

ПЛАЗМЕННАЯ СЕПАРАЦИЯ ОЯТ – ОДИН ИЗ ВОЗМОЖНЫХ ПУТЕЙ РЕШЕНИЯ ПРОБЛЕМЫ ЗАМКНУТОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВНОГО ЦИКЛА

В.Б. Юферов, А.М. Егоров, В.О. Ильичева, С.В. Шарый, К.И. Живанков
Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,
Харьков, Украина
E-mail: v.yuferov@kipt.kharkov.ua

Рассмотрены особенности плазменной переработки отработанного ядерного топлива (ОЯТ) на стадии ионизации. Рассмотрена возможность сепарации актиноидов плазменным методом с использованием имитационных сред. Приводится сравнение энергозатрат различных методов для сепарации ОЯТ.

Одной из составных частей замкнутого ядерного топливного цикла (ЗЯТЦ) является переработка отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Так как наиболее токсичными отходами являются долгоживущие продукты деления (ПД) и малые актиноиды (МА), накапливающиеся при работе реактора, то после извлечения ОЯТ из приреакторных бассейнов целесообразно провести разделение ПД и актиноидов. При этом актиноиды могут быть повторно использованы в качестве ядерного топлива (ЯТ), в частности, в виде МОХ-топлива. При разделении радиоактивность ОЯТ, связанная с ПД, снижается на 10%, и масса захораниваемых РАО уменьшается приблизительно в 20 раз по сравнению с выгруженным из реактора ОЯТ при выгорании топлива ~5%. В мире получила распространение радиохимическая технология переработки ОЯТ – пьюрек-процесс. Применение пьюрек-процесса при переработке ОЯТ приводит к образованию большого количества жидких радиоактивных отходов (РАО) [1]. Одним из альтернативных направлений является магнито-плазменная переработка ОЯТ преимуществами которой заключаются в отсутствии вторичных отходов, возможности сепарации в одном цикле, снижении вероятности неконтролируемых потерь и, как следствие, уменьшении загрязнения окружающей среды. Однако, плазменные технологии разделения элементов широкого спектра масс пока еще не отработаны. В настоящее время в ННЦ ХФТИ исследуются физические принципы магнитоплазменной сепарации многокомпонентной плазмы, имитирующей ОЯТ.

Магнитоплазменная переработка ОЯТ может включать 4 стадии разделения, на которых можно последовательно отделить ЯТ от ПД.

1 стадия (предварительная) – термодесорбция и испарение, когда из ОЯТ при термонагреве в вакууме извлекаются газы, легколетучие элементы и соединения.

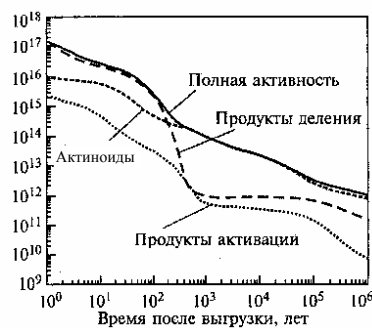
2 стадия – ионизация, при которой в первую очередь ионизируются элементы с малыми потенциалами ионизации и высокими сечениями ионизации (ионизация осуществляется низкотемпературными электронами, чтобы не продуцировать появление двухзарядных ионов урана).

3 стадия – собственно магнитоплазменное разделение ЯТ и ПД путем формирования потоков селективных ионов и их пространственной сепарации

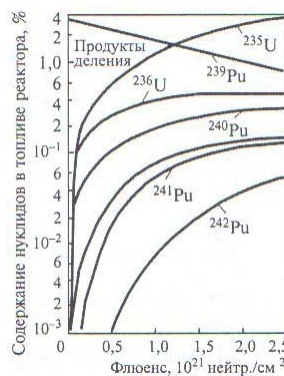
непосредственно в плазме с последующим ионно-плазменным осаждением в контролируемых локальных областях. При этом особое внимание должно быть уделено соблюдению условий невозникновения самопроизвольной цепной реакции (СЦР) в области ионно-плазменного осаждения продуктов, составляющих ядерное топливо (ЯТ).

4 стадия – ионизация, где может происходить отделение ядерного топлива от МА по разности потенциалов ионизации. Эта стадия предназначена для увеличения количества рециклов ЯТ.

На рис. 1 показаны: а – величины радиоактивности топлива (Бк) в зависимости от времени выгрузки из реактора ВВЭР-1000 и б – накапливаемые изотопы, уменьшающие количество рециклов ЯТ, – компоненты МОХ-топлива [1].



а



б

Рис. 1. Радиационные характеристики топлива, выгруженного из реактора (а), и накопление актиноидов (б)

Обобщая данные ОЯТ по массам и потенциалам ионизации [2, 3], возможно дать в относительных единицах количественную оценку по элементам, разделяемым на разных стадиях. Основные компоненты ОЯТ (уран и кислород) имеют потенциалы ионизации 6,2 и 13,6 В соответственно. Элементы, находящиеся в области двух пиков продуктов деления (рис. 2), имеющие потенциалы ионизации меньше потенциала ионизации урана (Rb, Cs, Sr, In,

Te, Ba) могут быть удалены на 1-й и 2-й стадиях переработки ОЯТ при нагреве до 800...1000 °С, когда упругости паров U и Pu лежат на уровне $\sim 10^{-8}$ Торр. Продукты деления в области второго пика, в частности лантаноиды, имеющие близкие к урану потенциалы ионизации, могут быть удалены на 3-й стадии переработки ОЯТ. Таким образом, актиноиды очищаются от части продуктов деления последовательно на каждой стадии.

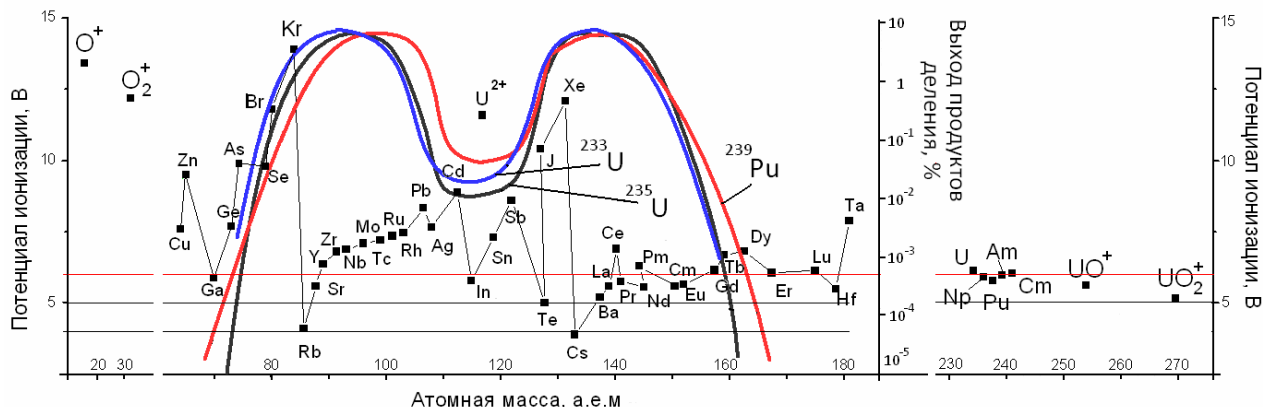


Рис. 2. Количественный выход ПД и потенциалы ионизации ОЯТ

Свойства плазмы ОЯТ определяются многокомпонентностью и наличием большого процентного состава молекулярных ионов. Энергетический анализ осложнен возможностью прямой передачи энергии электронов ионам через вращательные и колебательные состояния молекул и ионов. Окислы, входящие в ОЯТ, при переводе в плазму создают ионы типа UO_2^+ , PuO_2^+ , UO^+ , PuO^+ с молекулярными массами около 270 (возможны также и кластеры с $M = n \cdot 270$, при $n = 1, 2, 3, \dots$). Кроме того, ситуация осложняется возможностью протекания химических реакций и прилипанием электронов к электроотрицательным частицам [4]. Чтобы ионы урана U^{2+} не уходили вместе с однозарядными ионами ПД, необходимо минимизировать концентрацию двухзарядных ионов урана U^{2+} с потенциалом ионизации 12 В. Однако снижение электронной температуры приведет к появлению атомарного кислорода, рециклирующего в системе, что может увеличить роль процессов перезарядки и осаждения урана на стенках камеры, увеличивая опасность самопроизвольной цепной реакции (СЦР). Поэтому в области плазменного источника необходимы средства откачки атомарного и молекулярного кислорода.

Имитацию плазмы ОЯТ с учетом некоторых свойств возможно проводить, используя перевод в плазму простых соединений, таких как: CaO, MgO, Al_2O_3 или BaO, CsJ, CaO, Al_2O_3 и др., выбираемых согласно критериям, описанным в [5].

Проимитировать процесс отделения ЯТ от МА на 4-й стадии магнитоплазменной переработки ОЯТ возможно, используя в качестве имитационной среды элементы с близкими потенциалами ионизации, которые имеют ЯТ и МА, в частности пару элементов K–Na. Более точно имитационный процесс разделения может проводиться парой окислов:

KO–NaO. Кислород с энергией диссоциации $\varepsilon_d = 5,08$ эВ и потенциалами ионизации $\varphi_i = 12,1$ и 13,6 В для молекул и атомов при заданных условиях будет оставаться слабо ионизованным, поэтому процесс переноса в плазменной фазе должен дополняться процессом переноса в газовой фазе.

Реакции для имитационной среды K–Na:



Сечения ионизации щелочных металлов, производные $d\sigma/dE$ и схема ионизационного процесса представлены на рис 3 а, 3 б и 3 в соответственно.

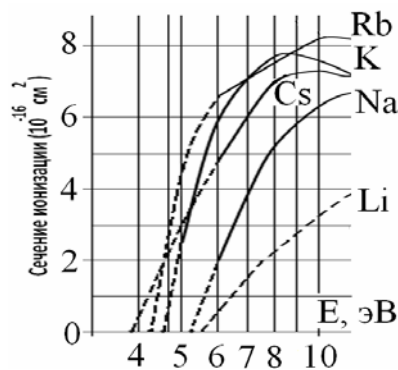


Рис. 3 а. Сечения ионизации щелочно-земельных металлов, выбранных в качестве имитаторов ОЯТ.

Сплошные кривые – данные [6]; пунктирные – проведенные нами экстраполяции к величинам потенциалов ионизации, где сечения ионизации $\rightarrow 0$

Данные по величинам $d\sigma/dE$ (см. рис. 3 б) требуются при выборе имитационных пар и определении скоростей ионизации.

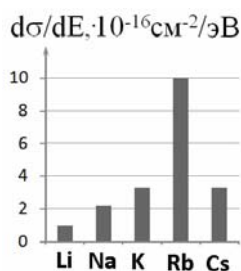


Рис. 3 б. Величины $d\sigma/dE$ вблизи потенциала ионизации щелочно-земельных металлов

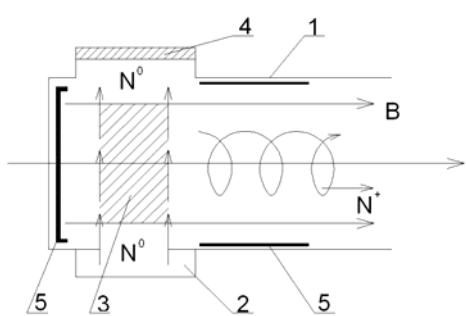


Рис. 3 в. Схема ионизационного процесса в ПИИ, включающего: 1 – камеру; 2 – испаритель; 3 – паровую струю, неионизованный конденсат; 5 – насосы для откачки кислорода

Смесь атомов двух элементов натрия и калия с парциальным составом 50/50 % на входе в плазменный источник (ПИИ) вводится поперек магнитного поля (см. рис. 3 в). Энергия электронов (5 эВ) задается в виде δ -функции. В условиях постоянной ионизации потока паров на границе плазмы возможно получить распределение электронов по энергиям с более высокой крутизной фронта в высокотемпературной части, чем в низкотемпературной, приближаясь к δ -функции.

С учетом процессов ионизации, рекомбинации, перезарядки и времени жизни плазмы для пары K–Na система дифференциальных уравнений имеет следующий вид:

$$dN_{\text{Na}}^+/dt = N_e N_{\text{Na}}^0 \sigma_i^{\text{Na}} v_e - N_e N_{\text{Na}}^+ k_p - N_{\text{Na}}^+ N_{\text{K}}^0 \sigma_{\text{п}}^{12} v_i + N_{\text{Na}}^0 N_{\text{K}}^+ \sigma_{\text{п}}^{12} v_i - N_{\text{Na}}^+ / \tau_1; \quad (7)$$

$$dN_{\text{K}}^+/dt = N_{\text{K}}^0 N_e \sigma_i^{\text{K}} v_e - N_e N_{\text{K}}^+ k_p - N_{\text{K}}^+ N_{\text{Na}}^0 \sigma_{\text{п}}^{21} v_i + N_{\text{K}}^0 N_{\text{Na}}^+ \sigma_{\text{п}}^{21} v_i - N_{\text{K}}^+ / \tau_2; \quad (8)$$

$$dN_e/dt = N_e N_{\text{Na}}^0 \sigma_i^{\text{Na}} v_e + N_{\text{K}}^0 N_e \sigma_i^{\text{K}} v_e - N_e N_{\text{K}}^+ k_p - N_e N_{\text{Na}}^+ k_p - N_e / \tau; \quad (9)$$

где $N_{\text{Na}}^0, N_{\text{Na}}^+$ – плотности нейтралов и ионов натрия; $N_{\text{K}}^0, N_{\text{K}}^+$ – плотности нейтралов и ионов калия; $N_{\Sigma}^0, N_{\Sigma}^+$ – суммарные плотности нейтралов и ионов всех фаз; $N_e = N_{\Sigma}^+$ – плотность электронов; σ_i – сечение ионизации i -й компоненты; $\sigma_{\text{п}}^{12}, \sigma_{\text{п}}^{21}$ – сечения перезарядки $\text{K}^+ - \text{Na}^0$ и $\text{K}^0 - \text{Na}^+$; v_e, v_i – скорости электронов и ион-нейтралов; k_p – коэффициент рекомбинации, τ – время жизни плазмы; τ_1, τ_2 – время жизни ионов натрия и калия соответственно и $\tau_1/\tau_2 \sim (M_{\text{K}}/M_{\text{Na}})^{0.5}$.

Баланс ионов калия связан с ионизационным членом, членами перезарядки $\text{K}^+ - \text{Na}^0$ и $\text{K}^0 - \text{Na}^+$ и временем жизни ионов калия. Рекомбинационные члены во всех уравнениях малы по сравнению с ионизационными и перезарядочными. Результаты расчета системы дифференциальных уравнений при $dN/dt = 0$ (постоянство плазменного потока) показали, что на выходе из ПИИ возможно получение отношения натрий/калий: 85/15 %. Это позволяет предположить, что с помощью ионизации возможно разделить ЯТ и малые актиноиды. Условием этого является создание специального источника плазмы с регулируемой функцией распределения электронов по энергиям.

Поскольку магнитоплазменная переработка ОЯТ предполагает процесс перевода ОЯТ в плазменную фазу, целесообразно оценить общие энергозатраты сепарационного процесса. В [7] были приведены величины энергетической «стоимости» иона, составляющие ~ 1 кэВ (ионизация и нагрев). Учитывая то, что основную часть плазмы ОЯТ составляют ионы урана, имеющие сравнительно малый потенциал ионизации (см. рис. 2), энергозатраты на создание плазмы ОЯТ могут быть около 500 эВ/ат. Однако энергозатраты на создание плазмы составляют лишь 10 % от общих энергозатрат. Для экспериментальной установки ДИС-1, имеющей суммарную мощность 21 кВт, были рассчитаны удельные энергозатраты магнитоплазменного разделения урана и плутония, которые составили 10^4 эВ/ат. (оптимизация энергозатрат на создание плазмы, магнитного поля и других систем не проводилась). Используя данные [3, 8, 9], возможно сравнить общие энергозатраты различных разделительных методов при допущении, что разделение ОЯТ эквивалентно процессу разделения $^{235}\text{U} - ^{238}\text{U}$.

Сравнительные затраты энергии для различных методов разделения изотопов, эВ/ат.

Электромагнитное разделение.....	$10^6 \dots 10^7$
Газовая диффузия (для $^{235}\text{U} - ^{238}\text{U}$).....	$3 \cdot 10^6$
Газовая центрифуга (для $^{235}\text{U} - ^{238}\text{U}$).....	$4,5 \cdot 10^5$
Диссоциация ИК-излучением (при КПД лазера 5...10 %).....	$10^2 \dots 10^3$
Ионизация атомов видимым или УФ-излучениями (при КПД лазера 0,5...1 %).....	10^3
Магнитоплазменное разделение.....	$\sim 10^4$

Из вышеприведенного видно, что энергозатраты электромагнитного метода разделения на два порядка превышают энергозатраты магнитоплазменного разделения. В то же время магнитоплазменное разделение по энергозатратам уступает лазерным методам разделения. Однако лазерные разделительные методы при достаточно высокой селективности имеют низкий КПД, и их затруднительно применять при разделении широкого спектра масс ОЯТ. Таким образом, магнитоплазменное разделение возможно рассматривать как перспективный физический метод переработки ОЯТ.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. И.М. Неклюдов. Обращение с отработанным ядерным топливом и радиоактивными отходами // *Ядерная энергетика*. Киев: «Наукова думка», 2006, с. 253.
2. В.О. Ильичева, В.Б. Юферов, О.С. Друй, С.В. Шарый. Сравнительный анализ сепарационных устройств для магнитоплазменной регенерации облученного ядерного топлива // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Ядерно-физические исследования»*. 2012, №4, с. 112-116.
3. В.Б. Юферов, В.О. Ильичева, О.С. Друй, С.В. Шарый. О некоторых особенностях магнитоплазменной переработки отработанного ядерного топлива // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Ядерно-физические исследования»*. 2012, №4, с. 191-193.
4. *Энциклопедия низкотемпературной плазмы* / Под ред. акад. В.Е. Фортова. М.: «Наука», 2000.
5. В.Б. Юферов, А.М. Егоров, С.В. Шарый, О.С. Друй, В.О. Ильичева, М.О. Швец, А.С. Свичкар, Т.И. Ткачева. О некоторых особенностях сепарационных устройств с вращающейся плазмой в скрещенных электрическом и магнитном полях // *Вісник НТУ ХПИ*. 2011, №60.
6. К. Барнетт, М. Харрисон. *Прикладная физика атомных столкновений. Плазма* / Пер. с англ. В.И. Пистуневич. М.: «Энергоатомиздат», 1987.
7. В.А. Жильцов, В.М. Кулыгин, Н.Н. Семашко, А.А. Сковорода, В.П. Смирнов, А.В. Тимофеев, Е.Г. Кудрявцев, В.И. Рачков, В.В. Орлов. Применение методов плазменной сепарации элементов к обращению с ядерными материалами // *Атомная энергия*. 2006, т. 101, в. 4, с. 302-306.
8. А.А. Орлов, А.В. Абрамов. *Разделение изотопов урана: Учебное пособие*. Томск: Из-во ТПИ, 2010, с. 160.
9. *Изотопы. Свойства. Получение. Применение* / Под ред. В.Ю. Баранова. М., 2005.

Статья поступила в редакцию 07.09.2012 г.

ПЛАЗМОВА СЕПАРАЦІЯ ВЯП – ОДИН З МОЖЛИВИХ ШЛЯХІВ ВИРІШЕННЯ ПРОБЛЕМИ ЗАМКНУТОГО ЯДЕРНОГО ПАЛИВНОГО ЦИКЛУ

В.Б. Юферов, О.М. Егоров, В.О. Ильичева, С.В. Шарый, К.І. Живанков

Розглянуто особливості плазмової переробки відпрацьованого ядерного палива на стадії іонізації. Розглянута можливість сепарації актиноїдів плазмовим методом з використанням імітаційних середовищ. Приведено порівняння енерговитрат різних методів для сепарації ВЯП.

PLASMA SEPARATION OF SPENT NUCLEAR FUEL – ONE OF POSSIBLE WAYS TO SOLVE A PROBLEM OF CLOSED FUEL CYCLE

V.B. Yuferov, A.M. Yegorov, V.O. Pichova, S.V. Shariy, K.I. Zhivankov

The peculiarities of plasma processing of spent nuclear fuel on the stage of ionization are under view. Possibility of actinoids' separation by plasma methods with use of imitation environments is considered. Comparison of energy losses for different spent fuel separation methods are presented.