

УДК 533.9.03

РАЗРАБОТКА И ДЕМОНСТРАЦИЯ ОСНОВ ПЛАЗМЕННОЙ ПЕРЕРАБОТКИ ОТРАБОТАВШЕГО ТОПЛИВА

*Антонов Н.Н., Валинуров М.А., Гавриков А.В., Кузьмичев С.Д., Мельников А.Д., Ойлер А.П.,
Самойлов И.С., Смирнов В.П., Тимирханов Р.А., Усманов Р.А., Шумова В.В. (ОИВТ РАН, г. Москва),
Мочалов Ю.С., Савиц С.М., Суханов Л.П. (АО «Прорыв», г. Москва)*
e-mail: usmanov.r@ihed.ras.ru

Одним из ключевых направлений развития ядерной энергетики является замыкание ядерного топливного цикла с разработкой эффективной переработки отработавшего топлива [1—4]. Перспективной и востребованной является плазменная переработка отработавшего топлива, разрабатываемая в рамках проектного направления «Прорыв» в качестве одной из операций в схемах переработки отработавшего топлива промышленных энергетических комплексов [5—7]. Ранее был выполнен расчетно-теоретический анализ движения заряженных частиц в различных конфигурациях полей, который позволил приступить к созданию экспериментальной установки и провести на ней исследования по отработке плазменного разделения элементов отработавшего топлива [8].

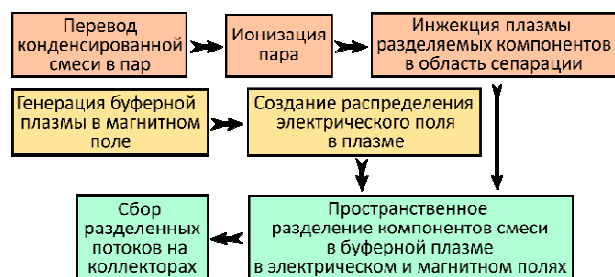
В настоящей статье изложена основная концепция плазменной переработки отработавшего топлива, описаны направления, по которым ведутся экспериментальные изыскания, приведены результаты.

Концепция плазменного разделения элементов. Принципиальная идея плазменной сепарации основана на зависимости траектории заряженных частиц в электрическом и магнитном полях от отношения их заряда к массе. Расчетно-теоретический анализ [8] показал, что при магнитном поле $\sim 0,1$ Тл, напряжении ~ 1 кВ и длине траекторий ионов около 1 м можно добиться расхождения потоков актиноидов массой ~ 240 а.е.м. и продуктов деления массой менее 160 а.е.м. на расстояние ~ 20 см. Плазменный метод позволяет достичь производительности 1 кг/ч и более по разделяемым компонентам, что соответствует 10 т в год отработавшего топлива БН-1200 [9].

Физические подходы плазменной сепарации интересны с точки зрения не только отдаленной перспективы применения в качестве самостоятельной основы переработки отработавшего топлива, но и использования в комбинированных технологических цепочках. Учитывая фи-

зические ограничения плазменной технологии и требования к конечному продукту создаваемого модуля переработки промышленного энергетического комплекса [7], плазменная технология рассматривается в качестве отдельной операции в составе комбинированной переработки отработавшего топлива на модуле переработки промышленного энергетического комплекса. В этом случае из участка накопления и дозирования порошка тигли с порошком отработавшего топлива поступают на установку плазменной сепарации, где происходит разделение на две фракции — актиноиды и продукты деления с осаждением на соответствующие коллекторы. Далее смесь актиноидов направляется на доочистку (при необходимости) и фракционирование с помощью гидрометаллургических методов, смесь продуктов деления — в систему обращения с отходами. Помимо гидрометаллургических есть другие методы выделения отдельных элементов из группы актиноидов, например, резонансные, которые могут быть адаптированы к переработке отработавшего топлива [10]. В качестве еще одного применения рассматривается плазменная сепарация внутри схемы гидрометаллургической переработки, в которой рафинат головного блока экстракции после упаривания и кальцинирования может быть направлен на установку плазменной сепарации для разделения смеси редкоземельных и трансплутониевых элементов, снижая таким образом капитальные и эксплуатационные затраты на организацию участка экстракционного фракционирования.

Плазменная переработка предполагает следующие стадии: создание буферной плазмы в магнитном поле и требуемого распределения электрического потенциала в ее объеме, перевод конденсированного вещества смеси разделяемых компонентов в пар, затем в плазменное состояние, инжекция плазмы разделяемых элементов в область сепарации в объеме буферной плазмы, сбор разделенных потоков ионизированного вещества на коллекторы (рис. 1). Такой



Р и с. 1. Блок-схема метода плазменной сепарации

принцип работы позволяет выделить следующие преимущества метода:

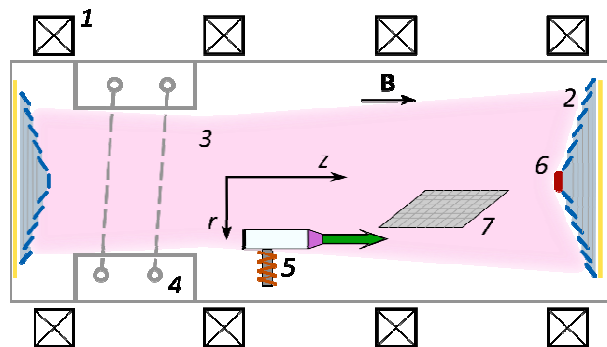
почти полное отсутствие вспомогательной рециркулируемой среды, следствием чего является минимальное количество дополнительно нарабатываемых отходов;

возможность масштабирования процесса от локальной пристанционной переработки до переработки в рамках единого централизованного завода;

возможность настройки под разные типы отработавшего топлива.

Учитывая теоретическую обоснованность и пригодность плазменного разделения элементов для технологических целей, были проведены работы, направленные на экспериментальную отработку его отдельных составляющих и апробацию в целом на веществах, моделирующих отработавшее ядерное топливо.

Экспериментальная демонстрация. Принципиальная схема экспериментальной установки Лаплас в ОИВТ РАН, на которой проводилась апробация метода [11], показана на рис. 2. На ней исследовались генерация плазмы, создание в объеме плазмы стационарного распределения электрического поля, инжекция вещества в область сепарации, разделение плазменных пото-



Р и с. 2. Принципиальная схема установки Лаплас: 1 — магнитные катушки; 2 — система торцевых электродов; 3 — буферная плазма; 4 — ВЧ-антенна; 5 — инжектор плазмы разделяемых элементов; 6 — термокатод; 7 — принимающая подложка

ков веществ, моделирующих отработавшее топливо, и сбор этих потоков на коллекторы (подложку).

Установка представляет собой цилиндрическую вакуумную камеру длиной 2,3 м, внутренним диаметром 86 см. Снаружи располагается система магнитных катушек, позволяющая получать в рабочем объеме камеры магнитное поле до 0,2 Тл неоднородностью на уровне 10%. Буферная плазма, заполняющая сепаратор, в большинстве экспериментов была аргонной или гелиевой. Плазма генерировалась в зависимости от особенностей исследований высокочастотным разрядом индукционного типа или геликонным разрядом, отражательным разрядом Пеннинга или их комбинацией. Это связано с тем, что при таком подходе появляется возможность задействовать электроды с обоих торцов цилиндрической камеры для создания пространственного распределения электрического потенциала в объеме буферной плазмы. В состав установки входят также инжектор плазменной струи разделяемой смеси элементов, внутри которого происходят испарение и ионизация материала, подложка для приема отсепарированного вещества и диагностические устройства.

Как было отмечено, отличием плазменной сепарации от других электромагнитных методов разделения веществ является возможность компенсации объемного заряда и производительность, представляющая интерес для промышленного применения. Таким образом, одними из ключевых задач для реализации метода являются создание буферной плазмы и формирование в ней необходимого пространственного распределения электростатического потенциала. Апробация подходов [12, 13] позволила показать возможность создания потенциальной ямы в плазме отражательного разряда глубиной до -700 В. При этом остальные параметры плазмы оказывались приемлемыми для реализации плазменного разделения элементов: магнитное поле 0,14 Тл, концентрация плазмы до 10^{12} см $^{-3}$, занимаемый ею объем — цилиндр диаметром около 50 см, длиной 2 м. Такие параметры были достигнуты благодаря использованию термоэлектронных эмиттеров, обеспечивающих инжекцию дополнительных электронов в плазменный объем.

Для выработки решений по различным стадиям технологического процесса переработки

отработавшего топлива с использованием плазменной сепарации требуются различные модельные вещества, однако для показа принципиальной работоспособности подхода прежде всего необходимы вещества, демонстрирующие динамику движения в $E \times B$ полях, подобную элементам отработавшего топлива. Принимая во внимание относительную простоту обращения, в качестве таких элементов были выбраны свинец (207 а.е.м.), моделирующий по массе тяжелый компонент отработавшего топлива — элементы из группы актиноидов, и серебро (108 а.е.м), моделирующее легкую составляющую отработавшего топлива — продукты распада актиноидов и конструкционные материалы.

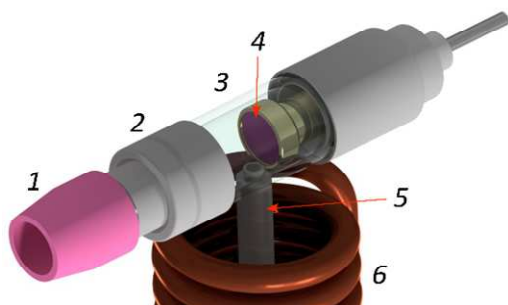
Требования к источнику плазмы для технологической установки достаточно жесткие и среди прочего подразумевают создание плазменного потока производительностью ~ 1 кг/ч при 100%-ной степени ионизации и кратностью ионов 1. Вместе с тем для апробации метода требования к источнику плазмы могут быть существенно смягчены: сохраняется необходимость кратности ионов 1, в то время как степень ионизации может не превышать 10%, что относительно просто может быть реализовано с помощью многих типов разрядов низкого давления. Требования к производительности метода в этом случае также могут быть снижены до уровня, необходимого для достоверной диагностики разделения компонентов смеси и не превышающего 1 г/ч. Еще одним ключевым требованием к источнику плазмы разделяемых компонентов является степень его воздействия на конфигурацию электрического и магнитного

полей, создаваемую в буферной плазме и необходимую для осуществления плазменного разделения элементов. Ни конструкция, ни инжектируемая из источника струя плазмы разделяемых элементов не должны существенно искажать эти поля.

С учетом изложенного был разработан источник плазмы для показа работоспособности плазменной сепарации. Его конструкция обеспечивает инжекцию в сепаратор плазменной струи параллельно силовым линиям магнитного поля.

Схема источника показана на рис. 3. Конденсированное вещество нагревается в тигле индукционным способом и в виде пара поступает в разрядный промежуток, где ионизируется. Полученная плазма выводится через выходное отверстие в аноде диаметром 20 мм непосредственно в область сепарации. Рабочая температура источника составляет до 1,7 кК. Представленная конструкция позволила достичь ионного тока 2,5 А в инжектируемой плазменной струе, что для модельного вещества (свинец) означает выход на производительность 18 г/ч. Схема электропитания источника подбиралась с учетом требования уменьшения степени воздействия на конфигурацию полей, обеспечивающую разделение элементов смеси.

Для непосредственной апробации плазменной сепарации была подобрана композиция из смеси свинца и серебра. Она загружалась в тигель, затем инжектировалась в виде плазменной струи в область сепарации, заполненную буферной аргоновой или гелиевой плазмой в магнитном поле 0,14 Тл и созданным в ней радиальным

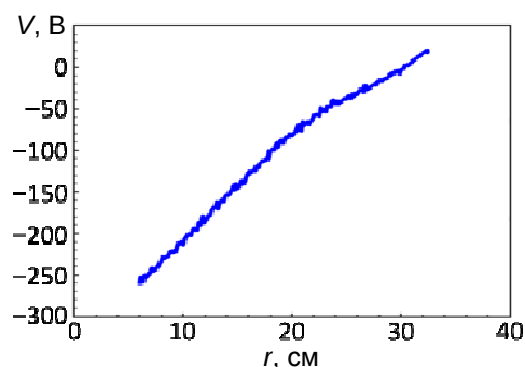


а



б

Р и с. 3. Источник плазмы для демонстрации работоспособности метода плазменной сепарации: а — схема; б — фотография источника; 1 — уловитель нейтральных частиц; 2 — анод; 3 — кварцевый экран; 4 — термокатод; 5 — тигель с испаряемой смесью; 6 — индуктор

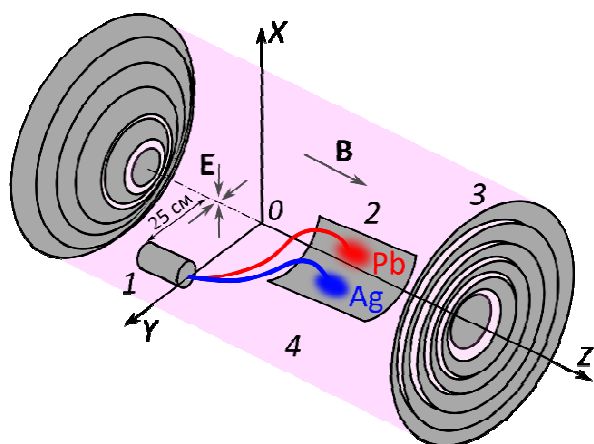


Р и с. 4. Распределение электрического потенциала в области плазменной сепарации

распределением электрического потенциала с характерной напряженностью 10 В/см (рис. 4). При этом на приемном коллекторе, удаленном от инжектора на расстояние 25 см, были зафиксированы области осаждения свинца и серебра характерным радиусом ~ 8 см. Их центры были разнесены на расстояние ~ 11 см. Принципиальная схема эксперимента показана на рис. 5.

Таким образом, была показана принципиальная работоспособность плазменной сепарации с воспроизводимостью результатов, достоверно подтвержденных серией экспериментов.

Отметим, что экспериментами была показана необходимость дополнительной инжекции электронов в буферную плазму, которая обусловлена недостаточностью собственных электронов разряда для компенсации объемного заряда ионов разделяемых веществ. Так, в отсутствие дополнительной инжекции сепарацию удавалось обеспечить только при производительности процесса 1 г/ч, попытки ее увеличения приводили к разрушению требуемого для



Р и с. 5. Принципиальная схема процесса плазменной сепарации: 1 — инжектор плазмы разделяемых элементов; 2 — коллектор; 3 — торцевые электроды; 4 — буферная плазма

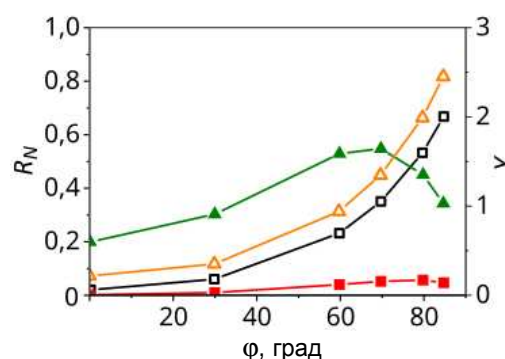
сепарации распределения электрического потенциала в плазменном объеме. Инжекторы электронов позволили решить эту проблему и достигнуть производительность ~ 10 г/ч, а также возможность ее дальнейшего увеличения.

Неотъемлемым элементом плазменной сепарации является сбор на коллекторы вещества разделенных потоков. Особенности, которые могут затруднять решение этой задачи, состоят в следующем:

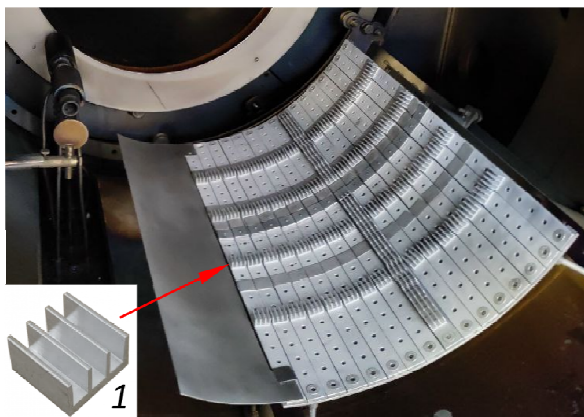
коэффициент осаждения иона может зависеть от его энергии, температуры и материала приемной подложки, угла падения ионов;

осажденное вещество может распыляться окружающей плазмой, содержание которой принципиально необходимо в силу физического базиса подхода.

Цикл исследований позволил предложить решения для наиболее полного сбора вещества. Прежде всего были проведены экспериментальные исследования, которые позволили по току определить количество ионов вещества, которое должно улавливаться из отсепарированных потоков, и сравнить с количеством осевшего на приемные коллекторы по взвешиванию. Было установлено, что улавливается менее 20% материала. Для преодоления проблемы, во-первых, было выполнено моделирование, которое позволило оценить коэффициенты и индикатрисы отражения и распыления осаждаемого вещества при взаимодействии с приемной подложкой (рис. 6). В частности, было показано, что при угле падения менее 50° эти коэффициенты не превышают 0,2. Во-вторых, было проведено моделирование взаимодействия потоков буферной плазмы с плоским приемным коллектором, которое позволило доработать конструкцию и



Р и с. 6. Угловая зависимость коэффициента отражения частиц R_N и распыления Y для урана, бомбардирующего урановый слой, при начальной энергии 50 (R_N □, Y ■) и 300 эВ (R_N △, Y ▲)



Р и с. 7. Водоохлаждаемый секционированный приемный коллектор в камере плазменного сепаратора: 1 — принимающий элемент с отношением глубины к ширине 3:1

уменьшить эффект распыления. С использованием этих данных была предложена конструкция коллектора, которая учитывала угол падения потока вещества и представляла собой ячейки с П-образной конфигурацией и характерным отношением высоты к ширине более 3 (рис. 7).

В конструкции экспериментального коллектора также была учтена необходимость получения пространственного распределения осажденного на приемник вещества и охлаждения коллекторов, поскольку в противном случае из-за потоков энергии, приносимых на них осаждаемым веществом, излучением и бомбардировкой ионами буферной плазмы, может существенно повышаться температура и испаряться осажденное вещество. Учет этих факторов позволил увеличить долю собираемого коллекторами отсепарированного вещества до 60% для аргоновой и более чем 80% для гелиевой буферной плазмы. Кроме того, моделирование показало возможность дальнейшего увеличения этого параметра.

Надежность и достоверность полученных результатов обеспечивают применяемые диагностические методы. Для измерения параметров плазмы, в том числе распределения электрического потенциала применяли разные спектральные и зондовые диагностики: одинарный и двойной зонды, плавающий зонд, термозонд, секционированный зонд, работающий в режиме ионного насыщения. Осажденные вещества контролировали методами взвешивания и рентгено-спектрального энергодисперсионного анализа, контролировали магнитное поле, напряжение и ток на разных участках экспериментальной

установки, а также давление внутри вакуумной камеры и температуру тигля.

Предпосылкой создания установок плазменной сепарации являются:

показанная принципиальная возможность выхода на близкую к 1 кг/ч производительность испарения конденсированного вещества, причем не только металлического, но и оксидного, в частности, оксида церия [14];

принципиальная достижимость требований по созданию плазменного потока с кратностью ионов 1 и близкой к 100%-ной степенью ионизации [15].

Заключение. Создан научно-технический задел для осуществления одного из следующих шагов — выхода на производительность установки 0,2 кг/ч, в перспективе — 1 кг/ч. Его осуществление предполагает создание эффективно-го инжектора плазменной струи разделяемой смеси в область сепарации.

Совокупность полученных результатов будет реализована в составе макета установки плазменной переработки отработавшего топлива быстрых реакторов (Лаплас-2), планируемого к созданию для отработки технологических процессов и инженерных решений на модельных композициях разного состава, в том числе на основе обедненного урана.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адамов Е.О., Мочалов Ю.С., Рачков В.И. и др. Переработка отработавшего ядерного топлива и рециклирование ядерных материалов в двухкомпонентной ядерной энергетике. — Атомная энергия, 2021, т. 130, вып. 1, с. 28—34.
2. Шадрин А.Ю., Двоеглазов К.Н., Масленников А.Г. и др. РН-процесс — технология переработки смешанного уран-плутониевого топлива реактора БРЕСТ-ОД-300. — Радиохимия, 2016, т. 58, № 3, с. 234—241.
3. Зайков Ю.П., Галашев А.Е., Холкина А.С. и др. Экспериментальное обоснование пирохимической переработки смешанного нитридного уран-плутониевого отработавшего ядерного топлива. — Атомная энергия, 2024, т. 136, вып. 5—6, с. 241—246.
4. Коробейников Е.А., Софронов В.Л., Зозуля Д.В. и др. Комбинированная (пиро-гидро) технология переработки нитридного отработанного ядерного топлива. Тезисы докл. отраслевой научно-практической конференции «Инновации в атомной отрасли: проблемы и решения», 2019, с. 30.
5. Zweben S., Gueroult R., Fisch N. Plasma mass separation. — Phys. Plasmas, 2018, v. 25, p. 090901.
6. Долголенко Д.А., Муромкин Ю.А. О разделении смесей химических элементов в плазме. — Успехи физ. наук, 2017, т. 187, с. 1071—1096.

7. Адамов Е.О. Белая книга ядерной энергетики. Замкнутый ЯТЦ с быстрыми реакторами. М.: Изд-во АО «НИКИЭТ», 2020.
8. Смирнов В.П., Самохин А.А., Ворона Н.А., Гавриков А.В. Исследование движения заряженных частиц в различных конфигурациях полей для развития концепции плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива. — Физика плазмы, 2013, т. 39, с. 523—533.
9. Ковалев Н.В., Прокошин А.М., Кудинов А.С., Невиница В.А. Использование плутония из отработавшего смешанного топлива РЕМИКС в реакторе БН-1200. — Изв. вузов. Ядерная энергетика, 2023, № 1, с. 70—81.
10. Мартыненко Ю.В. Электромагнитное разделение изотопов и его наследие. — Успехи физ. наук, 2009, т. 179, с. 1354—1361.
11. Лизякин Г.Д., Антонов Н.Н., Ворона Н.А. и др. О концепции плазменной масс-сепарации в скрещенных $E \times B$ -полях с потенциальной ямой (обзор). — Физика плазмы, 2023, т. 49, с. 278—287.
12. Лизякин Г.Д., Гавриков А.В., Кузьмичев С.Д. и др. Контроль радиального электрического поля в цилиндрическом плазменном столбе с аксиальным магнитным полем. — Успехи физ. наук, 2024, т. 194, с. 495—519.
13. Vorona N.A., Gavrikov A.V., Kuzmichev S.D. et al. Large helicon plasma source for the method of plasma separation of spent nuclear fuel and radioactive waste. — IEEE Transac. Plasma Sci., 2019, v. 47, p. 1223—1230.
14. Antonov N.N., Gavrikov A.V., Kuzmichev S.D. et al. Enhanced CeO_2 evaporation from refractory crucibles (Mo, Ta, W). — Heat Mass Transfer, 2024, v. 60, p. 1677—1685.
15. Полищук В.П., Усманов Р.А., Мельников А.Д. и др. Вакуумные дуговые разряды с диффузной катодной привязкой (обзор). — Теплофизика высоких температур, 2020, т. 58, с. 515—535.

Поступила в Редакцию 25.07.24

УДК 621.039.73

ОЧИСТКА ЩЕЛОЧНЫХ ВЫСОКОАКТИВНЫХ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ ОТ ЦЕЗИЯ НА СОРБЕНТЕ МАРКИ ФЕРСАЛ-МД

Маркова Д.В., Феоктистов К.А., Шайдуллин С.М., Козлов П.В., Зубриловский Е.Н.
(ФГУП «ПО «Маяк»», г. Озерск), Милютин В.В. (ИФХЭ РАН, г. Москва)
e-mail: cpl@po-mayak.ru

При переработке отработавшего ядерного топлива реакторов образуется значительное количество радиоактивных отходов. Особой экологической проблемой являются радиоактивные отходы, накопленные до внедрения современных технологий их переработки и иммобилизации. На ФГУП «ПО «Маяк»» с 1986 г. в емкостях-хранилищах радиохимического завода содержится около 14 тыс. м³ щелочных высокоактивных пульп [1]. Традиционно переработка радиоактивных отходов включает их извлечение из емкостей, подготовку к захоронению, консервацию пунктов хранения и другие требуемые меры для повышения безопасности радиационного объекта [2].

В настоящее время накопленные радиоактивные отходы емкостей-хранилищ ПО «Маяк» представляют собой щелочные системы, включающие осадок и осветленный раствор. На предприятии разрабатываются технологии разделного извлечения и переработки осадочной и растворной части отходов. Растворная часть отходов включает в себя высокоминерализованный щелочной раствор, активность которого обусловлена долгоживущим ¹³⁷Cs. Помимо это-

го, в растворе содержатся ⁹⁰Sr, ⁹⁰Y, ¹³⁴Cs, ¹⁵⁴Eu, а также уран и трансурановые элементы [3]. Переработка растворной части отходов предполагает селективное сорбционное извлечение основного дозообразующего радионуклида ¹³⁷Cs [4]. Проведение этой операции позволит снизить суммарную активность отходов и на следующих этапах переработки осуществить их иммобилизацию методом цементирования. Перевод жидких радиоактивных отходов в устойчивую матричную форму способствует повышению безопасности при их дальнейшем долгосрочном хранении и захоронении.

Среди множества подходов, используемых для очистки жидких радиоактивных отходов, особое внимание привлекает сорбция на неорганических ферроцианидных поглотителях. Такие сорбенты способны избирательно извлекать цезий из растворов, содержащих значительное количество конкурирующих ионов, таких, как натрий и калий. Этот вид сорбента производят в гранулированной и мелкодисперсной форме. Для использования в динамических условиях ферроцианидные сорбенты изготавливают в гранулированном виде. Для увеличения механи-