

Каренгин Александр Григорьевич, канд. физ.-мат. наук, доцент кафедры технической физики Физико-технического института ТПУ.

E-mail: karengin@tpu.ru

Область научных интересов: физика и химия газоразрядной плазмы, плазменные процессы и технологии получения и применения нанодисперсных материалов, плазмокаталитическая утилизация промышленных отходов.

Шахматова Ольга Дмитриевна, студент Физико-технического института ТПУ. E-mail: shahmatovaol@tpu.ru. Область научных интересов: Плазменная утилизация жидких радиоактивных отходов, плазменная конверсия гексафторида урана.

УДК 533.9 (075.8)

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССА ПЛАЗМЕННОЙ УТИЛИЗАЦИИ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

А.Г. Каренгин, О.Д. Шахматова

Томский политехнический университет

E-mail: shahmatovaol@tpu.ru

Рассмотрена проблема утилизации жидких радиоактивных отходов. На основании термодинамического моделирования показана возможность осуществления такой переработки. Результаты проведенных исследований могут быть использованы при разработке плазменной технологии и оборудования для утилизации и обезвреживания ЖРО.

Ключевые слова:

Отработавшее ядерное топливо, жидкие радиоактивные отходы, плазма.

Внастоящее 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].

Радиоактивные отходы АЭС и отработавшее ядерное топливо (ОЯТ) существенно различаются, так как ОЯТ потенциально является весьма ценным продуктом, позволяющим получить после его переработки новое ядерное топливо. Специфика РАО состоит в том, что в настоящее время единственным приемлемым способом их относительного обезвреживания является хранение в течение длительного времени в целях распада содержащихся в них радионуклидов [2].

Около 97 % облученного топлива – уран и синтезированный в ядерном реакторе плутоний; 3 % продукты деления урана и изотопов плутония.

Цель переработки отработавшего ядерного топлива – извлечение делящихся нуклидов, образовавшихся при работе реактора (например, в топливе с выгоранием 33 МВт·сут/кг массовое содержание ^{235}U составляет примерно 0,83 %, а содержание делящихся изотопов плутония – около 0,68 %). 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.

В действующей технологической схеме поступающие на регенерацию тепловыделяющие сборки (ТВС) с ОЯТ проходят через следующие основные операции:

- временное хранение в бассейне;
- отрезка холостых (торцевых) концов ТВС;
- прессование и резка активной части ТВС на мелкие фрагменты, что открывает доступ кислоты к ОЯТ, ранее герметично изолированному в оболочках твэлов, на следующей операции;
- растворение ОЯТ (и части конструкционных материалов) в водном растворе азотной кислоты;
- совместная экстракция урана, плутония, проходящая в непрерывном противоточном режиме;
- промывка экстракта чистыми водными растворами азотной кислоты для удаления из него частично захваченных продуктов деления урана;

- реэкстракция только плутония водными растворами восстановителей или комплексообразователей (например, гидразина, двухвалентного железа, органических кислот);

Для увеличения концентрации очищенных урана и плутония растворы выпариваются.

Оставшийся после первого экстракционного цикла без урана и плутония водный раствор (рафинат) актиноидов и продуктов деления выпаривается и после добавления необходимых реагентов (силикатов, фосфатов, боратов и др.) направляется на операцию остекловывания с последующим захоронением [2].

Жидкие радиоактивные отходы (ЖРО) должны концентрироваться для обеспечения безопасности обработки, хранения и захоронения. Растворы отходов высокой удельной активности, образующиеся при экстракции урана и плутония, в процессе переработки ОЯТ концентрируются путем выпаривания. Выпаренный концентрированный раствор закачивают в баки из кислотостойкой стали. Баки с учетом возможности протечек устанавливают на поддоны, изготовленные из нержавеющей стали. Ввиду сильного ионизирующего излучения отходов баки помещают в горячие камеры, которые изнутри покрыты сталью. Для отвода теплоты, выделяемой продуктами деления и актиноидами, баки оснащают водяной системой охлаждения [2]. В таких условиях растворы ЖРО могут содержаться, по крайней мере, 20–30 лет.

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; её направляют в хранилище высокоактивных жидких радиоактивных отходов (ЖРО) [3]. В растворах ЖРО присутствуют различные нерадиоактивные продукты распада, такие как молибден и РЗЭ, а также конструкционные материалы (цирконий, железо, никель, хром, марганец). Выделение некоторых из них (например, благородных металлов) представляет потенциальный интерес для дальнейшего их использования, тогда как другие (самарий и гадолиний) должны быть удалены в процессе переработки топлива, поскольку они существенно препятствуют размножению нейтронов [4].

Цель данной работы – определение возможности переработки ЖРО с применением плазменной техники в порошки оксидов металлов для дальнейшего хранения или последующего использования.

В работе проведено термодинамическое моделирование процесса плазменной переработки ЖРО в различных плазменных теплоносителях. Для моделирования был взят следующий состав таких отходов [4]: HNO_3 – 18,0 %, H_2O_1 – 81,43 %, Fe – 0,07 %, Mo – 0,1 %, Nd – 0,11 %, Y – 0,06 %, Zr – 0,058 %, Na – 0,04 %, Ce – 0,039 %, Cs – 0,036 %, Co – 0,031 %, Sr – 0,026 %. В ходе работы использовались плазменные теплоносители с различным составом и соотношением компонентов при атмосферном давлении ($P = 0,1$ МПа).

На рис. 1 представлен характерный равновесный состав основных конденсированных продуктов переработки жидких радиоактивных отходов в пароводяной плазме. Из анализа равновесного состава следует, что при переработке ЖРО в пароводяной плазме в конденсированной фазе образуются только оксиды металлов MoO_3 , Nd_2O_3 , Fe_2O_3 , Fe_3O_4 , CeO_2 , ZrO_2 , SrZrO_3 , Y_2O_3 и др.

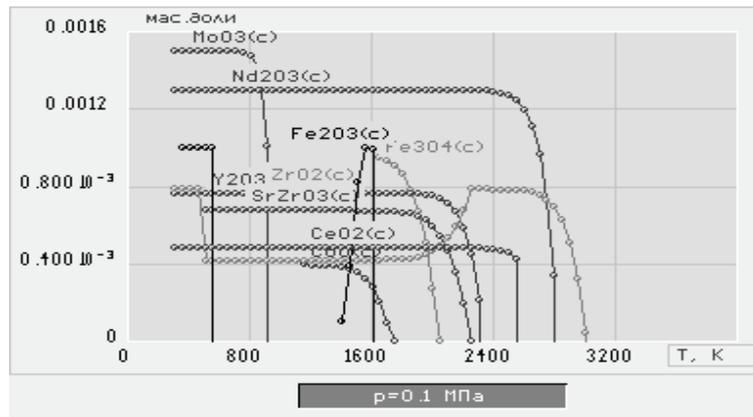


Рис. 1. Равновесный состав основных конденсированных продуктов переработки жидких радиоактивных отходов в пароводяной плазме

При переработке ЖРО в воздушной плазме (рис. 2) также образуются в конденсированной фазе оксиды металлов MoO_3 , Nd_2O_3 , Fe_2O_3 , Fe_3O_4 , CeO_2 , ZrO_2 , SrZrO_3 , Y_2O_3 и др.

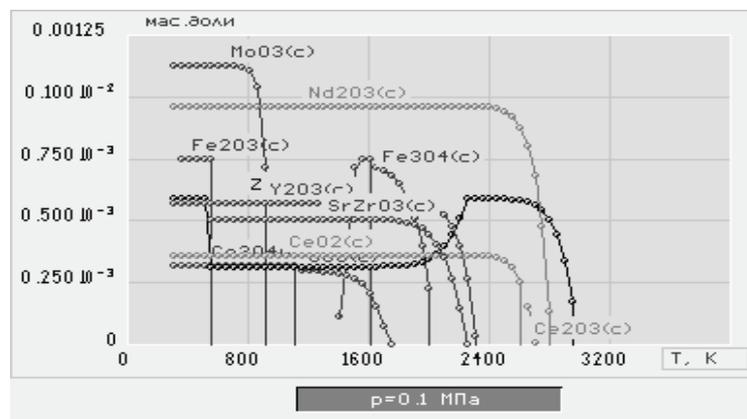


Рис. 2. Равновесный состав основных конденсированных продуктов переработки жидких радиоактивных отходов в воздушной плазме (25 % Воздух: 75 % ЖРО)

Повышение массовой доли воздушного плазменного теплоносителя с 25 до 50 % (рис. 3) не оказывает влияния на состав конденсированных продуктов плазменной переработки ЖРО.

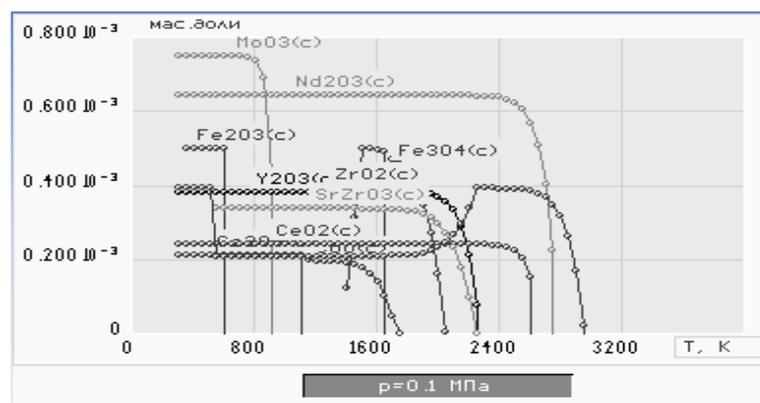


Рис. 3. Равновесный состав основных конденсированных продуктов переработки жидких радиоактивных отходов в воздушной плазме (50 % Воздух:50 % ЖРО)

При переработке ЖРО в воздушной плазме в виде водноорганических композиций (ВОК) с высокой взаимной растворимостью (рис. 4) в конденсированной фазе образуются не только оксиды металлов (MoO_2 , Nd_2O_3 , FeO_2 , Fe_3O_4 , Ce_2O_3 , ZrO_2 , SrZrO_3 , Y_2O_3), но и металлы, например, $\text{Mo}(c)$.

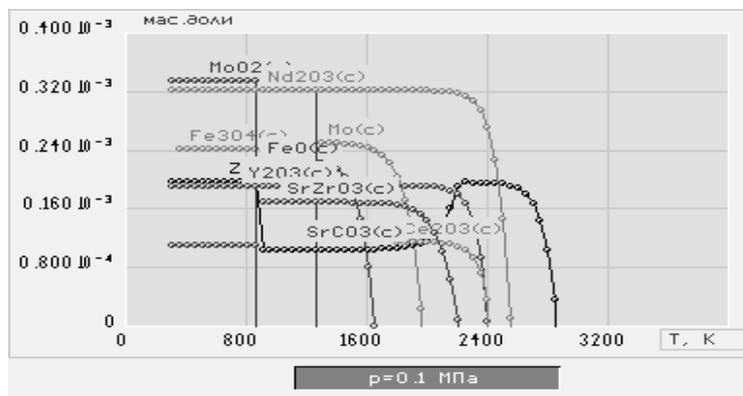


Рис. 4. Равновесный состав основных конденсированных продуктов переработки водноорганической композиции, состоящей из ЖРО и спирта, в воздушной плазме (50 % Воздух:25 % ЖРО:25 % $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$)

Снижение массовой доли воздушного плазменного теплоносителя с 50 до 25 % при равных массовых долях ЖРО и спирта по 37,5 % приводит к дополнительному образованию в конденсированной фазе металлического $\text{Co}(c)$.

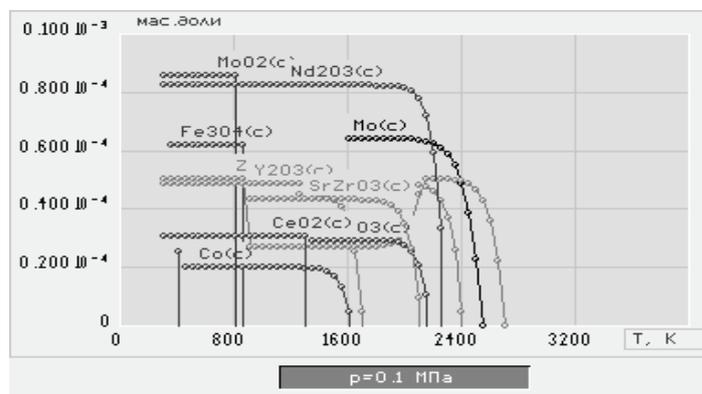


Рис. 5 Равновесный состав основных конденсированных продуктов переработки ВОК, состоящей из ЖРО и спирта, в воздушной плазме (25 % Воздух:37,5 % ЖРО:37,5 % $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$)

Повышение массовой доли воздушного плазменного теплоносителя с 25 до 60 % (рис. 6) приводит к исчезновению конденсированной фазы металлов.

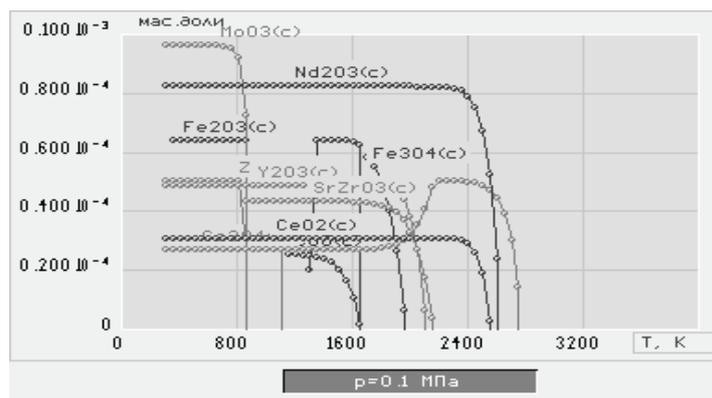


Рис. 6. Равновесный состав основных конденсированных продуктов переработки ВОК, состоящей из жидких радиоактивных отходов и спирта, в воздушной плазме (60 % Воздух:37,5 % ЖРО:2,5 % C_2H_6O).

Выводы

Проведенное моделирование процесса плазменной утилизации показывает возможность переработки ЖРО в порошки оксидов металлов для дальнейшего хранения или последующего применения. Результаты исследований могут быть использованы при разработке плазменной технологии и оборудования для утилизации и обезвреживания ЖРО, которые позволят значительно сократить затраты на хранение отходов вследствие уменьшения их объемов, повышения устойчивости к механическим, химическим воздействиям.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Никифоров А.С., Кулиниченко В.В., Жихарев М.И. Обезвреживание жидких радиоактивных отходов. – М.: Энергоатомиздат, 1985. – 184 с.
2. Скачек М.А. Обращение с отработавшим ядерным топливом и радиоактивными отходами АЭС. – 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. – М.: Физматлит, 2003. – 759 с.
4. Пантелеев Ю.А., Александрук А.М., Никитина С.А., Макарова Т.П., Петров Е.Р., Богородицкий А.Б., Григорьева М.Г. Аналитические методы определения компонентов жидких радиоактивных отходов. – Л.: Труды Радиового института им. В.Г. Хлопина, 2007. – Т. XII. – С. 124–147.

Поступила 09.04.2012 г.