

**МОДЕЛИРОВАНИЕ И ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА ПЛАЗМЕННОЙ ОБРАБОТКИ
АММИАЧНО-ХЛОРИДНЫХ МАТОЧНЫХ РАСТВОРОВ**

И. Ю. Никишкин

Научный руководитель: доцент, к.ф.-м.н. А. Г. Каренгин
Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, 634050
E-mail: semenou.semen@yandex.ru

**MODELING AND INVESTIGATION OF THE PLASMA TREATMENT OF AMMONIUM
CHLORIDE MOTHER LIQUOR**

I.Yu. Nikishkin

Scientific Supervisor: Doc., к.ф.-м.н. А. G. Karengin
National Research Tomsk Polytechnic University, Russia, Tomsk, Lenin str., 30, 634050
E-mail: semenou.semen@yandex.ru

***Abstract.** This article presents the results of the process simulation plasma processing ammonium chloride stock solutions. The process was conducted in a wide range of temperature and mass fraction of air plasma and coolant. The results can be used in the development of technology for efficient plasma treatment of a variety of radiation-contaminated water and salt wastes as fuel compositions, as well as other liquid radioactive waste produced by the Russian closed nuclear fuel cycle.*

В настоящее время одной из проблем ядерной энергетики является обращение с радиационно-загрязненными отходами. За время многолетней работы предприятий ядерного топливного цикла накоплены и ежегодно образуются огромные объемы низко- и среднеактивных водно-солевых отходов (азотнокислые экстракционные рафинаты, аммиачно-хлоридные маточные растворы, аммиачные маточные растворы и др.), которые размещаются в бассейнах-хранилищах [1].

По действующей технологии, в первую очередь направляют на переработку из бассейнов иловые отложения, которые подвергают обезвоживанию, термообработке (выпаривание и прокалка) для уменьшения объема, а затем на цементирование или битумизацию и далее на длительное хранение или захоронение [2-5]. Данная технология многостадийна и требует значительных трудо- и энергозатрат на их обработку.

Плазменная обработка является одностадийным, гибким и наиболее универсальным методом обработки водно-солевых растворов для получения как простых, так и сложных оксидов металлов многоцелевого назначения [6]. Основными достоинствами данного способа является: высокая скорость процесса; большое число каналов воздействия на физико-химические свойства целевых продуктов; возможность синтеза сложных оксидных соединений, а также высокая химическая активность получаемых целевых продуктов. Однако плазменная обработка только водно-солевых растворов требует огромных энергозатрат на их обработку (2–4 МВт·ч/т).

Существенное снижение энергозатрат на процесс плазменной обработки водно-солевых растворов (отходов) может быть достигнуто при их обработке в виде оптимальных по составу диспергированных горючих водно-солеорганических композиций [7].

В работе представлены результаты термодинамического моделирования процесса обработки в воздушной плазме водно-солевых отходов в виде аммиачно-хлоридных маточных растворов, имеющих следующий характерный состав (г/л): ВСО (NH_4NO_3 – 70-80; $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ – 20; CaCl_2 – 5; NH_4Cl – 4; ПАВ – 0,2-0,3; U – менее 0,002; H_2O – остальное) [5].

На первом этапе проведен расчет показателей горючести различных по составу водно-солеорганических композиций на основе ВСО и этанола (аcetона) и определена горючая композиция, имеющие низшую теплоту сгорания не менее 8,4 МДж/кг и обеспечивающая энергоэффективную плазменную обработку данных отходов: ВСОК (67 % ВСО : 37 % этанол).

Для определения оптимальных режимов исследуемого процесса проведены расчёты равновесных составов газообразных и конденсированных продуктов плазменной обработки ВСОК в воздушной плазме. Расчёты проведены при атмосферном давлении (0,1 МПа), в широком диапазоне температур (300÷4000 К) и массовых долей воздушного плазменного теплоносителя (10 %–90 %). Для расчётов использовалась лицензионная программа «TERRA».

При этом, для каждой водно-органической композиции подбиралась такая минимальная массовая доля воздуха, которая обеспечивала полное окисление органического растворителя (аcetон, спирт). На рисунке 1 представлены характерные равновесные составы основных газообразных (а) и конденсированных (б) продуктов плазменной обработки ВСОК в воздушной плазме при массовой доле воздушного теплоносителя 74%.

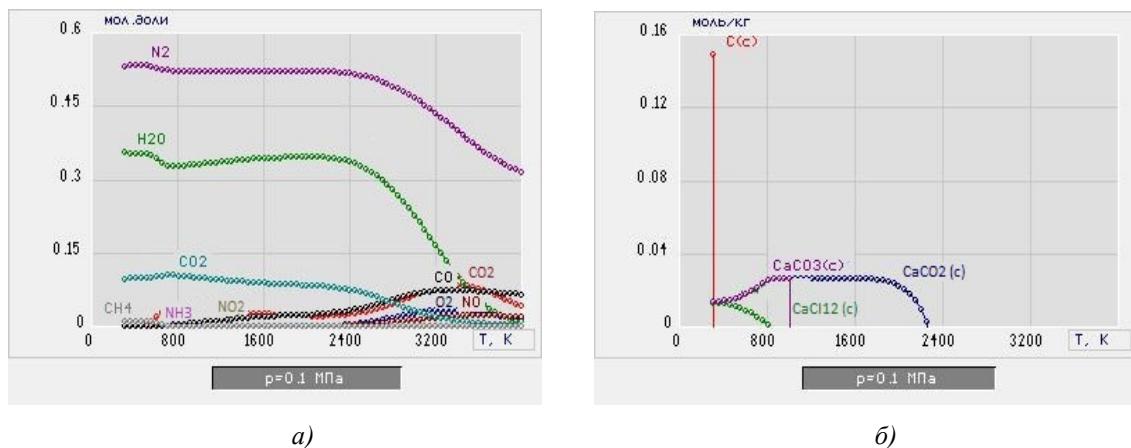


Рис. 1. Равновесный состав газообразных (а) и конденсированных (б) продуктов плазменной обработки водно-солевых отходов в виде ВСОК в воздушной плазме (26 % Воздух : 74% ВСОК)

Из анализа равновесных составов следует, что при массовой доле воздушного плазменного теплоносителя 74 % основными газообразными продуктами плазменной обработки данных отходов в виде ВСОК при температурах до 1500 К являются N_2 , H_2O , и CO_2 . При температурах до 800 К образуется значительное количество сажи $\text{C}(\text{s})$ в конденсированной фазе, а в интервале температур 800-1500 К основными продуктами в конденсированной фазе являются $\text{CaO}(\text{c})$ и CaCO_3 ,

На рисунках 2,а и 2,б представлены характерные равновесные составы газообразных и конденсированных продуктов плазменной обработки отходов в виде ВСОК при массовой доле воздушного плазменного теплоносителя 75 %.

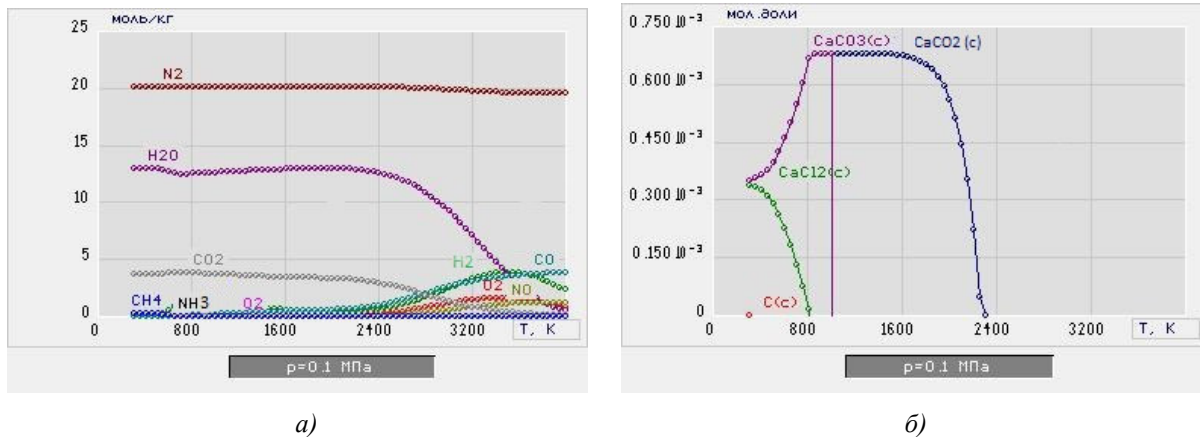


Рис. 2. Равновесный состав газообразных (а) и конденсированных (б) продуктов плазменной обработки водно-солевых отходов в виде ВСОК в воздушной плазме (25 % Воздух : 75 % ВСОК)

Увеличение массовой доли воздушного теплоносителя с 74 % до 75 % не приводит к существенному изменению состава основных газообразных N_2 , H_2O , и CO_2 и конденсированных продуктов ($CaO(c)$ и $CaCO_3$), но приводит к почти полному исчезновению сажи $C(c)$ в составе конденсированных продуктов.

Отсутствие сажи $C(c)$ и незначительное количество CO , NO , NO_2 указывает на то, что процесс плазменной обработки ВСОК при массовой доле воздушного плазменного теплоносителя 75 % будет идти в экологически безопасном режиме.

Таким образом, на основе результатов термодинамического моделирования исследуемого процесса показано, что их обработка в виде оптимальных по составу ВСОК может обеспечить не только их одностадийную и энергоэффективную обработку в воздушной плазме, но и позволит многократно сократить объемы отходов.

Результаты проведенных исследований могут быть использованы при разработке энергоэффективной технологии плазменной обработки различных радиационно-загрязненных водно-солевых отходов в виде горючих композиций, а также других жидких радиоактивных отходов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. 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.
2. Никифоров А.С., Кулиниченко В.В., Жихарев М.И. Обезвреживание жидких радиоактивных отходов. – М.: Энергоатомиздат, 1985. – 184 с.
3. Рябчиков Б.Е. Очистка жидких радиоактивных отходов. – М.: ДеЛи принт, 2008. – 512 с.
4. Туманов Ю.Н., Плазменные и высокочастотные процессы получения и обработки материалов в ядерном топливном цикле. – М.: ФИЗМАТЛИТ, 2003. – 760 с.
5. Karengin A.G., Karengin A.A., Novoselov I.Yu., Tundeshev N.V.. Calculation and Optimization of Plasma Utilization Process of Inflammable Wastes after Spent Nuclear Fuel Recycling, Advanced Materials Research, Volume 1040 (2014) 433-436.