

УДК 621.039.736

Остекловывание радиоактивных материалов с использованием энергии СВЧ излучения

The vitrification of radioactive materials by using microwave energy

А.В. Васильев
канд. техн. наук

А.Н. Лагунов
канд. пед. наук

ФГБОУ ВО Сибирская
пожарно-спасательная
академия ГПС МЧС России

A.V. Vasilyev
Ph. D. of Engineering Sciences

A.N. Lagunov
Ph. D. of Pedagogic Sciences

FSBEE HE Siberian Fire
and Rescue Academy
EMERCOM of Russia

Аннотация:

В статье описывается проблема обращения и утилизации радиоактивных отходов (РАО), накопленных за десятилетия производства в СССР оружейного плутония. Отмечены недостатки освоенной в нашей стране аппаратурно-технологической схемы остекловывания радиоактивных отходов в керамическом плавителе ЭП-500 на ПО «Маяк» (Челябинская область). Перечислены преимущества сверхвысокочастотной (СВЧ) энергии как источника тепла. Проанализировано современное состояние использования технологии кондиционирования РАО с использованием энергии СВЧ излучения в различных странах мира. Приведены технологические параметры полупромышленной СВЧ установки, разработанной коллективом сотрудников Горно-химического комбината (г. Железногорск) и ряда научно-исследовательских организаций России для остекловывания РАО, хранящихся в емкостях-хранилищах ГХК.

Ключевые слова: радиоактивные отходы (РАО), остекловывание РАО, использование СВЧ энергии в мировой практике, технологические параметры, степень поглощения СВЧ энергии обрабатываемым материалом.

Abstract:

The problems of handling and disposal of radioactive waste (RW) accumulated over decades of weapons-grade plutonium production in the USSR are described in the article. The disadvantages of the current facility for RW vitrification in the ceramic melter EP-500 at the "Mayak" (Chelyabinsk region) are noted. The advantages of microwave energy as a heat source are listed. The current state of the use of RW conditioning technology using microwave energy in different countries of the world is analyzed. The developed technological parameters of the semi-industrial microwave unit presented by a team of employees of the Mining and chemical combine (Zheleznogorsk) and a number of Russian research laboratories for RW vitrification of the sludge stored in the MCC tanks.

Key words: radioactive waste (RW), RW vitrification, the use of microwave energy in the world practice, technological parameters, the degree of absorption of microwave energy by the processed material.

В настоящее время наиболее актуальной проблемой радиохимического производства являются вопросы обращения с технологическими отходами. После окончания Второй мировой войны в Советском Союзе менее чем за 10 лет было создано крупномасштабное производство ядерных материалов (в первую очередь урана-235 и плутония-239). В

условиях нехватки времени все усилия ученых и инженеров были направлены на разработку технологии получения урана и плутония. Вопросам обращения и утилизации отходов, образующихся при этом, уделялось недостаточно внимания. Жидкие радиоактивные отходы (ЖРО) высокого и среднего уровня активности, образующиеся при производстве плутония, удалялись либо в открытые водоемы (на ПО «Маяк» в Озерске), либо — в подземные пласты-коллекторы (на Сибирском химическом комбинате в г. Северске и на Горно-химическом комбинате (ГХК) в г. Железногорске). Для промежуточного хранения ЖРО и осветления растворов перед удалением, а также для длительного хранения высокоактивных растворов и суспензий на радиохимических предприятиях России используются емкости-хранилища (далее — емкости) повышенной вместимости (на ГХК — это емкости объемом 3200 и 8500 м³). Дальнейшее хранение этих отходов в емкостях опасно из-за наличия коррозионно- и взрывоопасных факторов [1]. В связи с выводом из эксплуатации объектов по производству оружейного плутония на ГХК поставлена задача по освобождению емкостей от радиоактивных отходов с их последующей переработкой и надежной изоляцией [2].

Современная концепция обращения с высокоактивными отходами (ВАО) предполагает их иммобилизацию, то есть включение в труднорастворимые стекло- или минералоподобные матрицы [3].

Основным недостатком освоенной в России на ПО «Маяк» аппаратно-технологической схемы остекловывания радиоактивных отходов в керамическом плавителе ЭП-500 является невозможность переработки ряда коррозионно-агрессивных по отношению к молибденовым электродам соединений железа, никеля, хрома, платиноидов, ферроцианидов, составляющих основу хранящихся в емкостях ГХК суспензий. Кроме того, после выработки ресурса работы плавитель захоранивается на месте в виде «саркофага» [4].

Микроволновое плавление позволяет перерабатывать практически все отходы (кроме металлических). Кроме того, основной элемент нагревателя — СВЧ генератор располагается в «чистой» зоне. Непосредственно в контакте с радиоактивными отходами находятся лишь крышка плавителя и волновод, доступные для дистанционного обслуживания.

В настоящее время превалирующим методом во всем мире становится остекловывание ВАО.

В качестве источника тепла на промышленных установках остекловывания радиоактивных отходов используют индукционный нагрев (во Франции,

в Великобритании) или пропускание переменного тока через расплав (в России, в США). В последнее время ведутся интенсивные исследования по использованию энергии сверхвысокочастотных (СВЧ) электромагнитных колебаний, так как достигаемый при этом объемный нагрев изделия позволяет значительно интенсифицировать процесс термообработки, уменьшить площадь, занимаемую нагревательными устройствами, повысить экономические показатели процесса [5].

В отличие от традиционных способов подвода тепла, СВЧ энергия, обладая высокой проникающей способностью в неметаллические материалы, преобразуется в тепловую энергию, рассредоточенную по всему объему материала (объемный нагрев). Это позволяет подводить к обрабатываемым материалам и изделиям большую мощность при минимальном градиенте температуры. В этом случае скорость термических процессов не зависит от теплопроводности материала и поэтому значительно выше, чем при обычных способах энергоподвода через поверхность.

Поглощение СВЧ излучения наблюдается при облучении многих жидкостей и жидких растворов. Особенно сильное поглощение наблюдается в случае воды и водных растворов. Взаимодействие СВЧ излучения с твердыми образцами может сопровождаться его отражением, поглощением и прохождением через объем образца без ослабления.

Поглощение СВЧ излучения обусловлено действием двух факторов. Первый фактор связан с тем, что при наложении СВЧ поля движение диполей (полярных молекул или иных обособленных групп атомов) приобретает определенную ориентацию. Когда интенсивность СВЧ поля уменьшается, возникающая ориентация исчезает и восстанавливается хаотичность вращательного движения молекул, при этом выделяется тепловая энергия. При частоте 2,45 ГГц ориентация диполей молекул и их разупорядочение может происходить $4,5 \times 10^9$ раз в секунду, что приводит к быстрому разогреву образца.

Второй фактор, особенно важный для тепловыделения при СВЧ-воздействии в водных растворах, обусловлен направленной миграцией присутствующих в растворе ионов под действием внешнего поля. Такая миграция ионов — это фактически протекающий через раствор электрический ток, силу которого можно обозначить через I . Прохождение тока через проводник с сопротивлением R приводит к выделению теплоты, пропорциональной IR^2 . Поскольку сопротивление возрастает с повышением температуры, а сила переносимого ионами тока — с увеличением их концентрации, то оба эти фактора

заметно влияют на тангенс угла диэлектрических потерь СВЧ излучения в растворах.

Глубина возможного проникновения СВЧ излучения в объем образца различна для разных материалов. Так, при частоте 2,45 ГГц она для твердых оксидных материалов составляет около 5 мм, для жидкой воды — около 3,5 см, а для стекол достигает нескольких метров.

СВЧ энергию можно легко передавать на любые расстояния практически без потерь. Это дает возможность осуществлять дистанционный нагрев.

Безынерционность этого вида энергии позволяет легко автоматизировать технологические процессы обработки и управление установкой.

В настоящее время в ряде стран в лабораторных условиях и на пилотных установках отрабатываются следующие операции с применением микроволнового нагрева:

- сушка, упаривание и денитрация: США, Япония, Великобритания, ФРГ, Швеция, Франция, Россия;
- кальцинация: США, Великобритания, Япония, Россия;
- сжигание ионообменных смол: Япония, США, Нидерланды;
- остекловывание: США, Великобритания, Россия;
- отверждение РАО в виде керамики и минералоподобных продуктов: Япония, США, Россия.

Работы проводятся как на модельных системах, так и на реальных отходах различного уровня активности [6,7].

В США с 1988 г. исследуют возможность использования СВЧ нагрева применительно к переработке отходов, содержащих трансурановые элементы с целью получения конечных продуктов, отвечающих требованиям предприятия по захоронению отходов Waste Isolation Pilot Plant (WIPP).

В Японии, на заводе в Токай с 1978 г. разрабатывался процесс микроволновой обработки отходов плутониевого производства. В настоящее время существующая установка позволяет отверждать в плавном материале все плутонийсодержащие отходы.

Приведенные данные свидетельствуют о том, что процесс отверждения жидких РАО с использованием в качестве источника тепла энергии СВЧ излучения исследуется многими ведущими в атомной промышленности странами, но процесс отверждения пульпообразных РАО остается практически неизученным [8-10].

На Горно-химическом комбинате с 1999 года совместно с сотрудниками ВНИИНМ (Москва), НИКИМТ (Москва), НПО РИ (Санкт-Петербург) проводились исследования процессов остекловывания радиоактивных материалов с использованием в качестве источника нагрева электромагнитного излучения сверхвысокочастотного диапазона [11-14]. Исследования проводились в защитной камере (далее — в горячей камере) центральной заводской лаборатории комбината. На рисунке изображена схема СВЧ установки, в таблице — ее характеристики. В качестве источника СВЧ излучения использовался высокочастотный генератор с рабочей частотой 2375 МГц и выходной мощностью 5 кВт. Рабочая камера размещалась в технологической зоне горячей камеры и позволяла проводить исследования с радиоактивными материалами. СВЧ генератор и средства контроля и управления находились в операторском помещении горячей камеры. Тигель из нержавеющей стали одновременно являлся контейнером для хранения отвержденного материала.

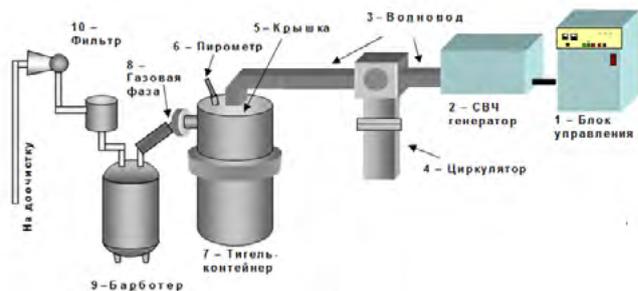


Рисунок – Схема СВЧ установки

Таблица – Характеристика СВЧ установки

Параметр установки	Значение параметра
напряжение питающей сети, В	220
общая потребляемая мощность, кВА	до 12
мощность СВЧ излучения, кВт	до 5,0
частота, МГц	2375 ± 50

В стойке блока управления (1) располагался трансформатор для преобразования сетевого напряжения в высокое напряжение питания магнетрона, а также приборы контроля за работой магнетрона и регулятор анодного тока магнетрона, определяющий выходную мощность СВЧ генератора. Основным элементом СВЧ генератора (2) являлся магнетрон «Хурма», преобразующий кинетическую энергию электронов в энергию электромагнитного излучения с частотой 2375 МГц. Волновод (3), по которому распространялась СВЧ волна, представ-

лял собой металлический рукав прямоугольного сечения с размерами сторон 45 и 90 мм. Циркулятор (4) с балластной водяной нагрузкой предназначался для поглощения отражённой от обрабатываемого материала СВЧ волны и предотвращения попадания этой волны в СВЧ генератор. К крышке плавителя (5) снизу пристыковывался тигель-контейнер (7) с обрабатываемым материалом. Для снижения теплотеря тигель-контейнер был окружен теплоизоляционным материалом (на рисунке не показан). На крышке плавителя размещались штуцера для установки пирометра (6) и отвода газовой фазы (8). В абсорбере (9), заполненном водным раствором гидроксида натрия, происходила абсорбция окислов азота, выделяющихся при кальцинации обрабатываемого материала. Далее газовая фаза пропускалась через фильтр (10) с перегородкой из ткани Петрянова и через побудитель разрежения эжектор (11) удалялась в заводской коллектор на дальнейшую доочистку и выброс в атмосферу.

Перед началом процесса остекловывания тигель-контейнер (7) герметично пристыковывался к крышке плавителя (5). В тигель-контейнер (7) загрузалась порция флюсованной пульпы. Включался эжектор (11) путём подачи в него сжатого воздуха, и в плавителе создавалось разрежение. Абсорбер (9) заполнялся водным раствором гидроксида натрия. Подавалась охлаждающая вода в циркулятор с балластной нагрузкой и в магнетрон. Затем на блоке управления (1) кнопкой включалась СВЧ установка. Регулятором анодного тока магнетрона устанавливалась необходимая мощность СВЧ генератора (2). С помощью пирометра (6) контролировали температуру поверхности расплава в тигле-контейнере. После достижения в тигле-контейнере температуры стеклообразования (для фосфатного стекла 900°C, для боросиликатного — 1200°C) выдерживали расплав в течение 30 минут, отключали СВЧ нагрев и после снижения температуры в тигле-контейнере до 500 °C подавали в тигель-контейнер следующую порцию пульпы. Затем процесс нагрева повторяли. После заполнения тигля-контейнера до 80 % его объёма стекломассой отключали СВЧ установку и тигель-контейнер опускали. При проведении одностадийного процесса остекловывания в тигле-контейнере обрабатываемый материал подвергался обезвоживанию, кальцинации, спеканию кальцината и включению его в стекломатрицу. Интенсивность каждой стадии процесса определялась мощностью СВЧ излучения, его частотой, характером взаимодействия обрабатываемого материала с электромагнитным излучением. Наплавление стекла проводили послойно. Концентрация твёрдой фазы в модельной пульпе варьировалась от 100 до

200 г/л. После флюсования эта величина увеличивалась до 200-400 г/л. Таким образом, доля включения компонентов пульпы в стекломатрицу составляла величину около 50 %. Процесс протекал преимущественно в три стадии. На первой стадии происходило выпаривание и сушка обрабатываемого материала, на второй – кальцинация, на третьей – проплавление кальцината до стеклообразной структуры. Лимитирующими стадиями процесса являлись кальцинация, а также непосредственно стеклообразование. Это подтверждалось значениями коэффициента стоячей волны по напряжению (КСВН), характеризующими степень поглощения СВЧ энергии обрабатываемым материалом.

Степень поглощения в значительной степени определялась электрическими свойствами обрабатываемого материала: диэлектрической проницаемостью ϵ и тангенсом угла диэлектрических потерь $\operatorname{tg}\delta$. Кроме того, на характер распространения электромагнитной волны в плавителе и на эффективность поглощения СВЧ поля оказывали влияние конструктивные особенности плавителя: его форма, геометрические размеры. Ещё одним фактором, определяющим степень отражения электромагнитной волны от поверхности обрабатываемого материала, являлся угол падения волны и состояние поверхности – от зеркальной поверхности отражение больше, чем от развитой поверхности твёрдого высушенного или кальцинированного продукта. Эти предположения нашли своё подтверждение в дальнейших опытах.

В результате выполненной работы проведены исследования процесса остекловывания пульпообразных радиоактивных материалов с использованием энергии СВЧ излучения. Технология остекловывания обеспечивает безопасность и защиту окружающей среды при нейтрализации радиоактивных отходов, накопленных в результате деятельности предприятий по производству ядерных материалов военного назначения.

Литература

1. Сорокин Ю.П., Логунов Ю.А., Костин Э.М. Концептуальные соображения по обращению с РАО ГРЗ. Отчёт ГХК, исх. № 13-38сп, 1993.
2. Прохоров Л.П., Борисов Г.Б., Агеенков А.Т. Изучение поведения при хранении отверждённых высокоактивных отходов в зависимости от свойств и условий хранения. Отчёт ГХК, ВНИИИМ, инв. № 8434, 1988.
3. ГОСТ 29114-91 «ОТХОДЫ РАДИОАКТИВНЫЕ. Метод измерения химической устойчивости отвержденных радиоактивных отходов по»

- средством длительного выщелачивания». Изд. Комитет стандартизации и метрологии СССР, М.
4. «Иммобилизация плутонийсодержащих материалов на ГХК». ТЕХНИКО-ЭКОНОМИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ. Общая пояснительная записка. ГИ ВНИПИЭТ Санкт-Петербург, инв. № 99 – 00956, 1999.
 5. Design and operation of high level waste vitrification and storage facilities. IAEA, Vienna, Austria, May, 1989.
 6. Roussy M.G., Pearce J.A. Foundations and industrial applications of microwave and radio frequency fields: physical and chemistry processes. John Wiley & Sons. Chichester - New York - Brisbane - Toronto - Singapore. 1995. 320 p.
 7. Booske J.H., Cooper R.F., Dobson I. Mechanisms for nonthermal effects on ionic mobility during microwave processing of crystalline solids. // J. Mater. Res. 1992. V. 7 P. 495 - 501.
 8. Пробоподготовка в микроволновых печах: Теория и практика / Под ред. Г.М. Кингстона и Л.Б. Джесси. М. : Мир, 1991, 336 с.
 9. Бердоносков С.С., Бердоносова Д.Г., Знаменская И.В., СВЧ излучение в химической практике, Химическая технология № 3, 2000, с. 2.
 10. Молохов М.Н., Куркумели А.А., Садковская О.Д. Материалы первого семинара по использованию СВЧ энергии в технологических процессах. М. 1983.
 11. Васильев А.В., Алой А.С., Борисов Г.Б., Молохов М.Н. и др. Иммобилизация радиоактивных отходов в фосфатную и боросиликатную матрицы // Материалы 6-й научно-технической конференции Сибирского химического комбината. Ч. 3. г. Северск, 2001, с. 103-108.
 12. Васильев А., Кудинов К., Бычков С. Локализация радионуклидов в стеклокристаллические материалы с помощью СВЧ нагрева // «Инновационные технологии 2001». Материалы международного научного семинара. 20-22 июня 2001 г, т. 2. г Красноярск, 2001, с. 105108.
 13. Васильев А.В., Алой А.С., Борисов Г.Б., Молохов М.Н. и др. Исследование процесса остекловывания радиоактивной пульпы с использованием СВЧ нагрева // Вопросы материаловедения, 2002. № 2, с. 29-35.
 14. Васильев А.В., Сибирцев С.Н., Назаров А.В. Исследование электромагнитных характеристик пульпы с флюсоующими добавками в СВЧ-диапазоне. Атомная энергия, т. 91, вып. 6, декабрь 2001, с. 458-463.