



РОСАТОМ



ГОСУДАРСТВЕННАЯ КОРПОРАЦИЯ ПО АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ «РОСАТОМ»

«КОНДИЦИОНИРОВАНИЕ ВАО, ОБРАЗУЮЩИХСЯ В ОДЭК»

Докладчик:
Каленова М.Ю.

Цель – разработка инновационных подходов для комплексного решения проблемы обращения с ВАО, образующихся в ОДЭК

*В мире отсутствуют промышленноосвоенные технологии обращения со всеми типами ВАО ОДЭК

Особенности:

- ❑ Короткое время послереакторной выдержки ОЯТ**
- ❑ Потери ДМ в РАО не более 0,1 %**
- ❑ Относительно малая производительность ОДЭК**

Задачи:

- ❑ Обоснованный выбор технологий и соответствующего оборудования для кондиционирования РАО для МП ОДЭК**
- ❑ Экспериментальная отработка технологий, обеспечивающих окончательное удаление РАО, образующихся по комбинированной схеме**
- ❑ Разработка опытно-промышленных установок для проверки и обоснования технических решений для окончательного удаления ВАО МП ОДЭК**



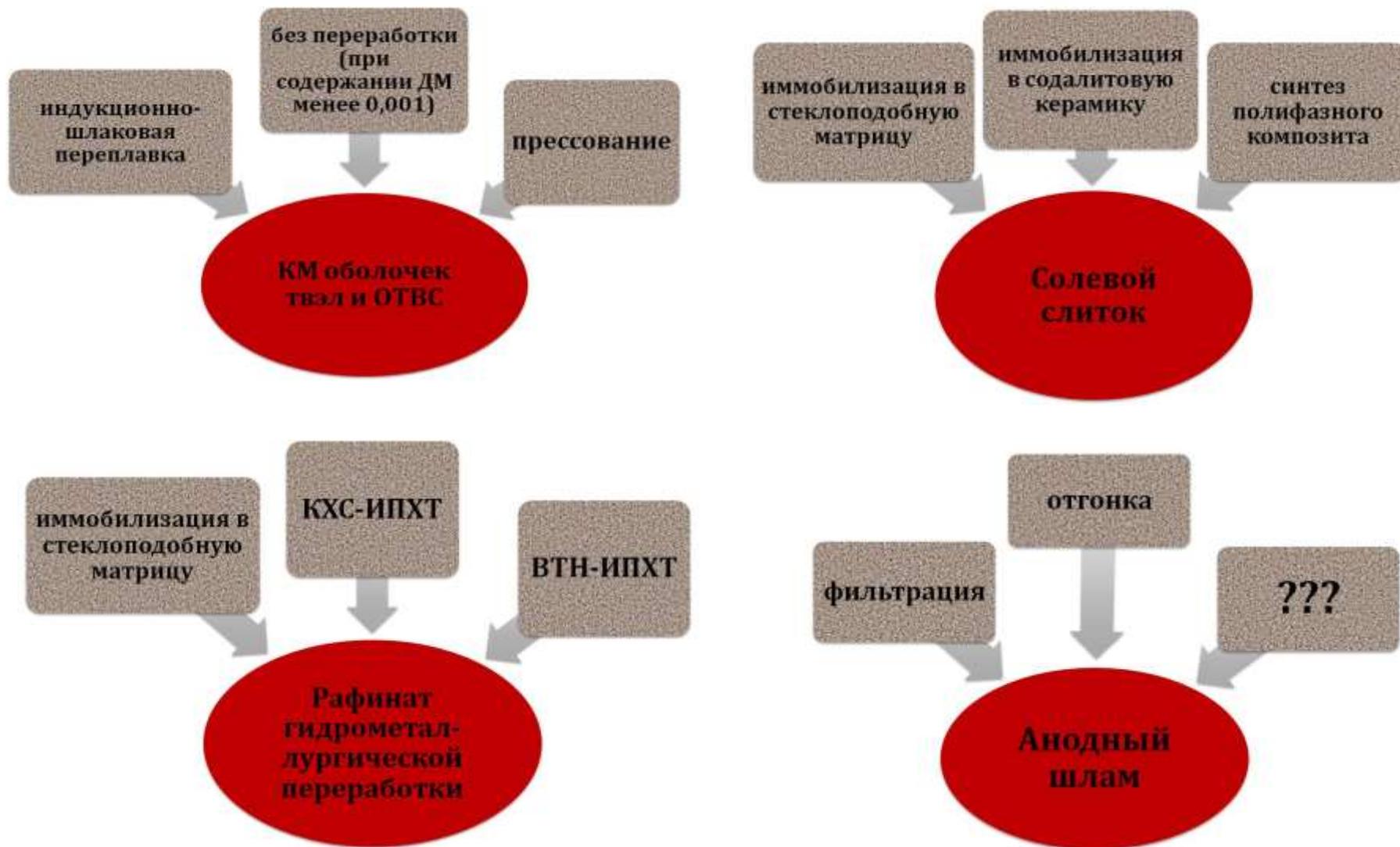


<i>Наименование РАО</i>	<i>Масса, кг/в год</i>	<i>Матрица/расфасовка в 100-литровые бидоны, шт в год</i>	<i>Энерговыделение, Вт/л</i>	<i>Изотопный состав</i>
КМ оболочек ТВЭЛ и ОТВС	2500	Металлическая матрица/4	7	Fe-55, Mn-54, Co-60, Nb-93m, Ni-63, H-3, Nb-94, Mo-93, Ni-59, Tc-99
<i>Анодный шлам</i>	100	Отработанные фильтры в бидон- контейнер/8	22	Tc-99, Tc-99m, Mo-(95-100), Zr-(90-96), Ru-(100-106), Rh-103, Rh-103m, Rh-106, Ag-109, Ag-110m, Ag-111, Pd-(104-108), Pd-110, Nb-95, Nb-95m
Солевой слиток	670	Борофосфатное стекло/70	1,4	Cs -(133-137), Rb-85, Rb-87, Sr-(88-90), Ba-134, Ba-136, Ba-137, Ba-137m, Ba-138, Ba-140, Y-90
<i>РЗ продукты деления</i>	70	Боросиликатное стекло/8	21	Ce-(140-142), Ce-144, Eu-(153-156), Gd-(155-158), Gd-160, La-(139,140), Nd-(142-150), Pm-147, Pr-141, Pr-(143, 144), Pr-144m, Sm-(147-154), Y-89, Y-91

ВАРИАНТЫ КОНДИЦИОНИРОВАНИЯ



POCATOM



Цель – снижение потерь делящихся материалов вместе с КМ

Решение

перевод ДМ в шлаковую фазу с использованием рафинирующей индукционной переплавки

Содержание компонентов в системе при использовании Fe_2O_3 в качестве окислителя						
Количество Fe_2O_3 , масс.%	UFe_2	UO_2	Np	NpO_2	Pu_xO_y	Am_2O_3
0,40	6,35E-04	8,74E-03	2,98E-06	0	1,69E-03	2,76E-05
0,43	0	9,23E-03	0	3,38E-06	1,71E-03	2,75E-05

Для максимального снижения концентрации ДМ в КМ следует использовать избыток Fe_2O_3 сверх стехиометрии в 2 – 2,5 раза относительно содержащегося урана.

При увеличении окислительного реагента будет происходить образование лишних побочных оксидов, т.е. повышается количество твердофазных продуктов – Cr_2O_3 . В случае «недобора» избытка окислителя уран и нептуний будут оставаться в системе в виде металлов, что недопустимо.

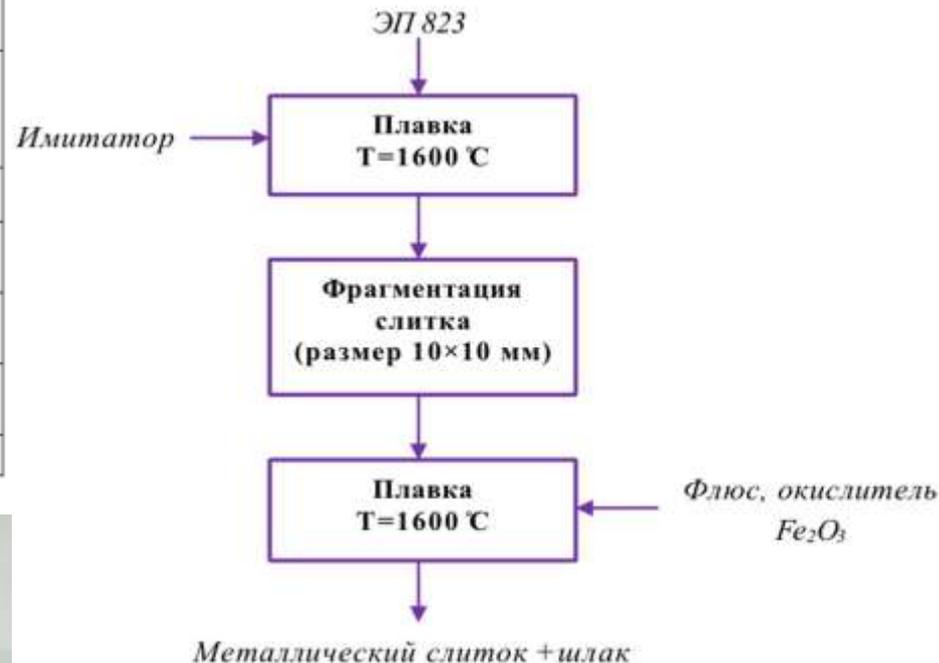
Результаты экспериментов по очистке КМ методом окислительного шлакования

Металл	Степень очистки, %
Nd	99,80
Ta	97,00
U	99,57
U	99,82

** Исходное содержание имитатора ДМ - 1 %

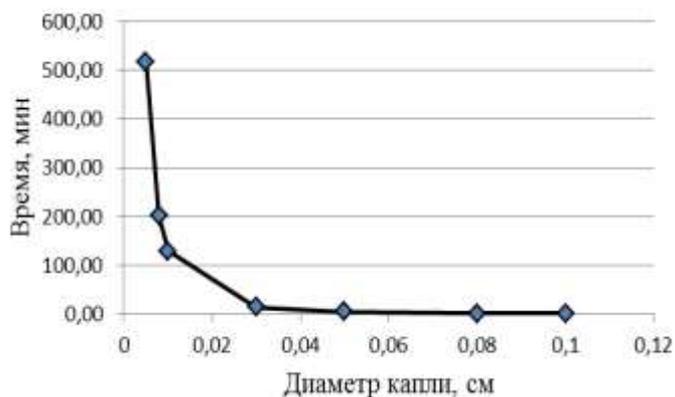


Схема проведения эксперимента



Контроль на содержание ДМ (не менее 0,001 %) в исходном материале
 Контроль на содержание нитридов (не более 15 %) в исходном материале

Температура процесса	1600 – 1700 °С	<i>Метасиликат алюминия</i> <i>Боросиликатное стекло</i> <i>Кальциевый флюс</i>
Время выдержки	160 – 200 мин	

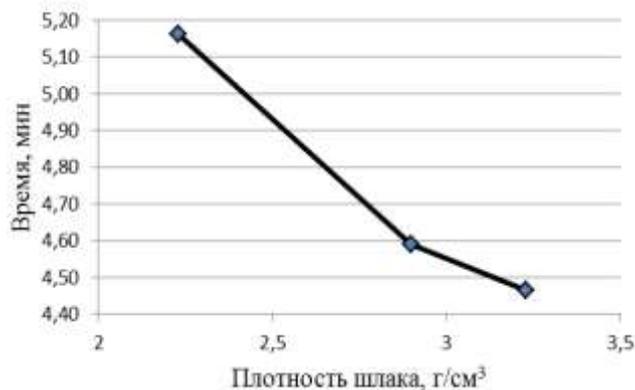


Достигнутые максимальные степени очистки стали ЭП823 с использованием в качестве флюса боросиликатного стекла от имитатора (неодим), которые соответствуют предъявляемым требованиям

Задача – выбор оптимального состава флюса

Требования:

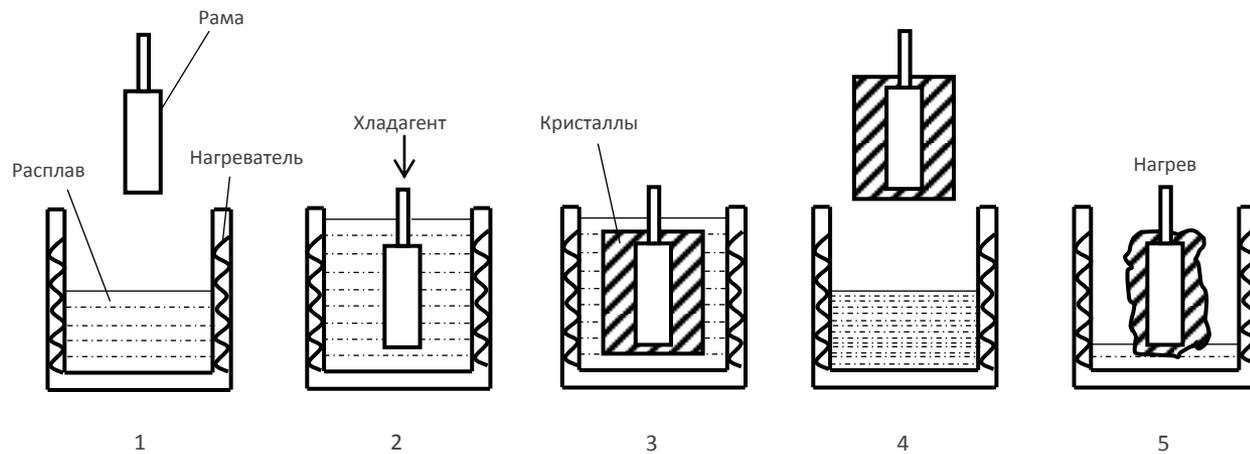
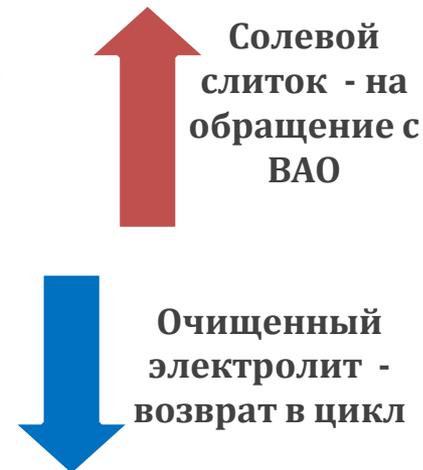
- температура плавления не более 1400 °С
- возможность извлечения ДМ гидрометаллургическим способом
- низкая плотность



Метод направленной кристаллизации принят в качестве основного для очистки электролита от примесей ЦМ и ЦЗМ ПД



Результат – коэффициент очистки 10 по сравнению с исходным содержанием ЦМ и ЦЗМ



Оптимальная скорость направленной кристаллизации
3 – 5 мм/час

баковый метод НК

Цель – разработка технологии, обеспечивающей долговременное хранение/захоронение конечной формы ВАО, с учетом использования малогабаритного оборудования в высоких радиационных полях

<i>Элемент</i>	<i>Масса, кг/т ОЯТ</i>	<i>Активность, Бк/т ОЯТ</i>	<i>Энерговыделение, кВт/т ОЯТ</i>
Cs	5,6E+00	9,02E+15	1,15E+00
Rb	3,0E-01	2,58E+11	3,15E-05
Sr	6,6E-01	2,99E+15	1,58E-01
Ba	2,1E+00	5,14E+15	5,45E-01
K	2,72E+01	-	-
Li	7,5E+00	-	-
Cl	5,25E+01	-	-

Факторы:

- техническая реализуемость процесса
- экономика
- устойчивость
- объем конечных продуктов

ВАРИАНТЫ:

- стеклоподобная матрица
- минералоподобная матрица (композит)
- «содалит в стекле»

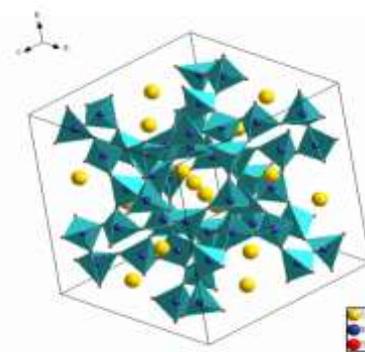
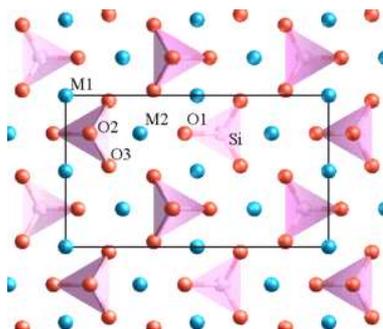
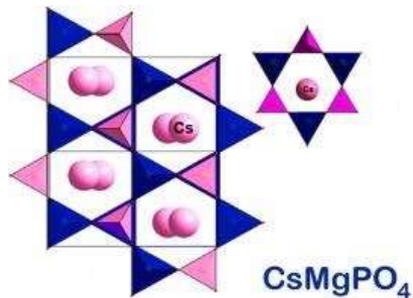
Процесс основан на последовательном введении минералобразующих добавок, связывающих компоненты нерециклируемого электролита в полифазный композит

I - фазы со структурами **хлорапатита, оливина и тридимита**

II - фазы со структурами **хлорапатита и поллукита**

могут быть рекомендованы для иммобилизации нерециклируемого электролита в экологически устойчивый продукт для длительного хранения/захоронения

количество включений
BAO – 8 – 9,5 масс. %



Кристаллохимический подход

Скорость выщелачивания (динамический режим, 90 °С, 14 сут), г/см² сут:

Композит I Li – $9,2 \times 10^{-4}$; K – $1,2 \times 10^{-2}$; Cs – $1,7 \times 10^{-4}$; Ca – $7,3 \times 10^{-5}$; Sr – $2,5 \times 10^{-4}$; Cl – $5,1 \times 10^{-4}$

Композит II Li – $2,74 \times 10^{-3}$; K – $2,11 \times 10^{-5}$; Cs – $1,7 \times 10^{-4}$; Ca – $3,37 \times 10^{-6}$; Cl – $1,8 \times 10^{-4}$

«СОДАЛИТ В СТЕКЛЕ»

- **многостадийность**
- **высокотемпературные процессы**
- **низкая производительность**



Тип фритты	Содержание имитатора, масс. %	Соотношение цеолит/стеклофритта, окклюзия, масс. %
Боросиликатная	10	50/50
	10	70/30
	6	50/50
	6	70/30
Борофосфатная	10	50/50
	10	70/30
	6	50/50
	6	70/30

количество включений нерециклируемого электролита ~ 5 масс. %

ОБРАЩЕНИЕ С НЕРЕЦИКЛИРУЕМЫМ ЭЛЕКТРОЛИТОМ (СОЛЕВОЙ СЛИТОК)

Схема остекловывания отработанного электролита с ПД (ЩМ и ЩЗМ)



- Доказана целесообразность использования БФС
- **Определена максимальная степень включения в БФС ВАО – 5 масс. %**
- Выбран плавитель – печь с холодным тигелем
- Определена температура процесса – 750 °С
- Оценены потери элементов при варке БФС в плавителе, масс. %: хлор-2,5; Cs-0,7; К-0,46; Li-0,11

оптимальный состав БФС, масс. %:

Na_2O – 30,7; P_2O_5 – 51,5; Al_2O_3 – 14,8; V_2O_3 – 3,0

Вариант переработки - включение в боросиликатное стекло в индукционной печи с холодным тиглем с использованием жидкостного флюсования

Состав модельного рафината		
Наименование компонента	Количество, кг/т	Содержание, масс. %
La (La_2O_3)	1,68 (1,97)	13,0 (12,15)
Ce (Ce_2O_3)	2,97 (4,6)	23,0 (28,4)
Nd (Nd_2O_3)	8,24 (9,63)	63,9 (59,4)
	Σ 12,89 (16,2)	Σ 99,9 (99,95)

ОСНОВНЫЕ ДОСТОИНСТВА:

- многоцелевое использование оборудования
- отсутствуют прекурсоры
- процесс отработан в масштабе
- минимальные потери



Цель – фильтрационная очистка анодного кадмия от шлама РБМ

Элемент	Масса, кг/т ОЯТ	Активность, Бк/т ОЯТ	Энерговыведение, кВт/т ОЯТ
Tc	1,17E+00	3,71E+11	9,91E-06
Mo	4,58E+00	4,25E-04	3,68E-20
Zr	3,75E+00	4,50E+15	6,16E-01
Ru	4,43E+00	2,29E+16	2,05E-01
Rh	1,33E+00	2,27E+16	5,45E+00
Ag	3,59E-01	1,34E+14	5,98E-02
Pd	3,49E+00	1,27E+10	1,89E-08
Всего	20,2	5,03E+16	6,33E+00

Проблема:
отсутствуют достоверные данные по количеству и составу анодного шлама

Для утилизации фильтров анодного кадмия разработан фильтр-контейнер, позволяющий размещать отработавшие фильтры в унифицированных для площадки ОДЭК 100-литровых контейнерах для тепловыделяющих ВАО

При содержании АШ ~ 10 масс. % расплав кадмия теряет свои свойства

на сегодня – существует ли потребность в разработке технологии для обращения с анодным шламом?

Процесс переработки ОЯТ сопровождается различным распределением компонентов АШ между кадмием и электролитом

электролит

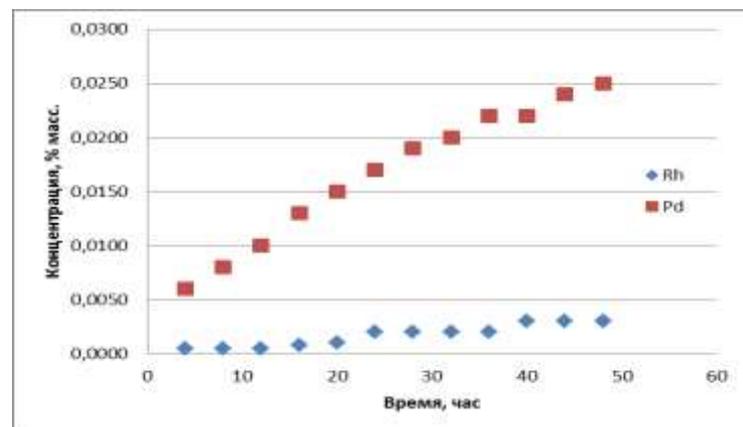
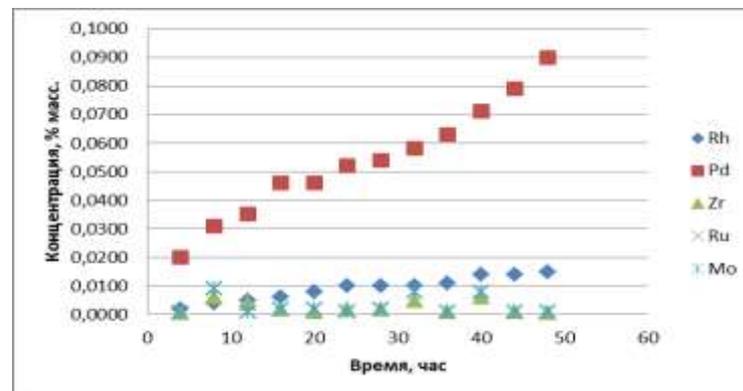
- молибден
- технеций (рений)

граница раздела фаз

- молибден
- технеций (рений)

расплав кадмия

- платиноиды



в результате фильтрации на сетке остаются две фазы: 1 – порошкообразная, состоящая из молибдена и рения, 2 – сплошная, состоящая из ИМС платиноидов с кадмием. Таким образом, получится отделить технеций с молибденом от других компонентов АШ

- *разработаны проекты (ТП) на всю линейку оборудования обращения с ВАО для ОДЭК*
- *соблюдены основные принципы: малогабаритность, модульность, возможность дистанционной замены и утилизации отдельных узлов при авариях или выработке ресурса*
- *определены основные методы переработки ВАО*

Перспектива: отработка принятых технологических решений по кондиционированию ВАО, образующихся в ОДЭК, на полномасштабных макетах



СПАСИБО ЗА ВНИМАНИЕ!