

1. Компактная установка двухстадийной высокотемпературной обработки горючих РАО (пиролиз с последующим дожиганием углерода) с производительностью порядка 2500кг/год .
2. Возможные направления исследований практического использования металлоглеродного композита

Стоимость приёма на переработку и долговременное хранение 1м³ РАО с 01.01.2011г. равняется 160 926,69 руб. (без НДС).. За год в институте накапливается 7,5-9,0м³ горючих РАО. Их ликвидация, с учётом стоимости перевозки, обходится около 2млн руб..

Из-за нерегулярного финансирования вывоза РАО нередки случаи переполнения пунктов временного хранения твёрдых РАО.

С введением в будущем Единой государственной системы обращения с РАО (ЕГС РАО) стоимость полной изоляции 1м³ низкоактивных ТРО может возрасти на 100 000руб.

В связи с вышесказанным было бы логичным перед отправкой на длительное хранение кондиционировать их с целью уменьшения объёма.

Компактная установка двухстадийной высокотемпературной обработки горючих РАО (пиролиз с последующим дожиганием углерода) с производительностью порядка 2500кг/год .

Разработана, изготовлена и смонтирована на базе:

- научно-технического отчёта «Кондиционирование радиоактивных отходов методом пиролиза-сжигания»; Капустин В.К.*
- патента на изобретение № 249877 «Способ кондиционирования твёрдых органических радиоактивных отходов»; Капустин В.К. Тихонов В.И.*

Установка предназначена для кондиционирования методом пиролиза-сжигания горючих твёрдых и жидких низкоактивных органических РАО, образующихся на НТП ФГБУ «ИИЯФ».

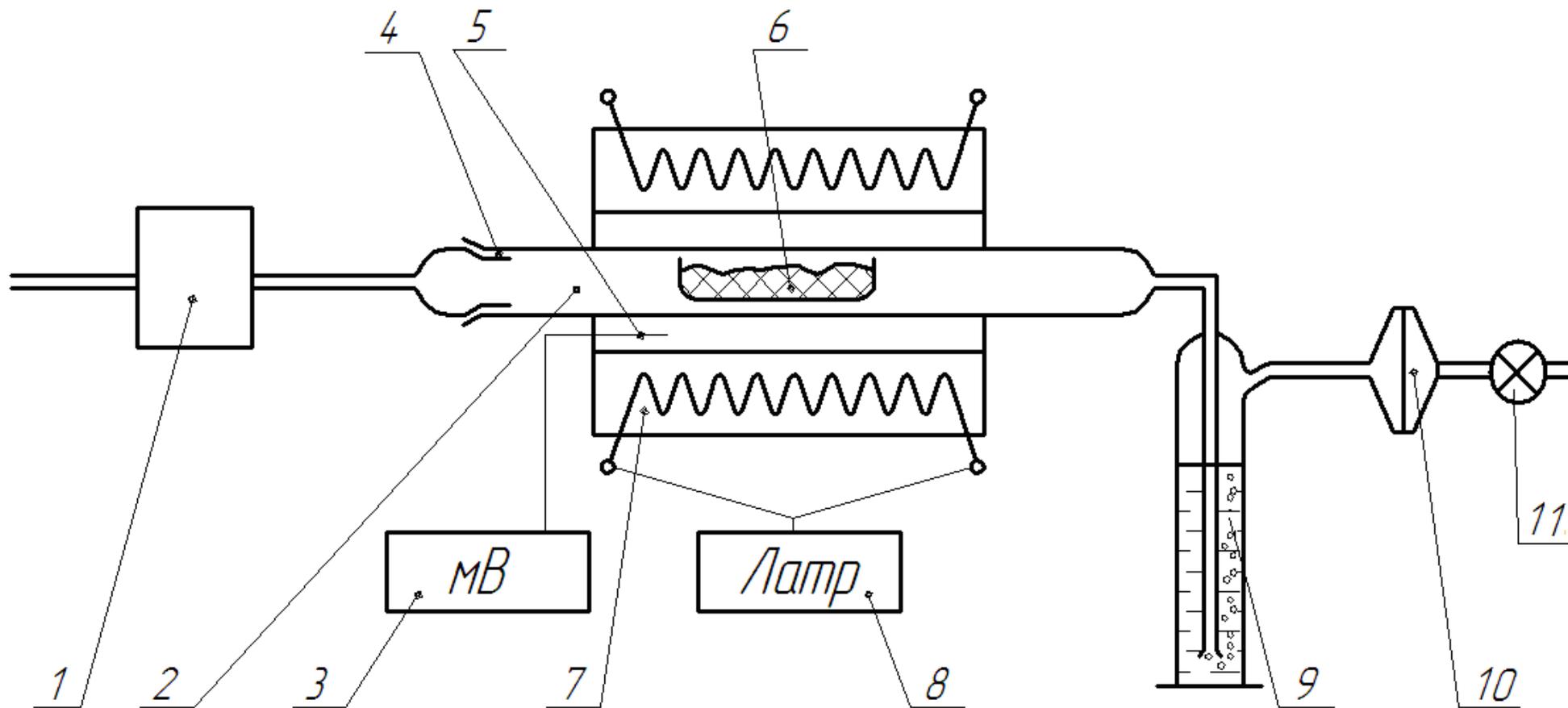
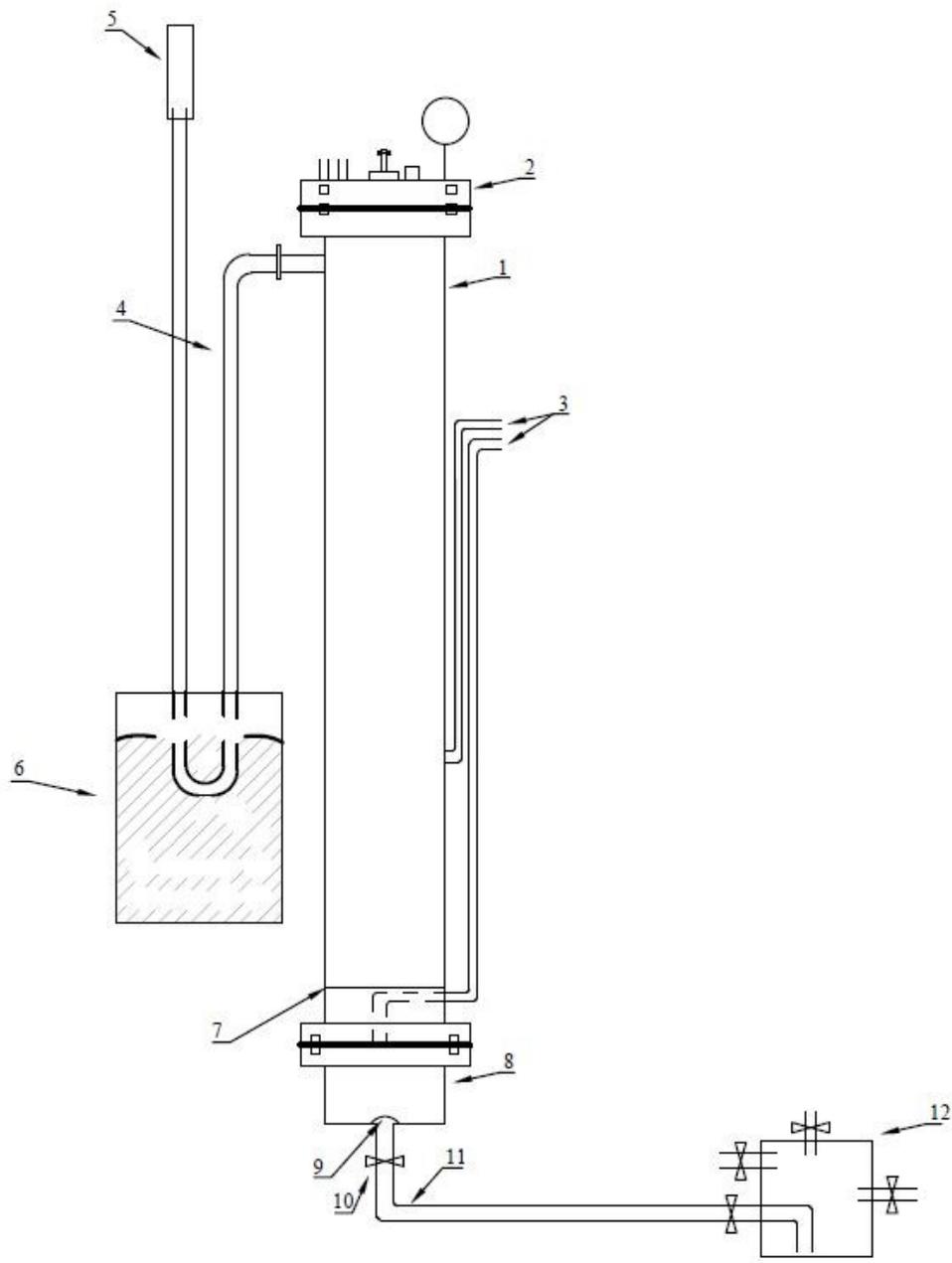


Рис.1. Лабораторная установка для сжигания горючих РАО.

1-ротаметр, 2-кварцевая трубка, 3-милливольтметр, 4-шлиф-кern, 6-кварцевая лодочка для образцов, 3-милливольтметр, 5-термопара, 7-трубчатая печь, 8-ЛАТР, 9-барботер с 0,1н раствором NaOH, 10-фильтродержатель с аналитическим фильтром АФА-РМП-20, 11-

Распределение радиоактивности (%). Т пиролиза 800С

материал	радионуклид	зола	ловушка	фильтр
Ткань х/б	Am-241	99,8	0,05	0,15
	Cs-137	76,0	21,7	2,3
Ткань х/б, смоченная 0,1н H ₂ SO ₄	Am-241	99,6	0,1	0,1
	Cs-137	97,5	0,5	2,0



1-камера термического разложения;

2-загрузочный люк с крышкой; 3-трубы

для подачи воздуха в верхнюю и нижнюю

зоны камеры термического разложения;

4-труба для отвода отходящих газов; 5 -

фильтр для очистки отходящих газов; 6 -

ёмкость с проточной водой для

охлаждения трубы с отходящими газами;

7 - колосник; 8- зольник - 8;

9 - отбойник; 10 - штуцер с запорным

вентилем; 11 - соединительный шланг; 12

- накопительная мерная ёмкость



Установка пиролиза - сжигания
1 — реактор; 2, 3, 4 — трубчатые электрические печи; 5 — крышка; 6 — трубки для слива воды, охлаждающей крышку реактора; 7 — манометр; 8 — подъемное устройство; 9 — металлорукава для отвода отходящих газов; 10 — стаканы фильтрующих устройств; 11 — термометры; 12 — ротаметр; 13 — запорный вентиль подачи сжатого воздуха; 14 — вентиль подачи сжатого воздуха в камеру сжигания пиролизных газов; 15 — вентиль подачи сжатого воздуха в зольник; 16, 17 — шланги, соединяющие вентили 14, 15 с трубками сжатого воздуха; 18 — трубка подачи жидких органических отходов в реактор; 19 — запорный вентиль; 20 — шланг для слива охлаждающей воды в канализацию; 21 — ёмкость с водой для охлаждения металлорукавов; 22 — шкаф автоматики; 23 — стапель; 24 — плита для крепежа нижней печи; 25 — верхняя плита стапеля для крепления подъемного устройства; 26 — клапан автоматического сброса избыточного давления.



Примеры конкретной реализации

Упаковку из грязной промасленной куртки весом 1кг пиролизовали, и дожгли коксозольный остаток по схеме сжигания ТРО. В результате образовалось 4,39г (0,4%) зольного остатка. Проскока дыма и аэрозолей по цвету наружной поверхности фильтра ФПП-15-1,5 обнаружено не было.

Сжигание жидких органических отходов.

Из мерной ёмкости передали сжатым воздухом 0,6кг минерального масла ИД-20 в зольник и произвели его пиролиз по схеме пиролиза - сжигания ЖРО. После этого в зольник было передано ещё 0,6кг масла ИД-20, пиролизовали его и произвели дожиг коксозольного остатка. Вес зольного остатка составил 0,1% от веса исходного масла.

Проскока дыма и загрязнения наружной поверхности фильтра не

№ п/п	Вес пробы, г	Материал	$T_{\text{пиролиза}}$ °C	$T_{\text{сжигания}}$ °C	$Q_{\text{воздуха}}$ м³/ч	Зольный остаток, % вес.	Унос Cs-137, %	Унос Am-241, %
1	2	3	5	6	7	8	9	10
1.	5,12	бязь	500	500	12,0	не опр.	0,3	$\leq 2 \cdot 10^{-2}$
2.	8,08	бязь	500	500	12,0	не опр.	0,4	$\leq 2 \cdot 10^{-2}$
3.	4,02	бязь	400	400	12,0	1,5	0,02	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
4.	6,10	бязь	400	400	12,0	1,3	0,09	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
5.	6,21	бязь	400	400	12,0	1,5	0,23	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
6.	4,90	бязь	300	300	12,0	1,8	0,12	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
7.	6,10	бязь	300	300	12,0	1,3	0,12	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
8.	3.52	пол.№960	400	400	12,0	2,9	0,06	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
9.	3,60	немецкий полимер	400	400	12,0	80,9	$\leq 3 \cdot 10^{-4}$	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
10.	5,32	батист	400	400	12,0	2,3	$\leq 1 \cdot 10^{-3}$	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
11.	3,11	фибрела	400	400	12,0	4,5	$\leq 1 \cdot 10^{-3}$	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
12.	5,01	батист	400	400	12,0	3,9	$\leq 1 \cdot 10^{-3}$	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$
13.	5.28	батист	400	400	12.0	2.1	$\leq 1 \cdot 10^{-3}$	$\leq 1 \cdot 10^{-2}$

- 1. Разработан способ кондиционирования горючих твёрдых и жидких РАО низкого и среднего уровня радиоактивности.**
- 2. Определены оптимальные условия процесса пиролиза-сжигания органических радиоактивных отходов**
- 3. Изготовлена компактная пилотная установка производительностью 2500кг/год, определены параметры её работы и эффективность переработки различных материалов, содержащих радионуклиды Cs-137 и Am-241. Использование этого способа может существенно облегчить проблему ликвидации малоактивных, но занимающих большой объём сгораемых радиоактивных материалов, которыми бывают перегружены предприятия, на которых проводятся работы по дезактивации оборудования, радиохимические работы и т.д.**
- 4. . Вес и объём зольного остатка уменьшаются в 50-100 раз**
- 5. Использование этого способа практически исключает попадание радиоактивных веществ в окружающую среду**

ИНСТРУКЦИЯ

по обслуживанию пилотной установки переработки органических радиоактивных отходов методом пиролиза-сжигания

Согласовано:

Начальник Управления ЯРБ	А.В. Коротынский
Начальник Управления ГО, ЧС и ПБ	В.Я. Сиротюк
Главный энергетик	О.А. Сорокина
Начальник ООТ	С.В. Свирин
Начальник Отдела ПБ Управления ГО, ЧС и ПБ	А.Г. Михайлов
Ответственный за электрохозяйство в ЦД УЭЯУ	Б.М. С

**Возможные направления
исследований практического
использования
металлуглеродного композита –
продукта пиролиза
дифталоцианинов металлов**

Способ получения :

Синтез и пиролиз дифталоцианинов в атмосфере аргона.



-для 4-х валентных d-элементов.

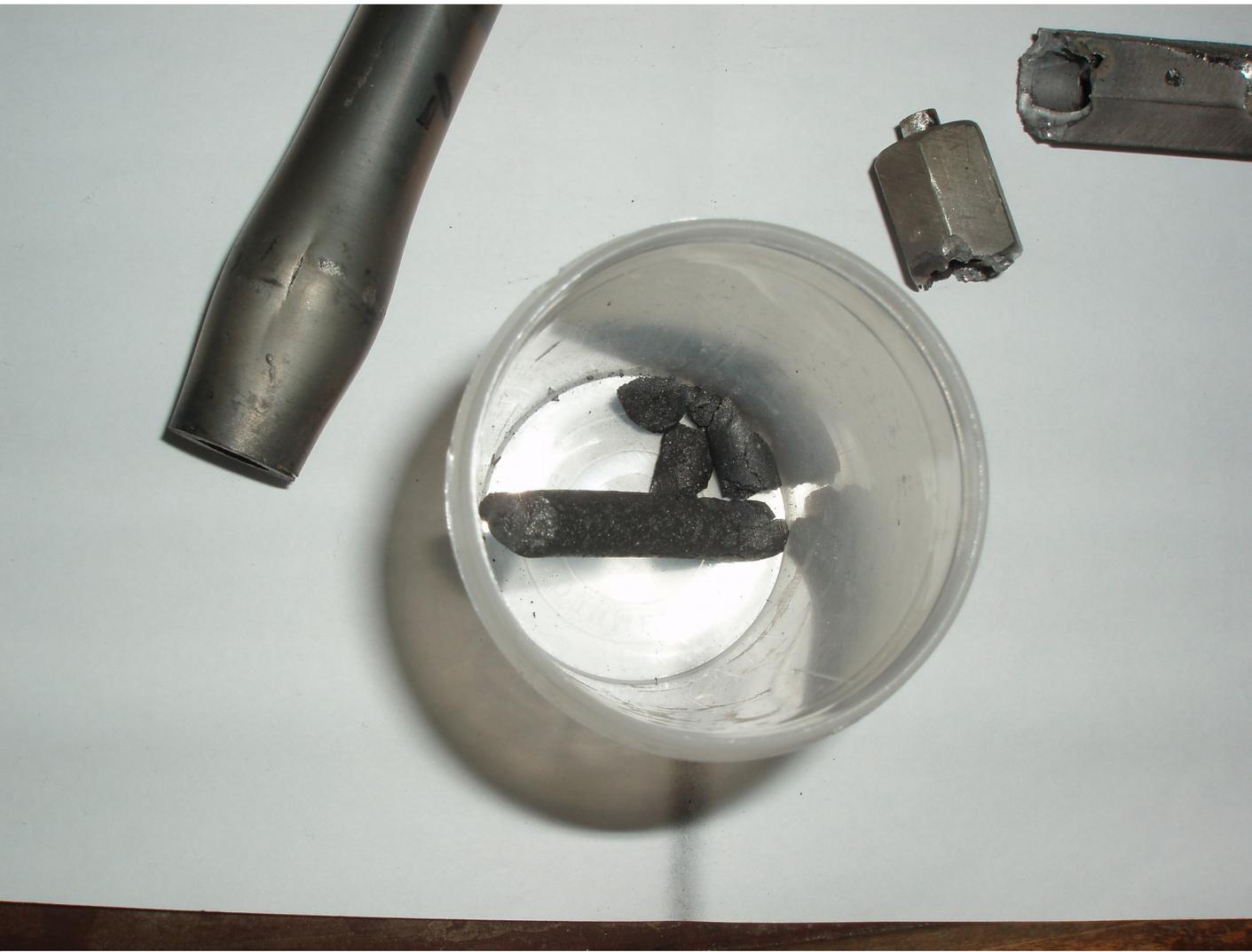


- для 3-х валентных элементов (РЗЭ и актиниды).

3. Для элементов, не образующих дифталоцианины, напр., Тс, I и др. – добавка в виде сухих солей в процессе синтеза РЗЭ.

Пиролиз \rightarrow $800\text{C}, \text{Ar} \rightarrow \text{Me}(\text{РЗЭ})\text{C}_x$ ($x \approx 35-40$)

4. Для газов (напр., Хе) – внедрение в углеродную матрицу под давлением в момент её образования.



Фотография углеродной матрицы с внедрённым йодом (в бюксе) и ампул из нержавеющей стали после проведения пиролиза.

Элементный состав YC_x (вес.%) после пиролиза



Температура, °C	углерод	водород	азот	иттрий
1000	74,85	0,48	4,32	20,2
1200	80,12	0.03	1,34	20,1
1400	82,11	0,10	0,62	19,6

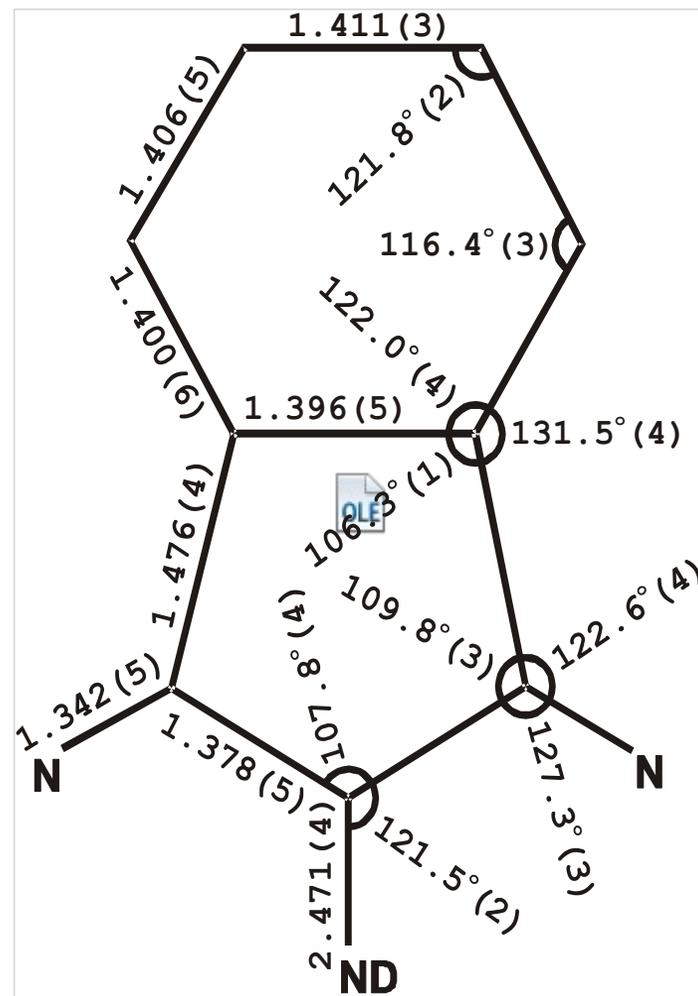
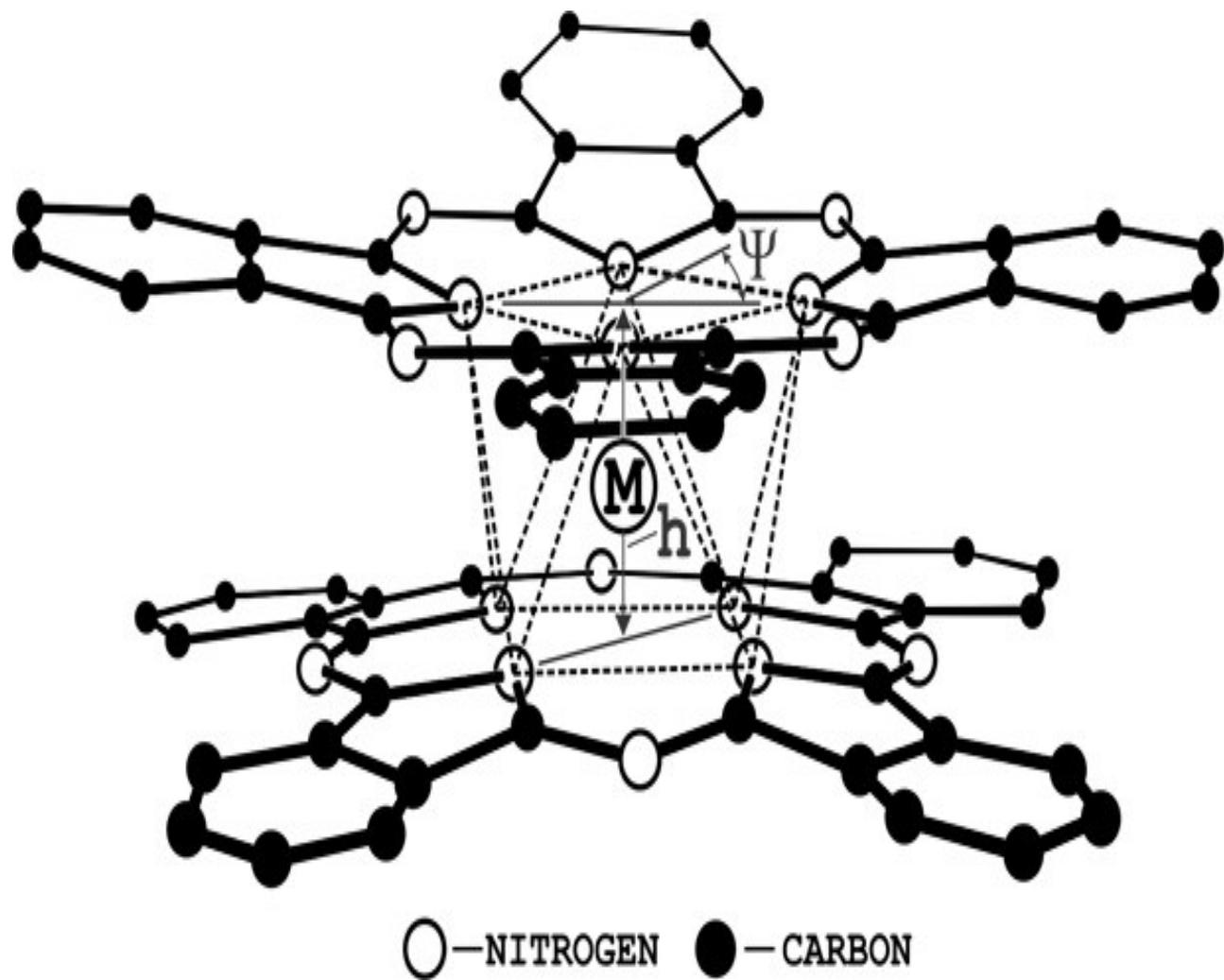
Свойства

Чёрного цвета конгломерат, иногда блестящий, по виду похож на вулканическую пемзу или на шунгит (минерал, содержащий от 40 до 80%(вес.) углерода.

плотность от 0,6 до 1 г/см³ в зависимости от металла и температуры пиролиза.

Эл. сопротивление пиролизата ДФЦ иттрия – 28 Ом•см

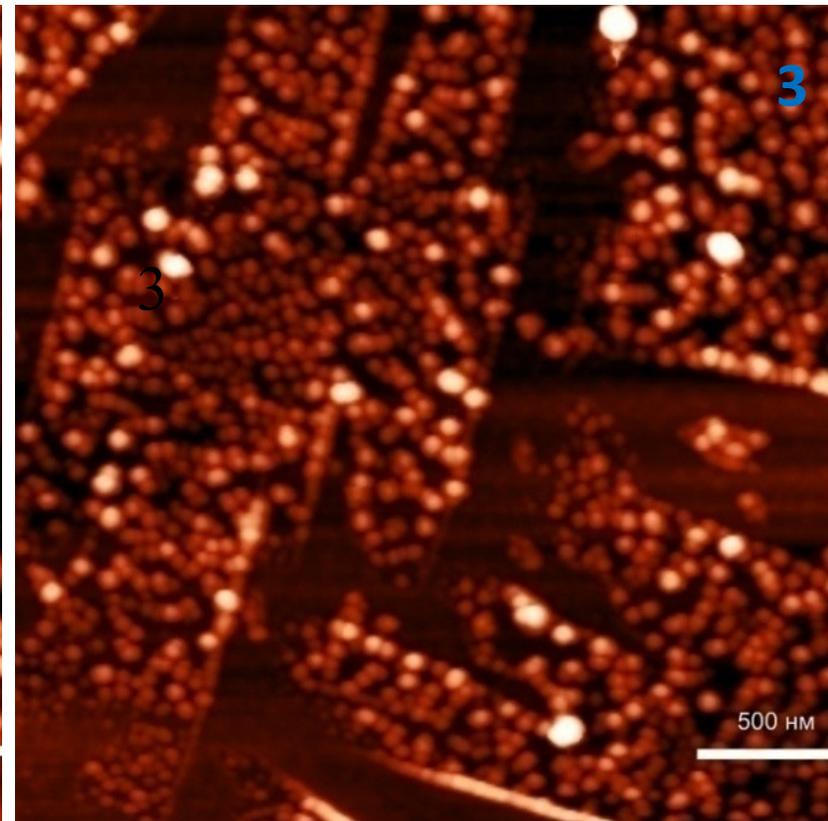
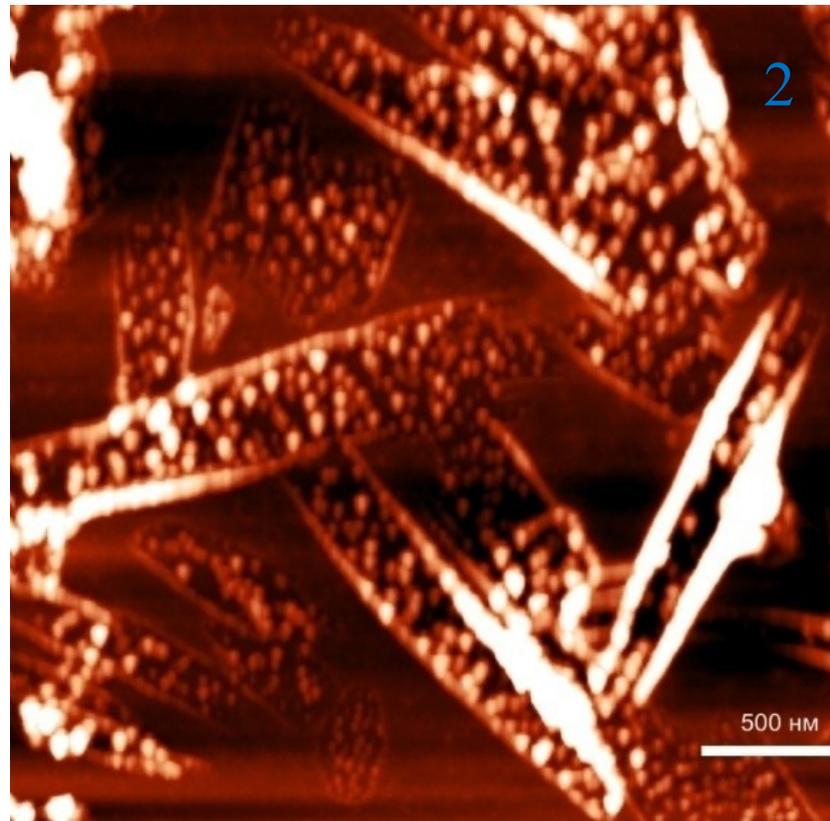
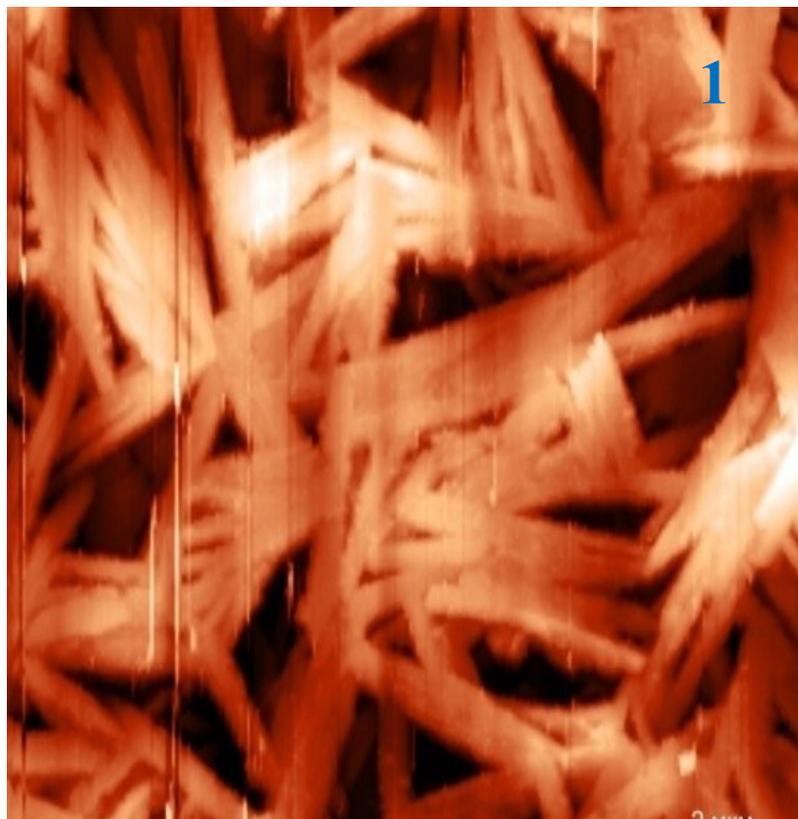
Структура молекулы дифталоцианина и лиганда



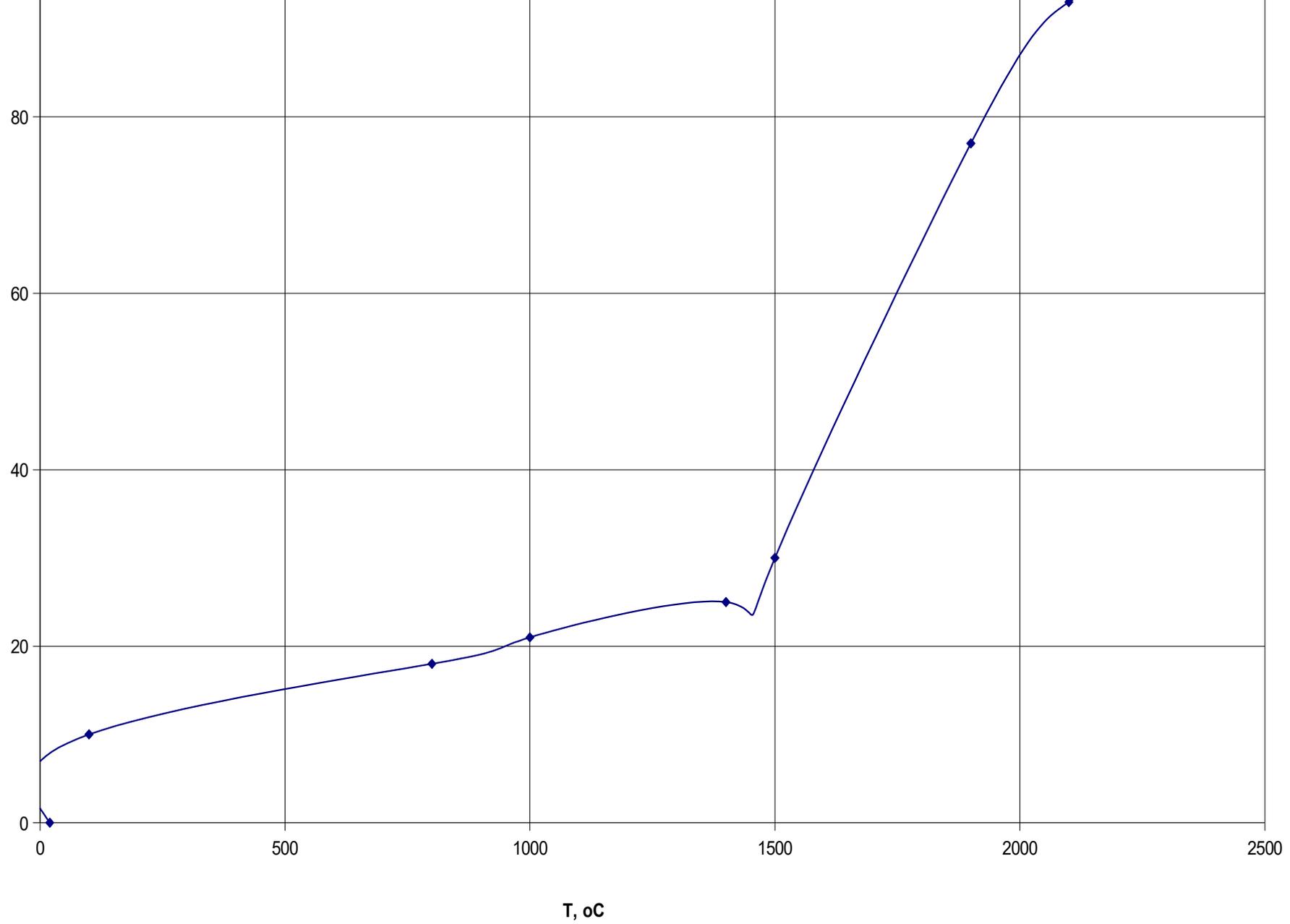
Формирование структуры пиролизата. Кристаллы исходного ДФЦ иттрия(1), пиролиз 790С (2) и пиролиз 850С (3).

500×500 нм

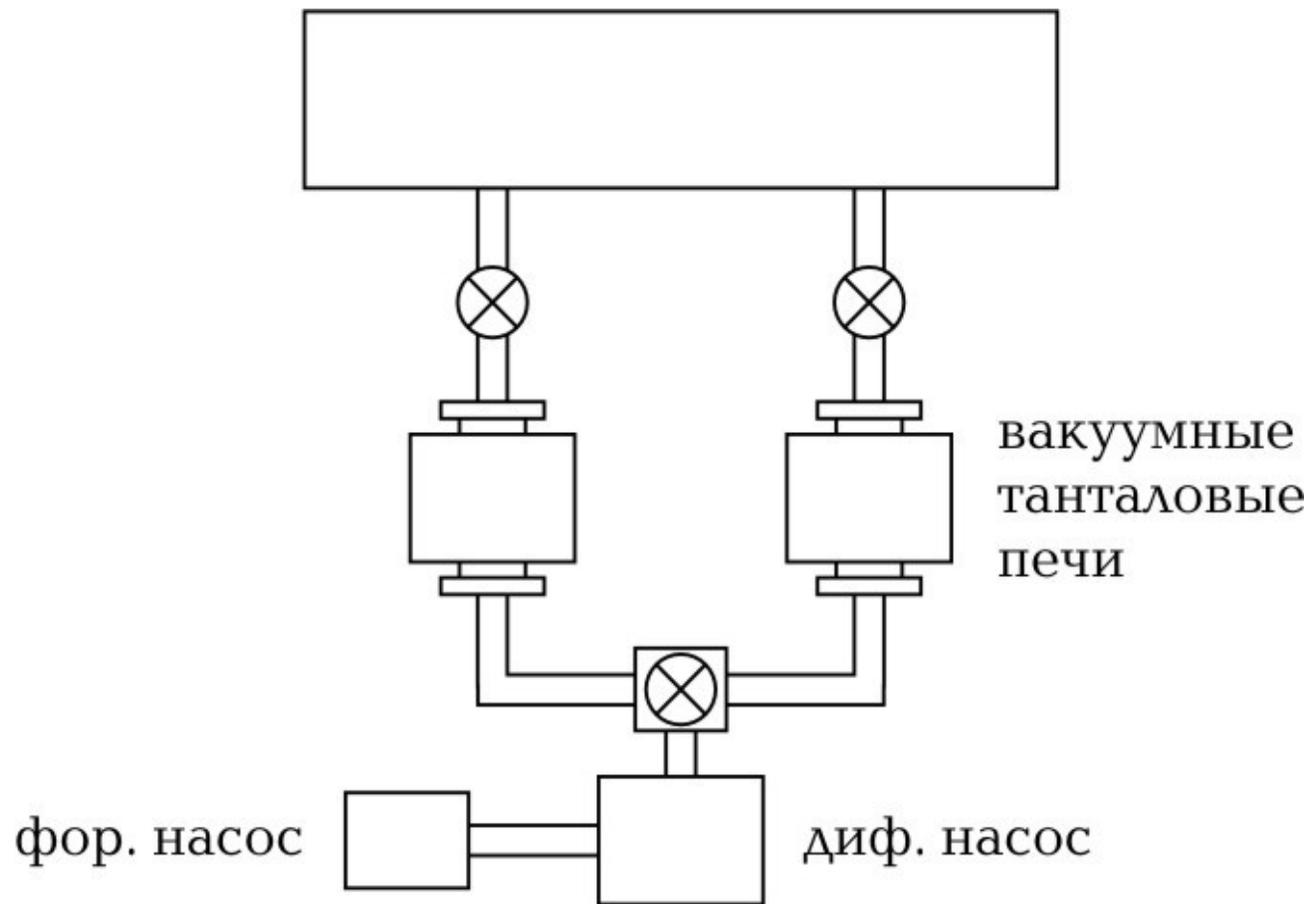
АСМ - метод



- Фиксация и сорбция газов
- Метод внедрения в углеродную матрицу тяжёлых благородных газов, криптона и ксенона [*В.И.Тихонов. П.Н.Москалёв, «Способ фиксации ксенона и криптона», авт. свидетельство СССР,02.10. 1982*].
- Проведённые испытания показали, что внедрённые газы практически не выделяются из углеродной матрицы до температуры 800°C, а интенсивное выделение их начинается только при температуре 1200-1400°C



Опытным путём было установлено, что вещество, образующееся при пиролизе дифталоцианинов металлов, является эффективным сорбентом для газов, причём максимальная сорбционная ёмкость (100мг воздуха на 1г сорбента) достигается в процессе остывания этого углеродного компаунда в вакууме в температурном интервале 1400 -1600°С после отжига при температуре ~2000°С. Это согласуется с экспериментальными результатами по удержанию в этом веществе атомов благородных газов при температуре вплоть до 1800°С, причём наиболее интенсивное выделение газа происходит как раз в температурном диапазоне 1300- 1600°С. Способность сорбировать газ при такой высокой температуре объясняется, по-видимому, тем, что множество закрытых пор (по нашей оценке, удельная поверхность этих пор составляет ~ 500м²/г) в результате деформации углеродной структуры при температуре порядка 2000°С становятся открытыми, а при остывании эти поры снова закрываются, но уже с атомами газа из объёма вакуумной камеры. На основании этих представлений, которые требуют детальной экспериментальной проверки, может быть создан высокотемпературный адсорбционный насос



Принципиальная схема высокотемпературного адсорбционного насоса.

Основой установки являются две (или более) вакуумные танталовые печи с углеродным композитом, с одной стороны соединённые с откачиваемым объёмом, а с другой - с диф. насосом. Печи работают попеременно: одна из них остывает и сорбирует при этом газы из откачиваемого объёма, а другая в это время обезгаживается диф.насосом при температуре 1800 - 2000°C. При падении вакуума в откачиваемом объёме их роли меняются, и т.д. Режимы работы меняются с помощью электромагнитных клапанов и простой управляющей схемы.

Микротвэлы для высокотемпературного реактора на основе пиролизатов дифталоцианинов тория, урана или плутония.

Основа: UO_2 , PuO_2 , ThO_2

Микросферы из окислов этих элементов диаметром от 0,1 до 1мм, покрытые двумя-тремя слоями углерода и карбида кремния:

1- слой пористого углерода толщиной 25-100микрон;

2- слой плотного углерода толщ. 20-50 микрон

3-слой карбида кремния (непроницаемый для газов),

толщина: 20-50 микрон

4- наружный слой плотного углерода

Получение:

1 –разложение ацетилен (1000-1500°C)

2 –разложение пропилена, метана или их смеси (1200-1500°C)

3- разложение метилтрихлорсилана(1400-1700°C)

Технологией изготовления различных вариантов микротвэлов для планируемого высокотемпературного реактора занимаются около 30 лет. В патентной литературе имеется множество различных вариантов их изготовления. В общем виде они состоят из делящегося материала в виде микрошариков ($d = 1-2\text{мм}$), состоящих из оксидов урана и плутония, окружённых двумя-четырьмя слоями углерода различной плотности и наружным слоем карбида кремния. Это делается с целью, с одной стороны, для удержания газов-продуктов деления внутри микротвэла, с другой – для предотвращения “swelling”а (т.е. распухания и, как следствие, растрескивания этих шариков). Одним из последних вариантов является разработка ВНИИАМ «ВВЭР с микротвэлами», 27. 6111. Д, 2003г. Как показали результаты радиационных испытаний углеродных матриц из пиролизированных дифталоцианинов, радиационные нагрузки порядка 10^8 Грей не влияют на основные характеристики углеродного компаунда). Кроме того, большой внутренний объём закрытых пор должен исключить распухание матрицы при образовании осколочных газов. В связи с этим было бы интересно исследовать пиролизаты ДФЦ урана, плутония и тория в качестве топлива для высокотемпературного реактора.

РИТЭГИ

Тепловая мощность РИТ, Вт	Начальная номинальная активность РИТ, тысячи Кюри	Электрическая мощность РИТЭГа, Вт	Выходное электрическое напряжение РИТЭГа, В	Масса РИТЭГа, кг	Начало производства
720	111	30	35	1250	1976
2200	49	80	24	2500	1976
580	89	14	6	600	1977
230	35	10		560	1978
315	49	18	14	600	1983
1100	170	60	7 (14)	1050 (3 РИТ)	1983
690	106	20	14	600	1985
1870	288			1250	1989
2200 (3300)	340 (510)	120 (180)	28	2 (3) x 1050	1990

12 марта 2003 года военные Ленинградской военно-морской базы обнаружили, что разграблен один из маяков на берегу Балтийского моря (мыс Пихлисаар Кургальского полуострова в Ленинградской области) Охотники за цветным металлом унесли около 500 кг нержавеющей стали, алюминия и свинца, а радиоактивный элемент (РИТ-90) сбросили в море в 200 метрах от маяка. Горячая капсула со стронцием проплавила лёд и ушла на дно Балтийского моря. При этом мощность экспозиционной дозы гамма-излучения на поверхности почти метровой толщи льда над источником составляла более 30 Р/ч.

В июле 1998 года на пункте приема металлолома Корсаковского торгового порта таможенники обнаружили РИТЭГ в разобранном виде - он просто лежал на пирсе. Корабль был уже готов отправить металлолом в Корею... Позже выяснилось, что РИТЭГ был похищен с корсаковского маяка, принадлежащего министерству обороны.

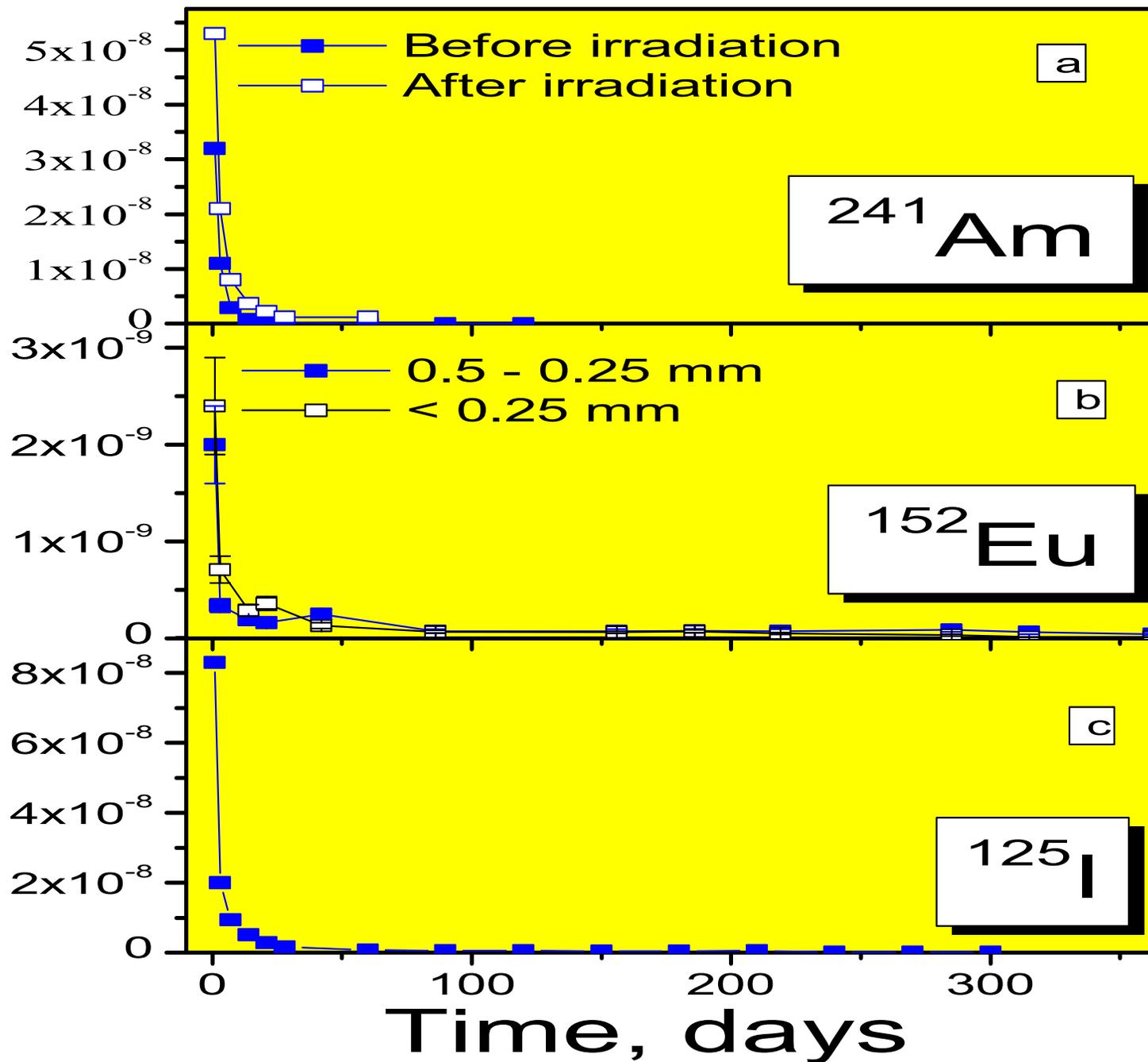
В 1987 году вертолет МИ-8 Дальневосточного управления гражданской авиации по заявке в/ч 13148 Минобороны России транспортировал на подвеске в район мыса Низкий на восточном побережье Сахалина РИТЭГ весом в две с половиной тонны. Как объяснили пилоты, погода была ветреная и вертолет разболтало так, что они, предотвращая падение, были вынуждены сбросить груз в море.

с 1987 по 2004 год было зафиксировано девять случаев разграбления РИТЭГов, три аварийных сброса генераторов с транспортного вертолета, три раза были выявлены утечки радиации по причине недостатков конструкции. Кроме того, два РИТЭГа были потеряны под слоем грунта

Было бы заманчиво отправлять РАО в космическое пространство, но по понятным причинам, пока нереально. Однако, если использовать ВАО, фиксированные в матрице пиролизатов ДФЦ, в качестве ритэгов для космических аппаратов, в особенности для дальнего космоса, то , возможно, это было бы экономически как-то оправдано.

Брахитерапия (контактная лучевая терапия, кюри-терапия)— вид [радиотерапии](#), когда источник излучения ([Ra-226](#), [Ir-192](#), [I-125](#), [Cs-137](#), [Co-60](#)) вводится внутрь поражённого органа. Преимущество метода заключается в возможности подведения максимальных доз лучевой терапии непосредственно на опухолевый очаг и в зону интереса при минимизации воздействия на критические органы и смежные ткани

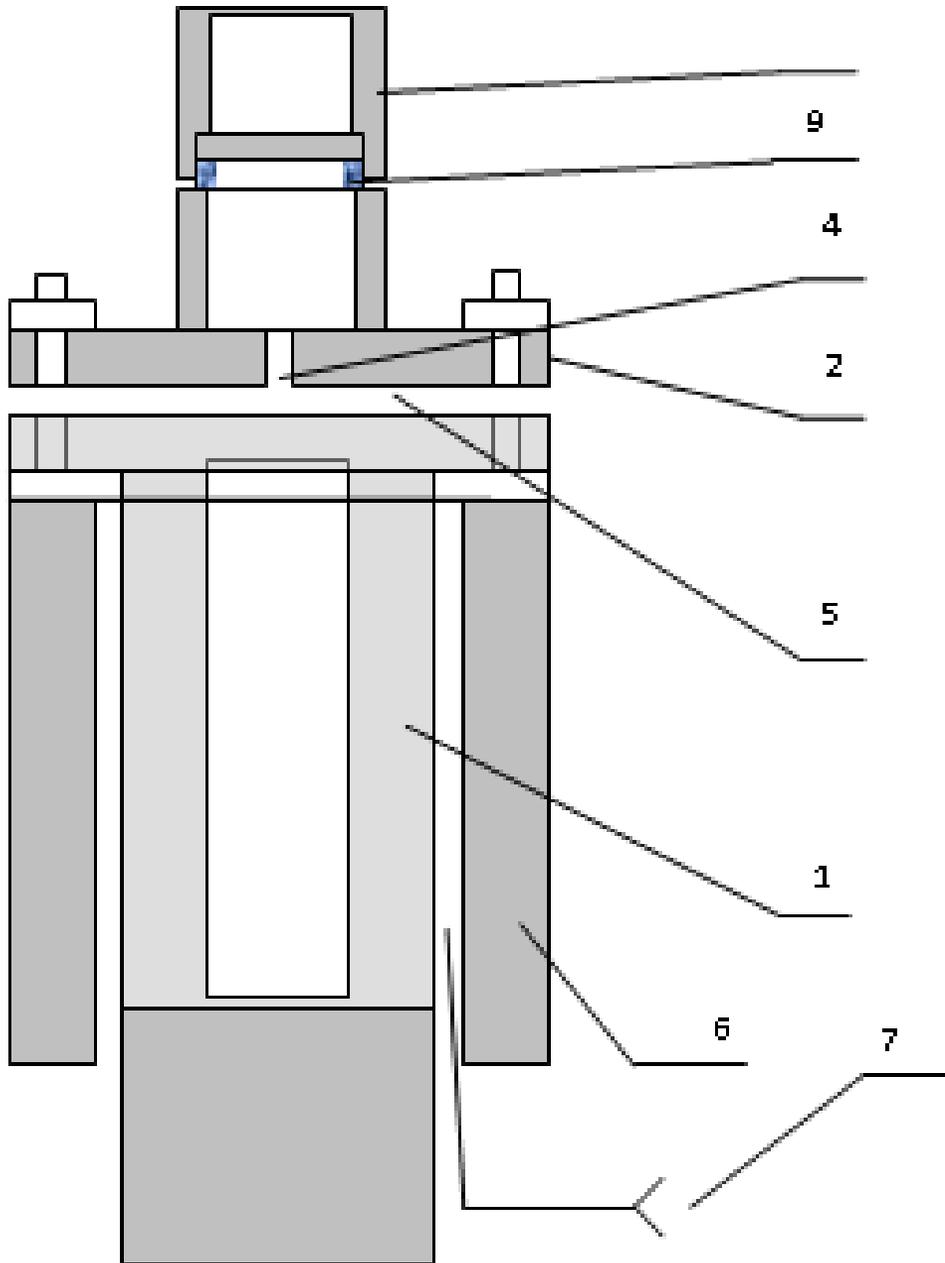
K ($g / \text{cm}^2 \text{ day}$)



Скорость выщелачивания радионуклидов дист. водой из матриц, содержащих Am-241, Eu(Eu-152) I(I-125), при комнатной температуре; а- выщелачивание из матрицы с америцием до и после облучения нейтронами, б- то же из порошкообразных образцов матрицы с европием разной степени дисперсности, с- из порошка матрицы с йодом.

Схема автоклава для пиролиза под давлением.

- 1 – корпус из нержавеющей стали;
- 2 – запирающий фланец;
- 3 – холодильник;
- 4 – предохранительное 2мм отверстие для сброса избыточного давления;
- 5 – медная прокладка-клапан;
- 6 – электропечь;
- 7 – термопара;
- 8 – теплоизолирующая подставка;
- 9 – тефлоновое уплотнение.



Характеристики изотопов для внутритканевой лучевой терапии

Изотоп	Период полураспада	Средняя энергия	Поглощенная доза при лечении (рака предстат. железы)
<u>I-125</u>	60 дней	28,5 кэВ	145-160 Гр
<u>Pd-103</u>	17 дней	20,8 кэВ	110-115 Гр
<u>Cs-131</u>	9,7 дней	30,4 кэВ	90-100 Гр

Титановые капсулы с размерами 4,5 мм x 0,8 мм и с толщиной стенки 0,05 мм. Из всех возможных изотопов более удобными для клинического применения являются следующие: ^{125}I , ^{103}Pd , ^{131}Cs . Радиоизотоп, абсорбированный на серебряной или графитовой матрице, находится внутри капсулы. Концы микрокапсул герметично запаиваются лазерным лучом.

И так далее...