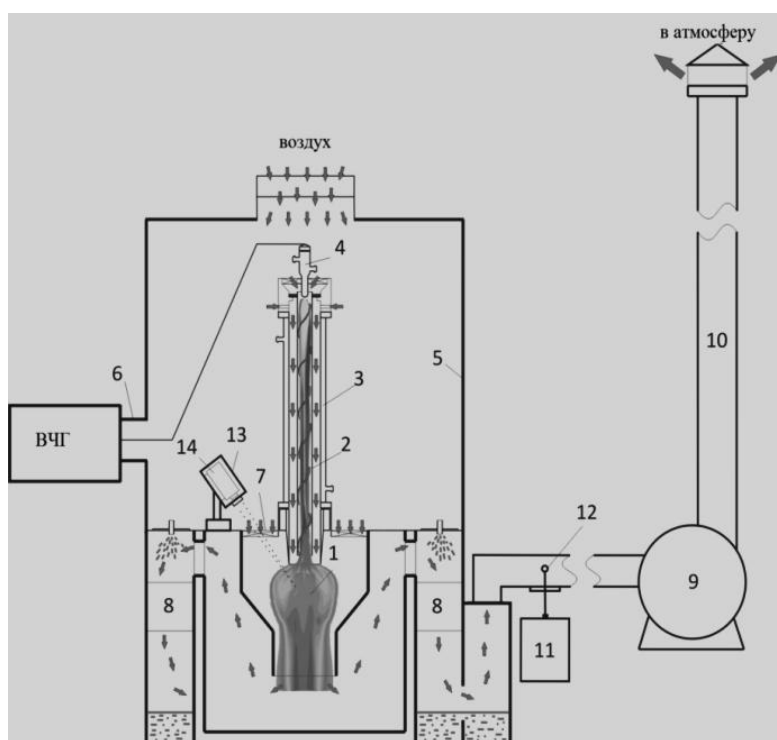


Рис. 3. Схема лабораторного плазменного стенда «Плазменный модуль на базе высокочастотного генератора ВЧГ8-60/13-01»

1 – диспергатор, 2 – ВЧФ-разряд, 3 – ВЧФ-плазмотрон; 4 – медный электрод, 5 – корпус; 6 – коаксиальный вывод; 7 – импеллер реактора; 8 – узел «мокрой» очистки отходящих газов; 9 – вытяжной вентилятор (ВР 12-26, №4), 10 – воздуховод, 11 – газоанализатор «Quintox» КМ 9106, 12 – пробоотборник; 13 – защитный кожух пирометра, 14 – пирометр IPE 140/45, ВЧГ – высокочастотный генератор ВЧГ8-60/13-01.

Образующаяся в реакторе в процессе прямой плазменной утилизации отходов переработки ОЯТ пыле-парогазовая смесь проходит через центробежно-барботажные аппараты узла мокрой очистки отходящих газов 8 (рис. 3) и образует водные суспензии из дисперсных твердых продуктов, включающих магнитную окись железа. Использование гравитационного осаждения является технологически самым простым и дешевым способом отделения порошков из водных суспензий, но его использование требует много времени для их осаждения, что неприемлемо в промышленных условиях.

Представляет интерес применение магнитного осаждения для извлечения из водных суспензий образующихся дисперсных твердых продуктов, включающих магнитную окись железа.

На рисунке 4 представлены характерные результаты исследований гравитационного и совместного гравитационного и магнитного осаждения из водных суспензий дисперсных твердых продуктов плазменной утилизации отходов переработки ОЯТ, включающих магнитную окись железа (исходная концентрация 20 г/л).

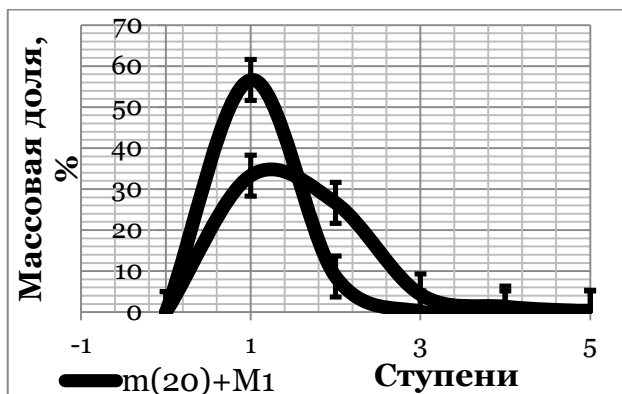


Рис. 4. Сравнительная эффективность гравитационного и совместного гравитационного и магнитного осаждения из водных суспензий дисперсных твердых продуктов, включающих магнитную окись железа

Для осаждения порошков из водных суспензий использовались магнит М1 (50x30x10 мм) из сплава Fe-Nd-B, имеющий магнитную индукцию 1,2 Тл. Из сравнительного анализа эффективности гравитационного и магнитного осаждения следует, что при равном исходном содержании в водной суспензии железосодержащих порошков (20 г/л), применение магнитного осаждения значительно увеличивает извлечение из водной суспензии порошков, включающих магнитную окись железа, по сравнению с обычным гравитационным осаждением. Это указывает на возможность применения магнитных сепараторов для эффективного извлечения из водных суспензий твердых продуктов плазменной утилизации отходов переработки ОЯТ.

Далее был изучен процесс иммобилизации твердых дисперсных продуктов, полученных при плазменной утилизации отходов переработки ОЯТ. На рисунке 5 представлены характерные равновесные составы конденсированных продуктов плазменной иммобилизации модельных отходов переработки ОЯТ в расплавах калия (а) и натрия (б) в условиях воздушной плазмы.

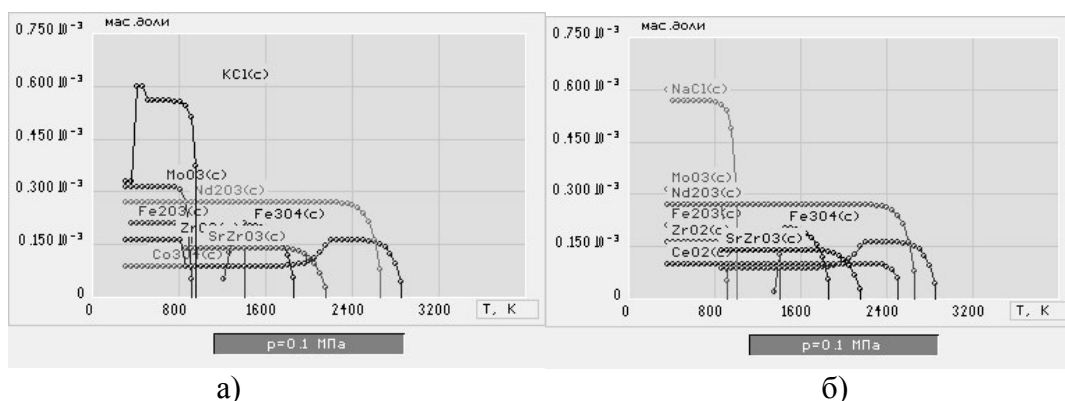


Рис. 5. Равновесный состав конденсированных продуктов плазменной иммобилизации отходов переработки ОЯТ в расплавах хлорида калия (а) и натрия (б) в воздушной плазме

Из анализа равновесных составов следует, что плазменная иммобилизация отходов переработки ОЯТ в воздушной плазме приводит при температурах $1050 \div 1100 \text{K}$ к образованию в конденсированной фазе простых и сложных оксидов металлов (MoO_3 , Nd_2O_3 , Fe_2O_3 , CeO_2 , ZrO_2 , SrZrO_3 , Y_2O_3 и др.) и хлорида калия (а) или хлорида натрия (б) в виде расплава. Поэтому представляет интерес исследование процесса плазменной иммобилизации этих твердых дисперсных продуктов в расплавах хлоридов металлов, стойких к радиационному облучению. На рисунке 6 представлена схема лабораторного плазменного стенда.

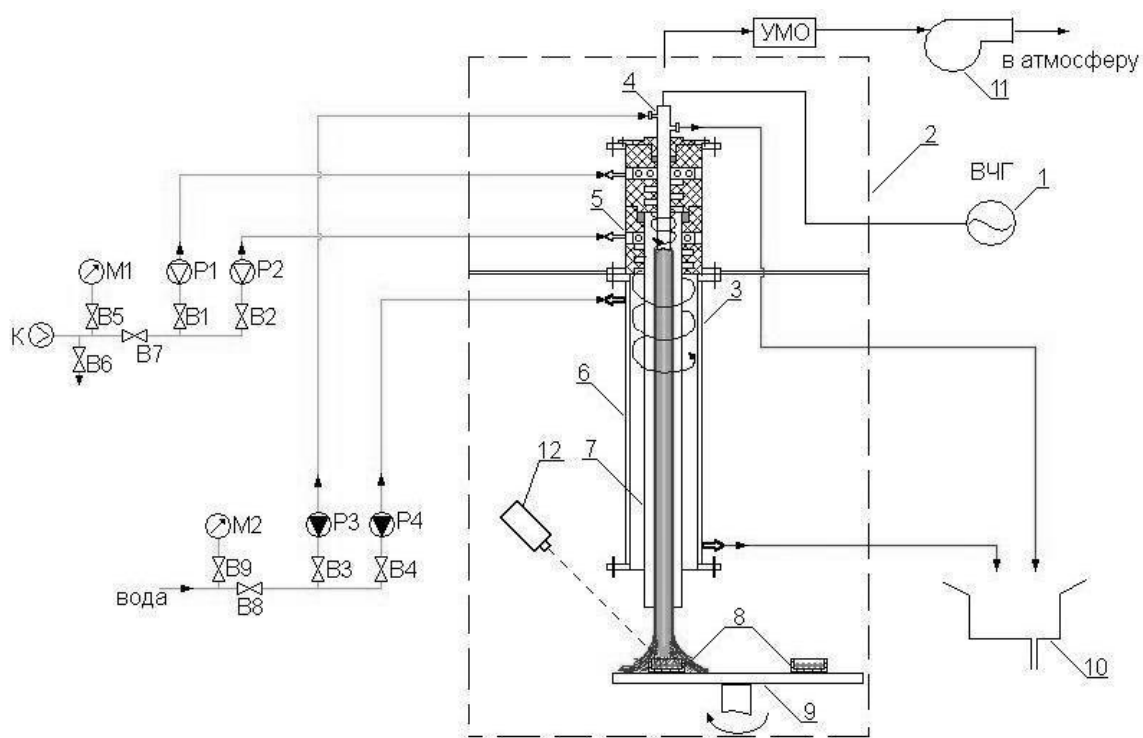


Рис. 6. Схема лабораторного плазменного стенда «Высокочастотный факельный плазматрон на базе генератора ВЧГ8-60/13»:

1 – высокочастотный генератор ВЧГ8-60/13; 2 – технологический блок; 3 – ВЧФ-плазматрон; 4 – водоохлаждаемый медный электрод; 5 – узел ввода плазмообразующего и охлаждающего газа; 6 – водоохлаждаемый корпус плазматрона; 7 – кварцевая разрядная камера; 8 – тигель; 9 – подставка; 10 – слив охлаждающей воды; 11 – вытяжной вентилятор; 12 – пирометр инфракрасный М90L; УМО – узел мокрой отчистки; К – компрессор; М1, М2 – манометры; Р1-Р4 – ротаметры; В1-В9 – вентили.

На высокочастотном факельном плазматроне были проведены исследования процесса плазменной иммобилизации твердых дисперсных продуктов, полученных при плазменной утилизации отходов переработки ОЯТ. Из полученных высокодисперсных порошков простых и сложных оксидов металлов в процессе плазменной утилизации оптимальных по составу диспергированных ВОК на основе модельных отходов переработки ОЯТ и хлоридов калия (или натрия) готовились пробы различного состава. Полученные пробы массой 100 г помещались в тигель 8 из кварцевого стекла ($\text{Ø}=90 \text{ мм}$ и $h=120 \text{ мм}$), основной объём которого до $h=90 \text{ мм}$ был заполнен асбестом и имел углубление по центру. Далее тигель помещался на подставку 9 под воздушную плазменную струю (рис.7), генерируемую ВЧФ-плазматроном для осуществления процесса плазменной иммобилизации.

В процессе опытов с помощью переносного пирометра определялась температура нагретой поверхности образующегося расплава образцов.

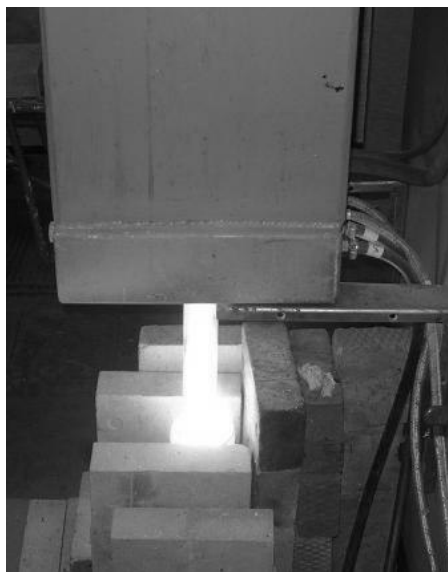


Рис. 7. Плазменная иммобилизация модельных отходов переработки ОЯТ под воздушной плазменной струей ВЧФ-плазмотрона

В таблице 1 представлены характерные результаты плазменной иммобилизации твердых дисперсных продуктов в расплаве хлорида калия после плазменной утилизации модельных отходов переработки отработавшего ядерного топлива в расплаве хлорида калия под воздушной плазменной струей, генерируемой ВЧФ-плазмотроном.

Таблица 1. – Режимы плазменной иммобилизации модельных отходов переработки ОЯТ под воздушной плазменной струей ВЧФ-разряда

№ оп.	$T_{стр}, K$	$T_{про}, ^\circ C$	$m_{про}^H, Г$	$m_{про}^K, Г$	$t_{оп}, МИН$
1	3500	850	100,0	18,4	5
2	3500	860	100,0	14,6	10
3	3500	870	100,0	9,8	15
4	3500	900	100,0	4,7	20

При температуре поверхности образца менее $750\ ^\circ C$ процесс плазменной иммобилизации модельных отходов переработки ОЯТ протекает с низкой интенсивностью. Дальнейшее повышение мощности воздушной плазменной струи приводит к повышению температуры нагретой поверхности образца до $850\div 900\ ^\circ C$ и процесс плазменной иммобилизации протекает с высокой интенсивностью. Из анализа полученных результатов следует, что за первые 5 мин происходит испарение и унос более 80% от исходной массы пробы. Через 10 мин масса расплава хлорида калия снижается до 14,6 г (потери 85,4%), через 15 мин – до 9,8 г (потери 90,2%), через 20 мин – до 4,7 г (потери 95,3%). На рисунке 10 представлены характерные образцы продуктов плазменной иммобилизации модельных отходов переработки ОЯТ в условиях воздушной плазмы ВЧФ-разряда.

В результате проведенных расчётов показателей горения различных водно-органических композиций на основе отходов переработки ОЯТ («отходы переработки ОЯТ – вода – этиловый спирт (ацетон)» и «отходы переработки ОЯТ – вода – этиловый

спирт(ацетон)-хлорид калия (хлорид натрия)» определены оптимальные по составу композиции, имеющие адиабатическую температуру горения ≈ 1200 °С и обеспечивающие экологически безопасную переработку таких отходов.

По результатам проведённых термодинамических расчётов равновесных составов продуктов плазменной утилизации и иммобилизации отходов переработки ОЯТ в виде оптимальных по составу водно-органических композиций в широком интервале температур (300÷4000 К) и массовых долей различных плазменных теплоносителей (20÷80%) определены и рекомендованы для практической реализации оптимальные режимы.

На имеющемся лабораторном плазменном стенде «Плазменный модуль на базе высокочастотного генератора ВЧГ8-60/13-01» (колебательная мощность до 60 кВт, рабочая частота 13,56 МГц) проведены экспериментальные исследования процесса плазменной утилизации водно-органических композиций на основе модельных отходов переработки ОЯТ в условиях неравновесной воздушной плазмы ВЧФ-разряда и определены оптимальные по составу композиции и режимы их плазменной утилизации с получением после «мокрой» очистки отходящих из плазменного реактора газов водных суспензий из порошков простых и сложных оксидов металлов, включающих магнитную окись железа. На имеющемся лабораторном плазменном стенде «Высокочастотный факельный плазмотрон на базе генератора ВЧГ8-60/13» проведены экспериментальные исследования процесса плазменной иммобилизации порошков простых и сложных оксидов металлов в расплавах хлоридов металлов, стойких к радиационному воздействию (КСl, NaCl и др.) в условиях воздушной плазмы ВЧФ-разряда и определены оптимальные режимы процесса плазменной иммобилизации твёрдых продуктов плазменной утилизации отходов переработки ОЯТ.

Результаты проведённых исследований могут быть использованы для создания оборудования и технологии плазменной утилизации и иммобилизации отходов переработки ОЯТ, что позволит существенно сократить объёмы отходов, повысить их устойчивость к механическим и химическим воздействиям и обеспечить режим нераспространения ядерных материалов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Никифоров, А.С. и др. Обезвреживание жидких радиоактивных отходов [Текст] / А.С. Никифоров, В.В. Кулиниченко, М.И. Жихарев. – М.: Энергоатомиздат, 1985. – 184 с.
2. Скачек, М.А. Обращение с отработавшим ядерным топливом и радиоактивными отходами АЭС [Текст] / М.А. Скачек. – М.: Издательский дом МЭИ, 2007. – 448 с.
3. Туманов, Ю.Н. Плазменные и высокочастотные процессы получения и обработки материалов в ядерном топливном цикле: настоящее и будущее [Текст] / Ю.Н. Туманов. – М.: Физматлит, 2003. – 759 с.
4. Пантелеев, Ю.А. и др. Аналитические методы определения компонентов жидких радиоактивных отходов [Текст] / Ю.А. Пантелеев, А.М. Александрук, С.А. Никитина, Е.Р. Петров, А.Б. Богородицкий, М.Г. Григорьева. – Л.: Труды Радиевого института им. В. Г. Хлопина, 2007. – Т. XII. – С. 124–147.
5. Каренгин, А.Г. и др. Моделирование процесса плазменной утилизации жидких радиоактивных отходов [Текст] / А.Г. Каренгин, О.Д. Шахматова // Вестник науки Сибири. – 2012. – №2. – С. 22–26.
6. Каренгин, А.Г. и др. Плазменное получение жаростойких пигментов двуокиси циркония [Текст] / А.Г. Каренгин, А.А. Каренгин, А.Д. Побережников // Известия вузов. Физика. – т. 54. – 2011. – №11/2. – С. 369–372.
7. Власов, В.А. и др. Моделирование процесса плазменной утилизации отходов переработки отработавшего ядерного топлива [Текст] / В.А. Власов, А.Г. Каренгин, А.А. Каренгин, О.Д. Шахматова // Известия вузов. Физика. – т. 55. – 2011. – №11/2. – С. 377–382.

Plasma Utilization and Waste Reprocessing Immobilization of Spent Nuclear Fuel

A.G. Karengin*, O.D. Podgornaya**, E.E. Shlotgauer***

*National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk Polytechnic University (TPU) 30 Lenina, 10 building, Tomsk, Tomskaya region, Russia, 634050, * e-mail: karengin@tpu.ru ; ** e-mail: shahmatovaol@tpu.ru ; *** e-mail: shlotyara@mail.ru*

Abstract – This article describes the problem of utilization and waste reprocessing immobilization of spent nuclear fuel. The purpose of this work is the determination and evaluation of waste reprocessing of spent nuclear fuel recycling possibility with application of plasma equipment in powder of metal oxide for further conservation or use. The possibility of such recycling on the basis of thermodynamic modeling and experimental research is shown. Results of conducted research can be used for designing plasma technology and equipment for utilization and neutralization of waste reprocessing of spent nuclear fuel.

Keywords: plasma, utilization, immobilization, magnetic separation.

REFERENCES

- [1] Nikiforov A.S., Kulinichenko V.V., Zhikharev M.I. Obezvrezhivaniye zhidkikh radioaktivnykh otkhodov [Neutralization of liquid radioactive waste]. M. Pub. Energoatomizdat [Energoatomizdat], 1985. 184 p. (in Russian)
- [2] Skachek M.A. Obrashcheniye s otrabotavshim yadernym toplivom i radioaktivnymi otkhodami AES [Treatment of spent nuclear fuel and radioactive waste of the NPP]. M. Pub. Izdatelsky dom MEI [MEI publishing house], 2007, ISBN 978-5-383-00057-1, 448 p. (in Russian)
- [3] Tumanov Yu.N. Plazmennye i vysokochastotnye protsessy polucheniya i obrabotki materialov v yadernom toplivnom tsikle: nastoyashcheye i budushcheye [Plasma and high-frequency processes of receiving and processing of materials in a nuclear fuel cycle: present and future]. M. Pub. Fizmatlit [Physmatlit], 2003. 759 p. (in Russian)
- [4] Panteleyev Yu.A., Aleksandruk A.M., Nikitina S.A., Petrov Ye.R., Bogoroditsky A.B., Grigoryeva M.G. Analiticheskiye metody opredeleniya komponentov zhidkikh radioaktivnykh otkhodov [Analytical methods of components definition of liquid radioactive waste]. L. Pub. Trudy Radiyevogo instituta im. V.G. Khlopina [Works of V. G. Hlopin Radium institute], 2007, T. XII [Vol. XII], pp. 124–147. (in Russian)
- [5] Karengin A.G., Shakhmatova O.D. Modelirovaniye protsessa plazmennoy utilizatsii zhidkikh radioaktivnykh otkhodov [Modeling of process of plasma utilization of liquid radioactive waste]. Vestnik nauki Sibiri [Siberian Journal of Science]. 2012, №2, ISSN 2226-0064, pp. 22–26. (in Russian)
- [6] Karengin A.G., Karengin A.A., Poberezhnikov A.D. Plazmennoye polucheniye zharostoykikh pigmentov dvoukisi tsirkoniya [Plasma receiving heat-resistant pigments of zirconium dioxide]. Izvestiya vuzov. Fizika [Russian Physics Journal]. t. 54[Vol.54], 2011, №11/2, ISSN 0021-3411, pp. 369–372. (in Russian)
- [7] Vlasov V.A., Karengin A.G., Karengin A.A., Shakhmatova O.D. Modelirovaniye protsessa plazmennoy utilizatsii otkhodov pererabotki otrabotavshego yadernogo topliva [Modeling of plasma recycling process of spent nuclear fuel processing]. Izvestiya vuzov. Fizika [Russian Physics Journal], t. 55[Vol.54], 2011, №11/2, ISSN 0021-3411, pp. 377–382. (in Russian)