

ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21)(22) Заявка: 2015147017/07, 02.11.2015

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
02.11.2015

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 02.11.2015

(45) Опубликовано: 10.11.2016 Бюл. № 31

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: RU 2031850 С1, 27.03.1995. RU 2297055 С1, 10.04.2007. RU 2226726 С2, 10.04.2004. WO 2007123436 A1, 01.11.2007. US 4255663 A, 10.03.1981.

Адрес для переписки:

105005, Москва, ул. 2-я Бауманская, 5, стр. 1,
МГТУ им. Н.Э. Баумана, ЦЗИС, для Архипова
В.П., НИИ ЭМ

(72) Автор(ы):

Архипов Владимир Павлович (RU),
Камруков Александр Семенович (RU),
Козлов Николай Павлович (RU),
Малков Кирилл Ильич (RU),
Новиков Дмитрий Олегович (RU),
Новоселов Иван Евгеньевич (RU)

(73) Патентообладатель(и):

федеральное государственное бюджетное
образовательное учреждение высшего
профессионального образования
"Московский государственный технический
университет имени Н.Э. Баумана" (МГТУ
им. Н.Э. Баумана) (RU)C1
2 602 090
RU

(54) УСТРОЙСТВО ДЛЯ ОКИСЛИТЕЛЬНОЙ ДЕСТРУКЦИИ МЕТАЛЛООРГАНИЧЕСКИХ КОМПЛЕКСОВ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

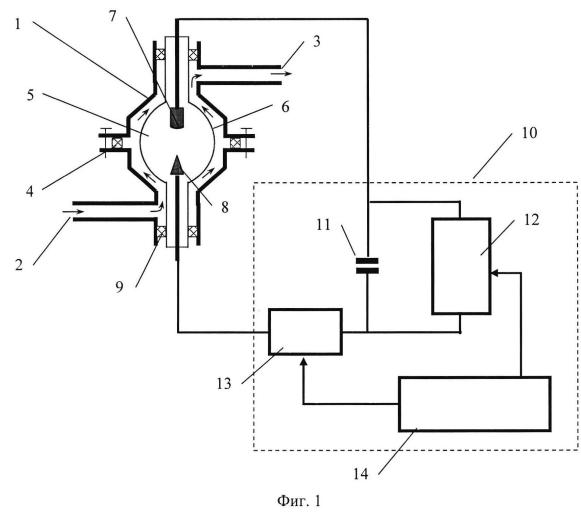
(57) Реферат:

Изобретение относится к области ядерной энергетики и касается, в частности, вопросов обращения с жидкими радиоактивными отходами, образующимися при работе атомных электростанций. Устройство для окислительной деструкции металлоорганических комплексов жидких радиоактивных отходов содержит фотохимический реактор с импульсной ксеноновой лампой и блок питания с накопительным конденсатором, высоковольтным выпрямителем, блоком инициирования и блоком управления. Импульсная ксеноновая лампа подключена к блоку питания так, что импульсная

ксенонаовая лампа и накопительный конденсатор образуют разрядный контур. Колба импульсной ксеноновой лампы выполнена в виде шара или иного тела вращения. В импульсной ксеноновой лампе наименьший внутренний радиус колбы превышает расстояние между электродами не менее чем в 5 раз, а параметры импульсной ксеноновой лампы и разрядного контура связаны расчетным соотношением. Изобретение позволяет повысить эффективность и производительность процесса очистки жидких радиоактивных отходов от металлоорганических комплексов путем интенсификации УФ обработки. 2 ил.

R
U
2
6
0
2
0
9
0
C
1

R U 2 6 0 2 0 9 0 C 1



Фиг. 1

R U 2 6 0 2 0 9 0 C 1

FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(12) ABSTRACT OF INVENTION

(21)(22) Application: 2015147017/07, 02.11.2015

(24) Effective date for property rights:
02.11.2015

Priority:

(22) Date of filing: 02.11.2015

(45) Date of publication: 10.11.2016 Bull. № 31

Mail address:

105005, Moskva, ul. 2-ja Baumanskaja, 5, str. 1,
MGTU im. N.E. Baumana, TSZIS, dlja Arkhipova
V.P., NII EM

(72) Inventor(s):

Arkhipov Vladimir Pavlovich (RU),
Kamrukov Aleksandr Semenovich (RU),
Kozlov Nikolaj Pavlovich (RU),
Malkov Kirill Ilich (RU),
Novikov Dmitrij Olegovich (RU),
Novoselov Ivan Evgenievich (RU)

(73) Proprietor(s):

federalnoe gosudarstvennoe budzhetnoe
obrazovatelnoe uchrezhdenie vysshego
professionalnogo obrazovaniya "Moskovskij
gosudarstvennyj tekhnicheskij universitet imeni
N.E. Baumana" (MGTU im. N.E. Baumana)
(RU)

(54) LIQUID RADIOACTIVE WASTES METAL-ORGANIC COMPOUNDS OXIDATIVE DECOMPOSITION DEVICE

(57) Abstract:

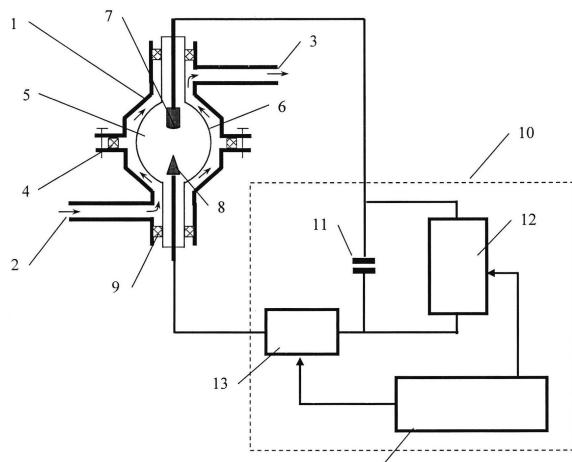
FIELD: nuclear power engineering; wastes processing and disposal.

SUBSTANCE: invention relates to nuclear power engineering and, particularly, to issues of liquid radioactive wastes handling generated during nuclear power plants operation. Liquid radioactive wastes metal-organic compounds oxidative decomposition device includes photochemical reactor with pulse xenon lamp and power supply unit with storage capacitor, high-voltage rectifier, initiation unit and control unit. Pulse xenon lamp is connected to power supply unit so that pulse xenon lamp and storage capacitor form discharge circuit. Pulse xenon lamp bulb is made in form of ball or other body of revolution. In pulse xenon lamp smallest bulb inner radius exceeds minimum distance between electrodes for at least of 5 times, and pulse xenon lamp and discharge circuit parameters are associated by calculated ratio.

EFFECT: invention enables higher efficiency and

productivity of liquid radioactive wastes cleaning of metal-organic compounds by UV processing intensification.

1 cl, 2 dwg



Фиг. 1

RU 2 602 090 C1

R U 2 6 0 2 0 9 0 C 1

Изобретение относится к области ядерной энергетики и касается, в частности, вопросов обращения с жидкими радиоактивными отходами (ЖРО), образующимися при работе атомных электростанций (АЭС). Изобретение может быть использовано для обработки загрязненных радиоактивными элементами растворов при дезактивации оборудования, при работе спецпрачечных, при переработке кубовых остатков (КО) выпарных аппаратов установок переработки трапных вод АЭС.

В ходе эксплуатации АЭС образуется значительное количество жидких радиоактивных сред: протечки (трапные воды), отработавшие дезактивационные растворы, воды спецпрачечной, вода санпропускников, регенерационные растворы ионообменных фильтров систем спецводоочисток и др., которые собираются, усредняются и концентрируются выпариванием. ЖРО гомогенного состава АЭС загрязнены продуктами деления, в основном ^{134}Cs , ^{137}Cs , а также активированными продуктами коррозии, в основном ^{60}Co . Образовавшиеся при упаривании кубовые остатки направляются на временное хранение в железобетонные облицованные емкости. При хранении малорастворимые соединения, захватывая часть радионуклидов, выпадают в осадок и собираются на дне в виде шлама, а осветленная часть КО постепенно декантируется и перерабатывается.

Локализация, концентрирование и переработка таких отходов значительно упрощаются после удаления или разрушения содержащихся в них комплексонов (этилендиаминтетрауксусная кислота (ЭДТА), щавелевая, лимонная кислоты и др.), синтетических поверхностно-активных веществ (СПАВ), которые связывают радионуклиды и затрудняют их выделение традиционными физико-химическими методами.

В последние годы получило развитие направление переработки КО путем выделения из них радионуклидов в небольшом объеме шламов и ионоселективных сорбентов и получения нерадиоактивных или низкорадиоактивных солей, относящихся к категории ОНАО (особонизкорадиоактивные отходы), размещение которых возможно на полигоне промышленных отходов или в простых ангарах. Радиоактивные вещества в растворах кубового остатка ЖРО находятся в виде простых и комплексных ионов, а также коллоидных частиц. Основными радионуклидами являются ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co . Изотопы цезия находятся в растворе в ионном виде. Изотоп ^{60}Co - в форме комплексов с соединениями, используемыми для дезактивации оборудования, такими как щавелевая кислота, полифосфаты и др. Поэтому для выделения этого радионуклида из раствора необходимо разрушить эти комплексы.

Для осуществления окислительной деструкции металлоорганических комплексов в современных условиях применяют озонирование или фотохимическое окисление путем воздействия ультрафиолетового (УФ) излучения в присутствии перекиси водорода.

Так, при осуществлении известного способа очистки кубовых остатков жидких радиоактивных отходов от радиоактивного кобальта и цезия по патенту RU 2467419 (МПК G21F 9/30, опубл. 20.11.2012) используется устройство для УФ облучения обрабатываемого раствора на основе ксеноновой лампы. Это известное устройство является аналогом предлагаемого технического решения.

Недостатком известного устройства для фотохимической окислительной деструкции металлоорганических комплексов ЖРО является невысокая эффективность окислительной деструкции. Этот недостаток является следствием того, что в известном устройстве для инициирования фотохимических процессов используется жесткое УФ излучение, вырабатываемое ксеноновой эксимерной лампой. Излучение такой лампы

обладает узкополосным (квазимохроматическим) спектром и низкой интенсивностью, что обуславливает невысокую эффективность инициирования фотохимических реакций и очень ограниченное число возможных фотохимических реакций (реализуются лишь такие процессы, для которых энергия электронных связей между ионами в составе 5 металлоорганических комплексов ЖРО совпадает или близка к энергии квантов генерируемого эксимерной лампой излучения).

Известно также устройство для очистки и обеззараживания водных сред по патенту RU 2031850, которое может быть использовано для фотохимической окислительной деструкции растворов ЖРО и принято за прототип.

10 Известное устройство выполнено с использованием ксеноновой лампы трубчатого типа, работающей в режиме повторяющихся импульсов излучения. Работа ксеноновой лампы в таком режиме характеризуется широким непрерывным спектром вырабатываемого УФ излучения и высокой его интенсивностью. Известное устройство содержит фотохимический реактор с импульсной ксеноновой лампой и блок питания 15 с накопительным конденсатором, высоковольтным выпрямителем, блоком инициирования и блоком управления, при этом импульсная ксеноновая лампа подключена к блоку питания так, что импульсная ксеноновая лампа и накопительный конденсатор образуют разрядный контур.

10 Известное устройство в значительной степени устраняет недостатки прототипа, а именно за счет повышении интенсивности УФ излучения в импульсе и широкого непрерывного спектра излучения повышается скорость фотохимических реакций и увеличивается их количество, что в результате приводит к повышению эффективности 20 фотохимической деструкции растворов ЖРО.

Однако известному устройству присущи свои недостатки.

25 Так, интенсивность импульса излучения лампы трубчатого типа в спектральном диапазоне 200...300 нм не очень высока ($1,7 \cdot 10^3 \dots 3,5 \cdot 10^3$ Вт/см², что соответствует яркостной температуре 8000...9000 К). Форсированием электрического режима работы такой лампы можно достичь яркостной температуры 10000...12000 К и даже более, 30 однако в таких режимах лампа имеет низкий ресурс работы (что проявляется либо в очень быстрой деградации излучательных характеристик, либо в разрушении лампы), и в рассматриваемой области применения такие решения не могут быть использованы. Одной из главных причин ограничения излучательных характеристик и снижения КПД 35 ламп трубчатого типа в таких режимах является уменьшение прозрачности кварцевой трубы из-за непосредственного воздействия высокотемпературной плазмы и ее коротковолнового излучения на стенку трубы, вызывающее испарение внутреннего поверхности слоя кварцевой трубы и экранировку УФ излучения плазменного канала образовавшимися парами кварца.

Т.о. ограниченные возможности импульсных трубчатых ксеноновых ламп обусловливают недостаточно высокую эффективность фотохимической деструкции 40 металлоорганических комплексов ЖРО.

Задача, решаемая настоящим изобретением, заключается в выведении из растворов ЖРО радионуклидов и активированных продуктов коррозии.

Техническим результатом от использования предлагаемого технического решения 45 является повышение эффективности и производительности процесса очистки ЖРО от металлоорганических комплексов путем интенсификации УФ обработки, приводящей к увеличению количества и скорости протекания фотохимических окислительных реакций.

Указанный технический результат достигается тем, что колба импульсной ксеноновой

лампы выполнена в виде шара или иного тела вращения, при этом в импульсной ксеноновой лампе наименьший внутренний радиус колбы превышает расстояние между электродами не менее чем в 5 раз, а параметры импульсной ксеноновой лампы и разрядного контура связаны соотношением

$$A \cdot \left(\frac{C}{\tau_m^2} \right)^{0,25} \cdot \left(\frac{U}{l} \right)^{0,2} \geq 1, \quad (1)$$

где

С - емкость накопительного конденсатора, Ф;

У - напряжение заряда накопительного конденсатора, В;

τ_m - время достижения максимума разрядного тока, с;

l - длина межэлектродного промежутка лампы, м

$A=5 \cdot 10^{-3}$ - коэффициент.

Расчетное соотношение (1), полученное в результате экспериментальных исследований, связывает конструктивные параметры предлагаемого устройства, определяющие временные и энергетические характеристики электрического разряда в шаровой лампе, и является необходимым и достаточным условием генерации высокотемпературной плазмы ксенона с высокими излучательными характеристиками в УФ области спектра.

Изобретение поясняется чертежами, где на фиг. 1 изображена упрощенная функциональная блок-схема устройства для окислительной деструкции металлоорганических комплексов жидких радиоактивных отходов, на фиг. 2 - увеличенное схематическое изображение импульсной ксеноновой лампы шаровой конструкции.

Устройство содержит герметичный разъемный корпус 1, выполненный в виде тела вращения из материала, непрозрачного для УФ излучения, и снабженный входным 2 и выходным 3 отверстиями для пропускания обрабатываемой жидкости. Герметичность корпуса обеспечивается уплотнением 4 из деформируемого материала, например химически стойкой резины или фторопласта. Конструктивные элементы, обеспечивающие деформацию уплотняющих материалов (проточки и буртики под прокладки, стягивающие болты и пр.), стандартны и на чертеже не показаны.

Возможно иное выполнение корпуса 1, например, в виде цилиндра.

В корпусе продольно расположена импульсная ксеноновая лампа 5 в виде кварцевой колбы 6 с впаянными в концы колбы электродами: анодом 7 и катодом 8. Колба 6 выполнена в виде шара или иного тела, образованного вращением образующей вокруг оси (чаще всего такая колба имеет вид вытянутого сфероида) и заполнена инертным газом ксеноном при начальном давлении несколько атмосфер.

Конструкция импульсной лампы шарового типа обеспечивает удаление стенки кварцевой колбы R_{min} (фиг. 2) от середины межэлектродного промежутка на величину, превышающую межэлектродное расстояние d не менее чем в 5 раз.

Герметичность корпуса 1 с установленной в нем импульсной ксеноновой лампой 5 обеспечивается уплотнениями 9. Корпус в сборе с импульсной ксеноновой лампой образуют фотохимический реактор.

К электродам импульсной ксеноновой лампы 5 подключен блок питания 10, состоящий из накопительного конденсатора 11, высоковольтного выпрямителя 12, блока инициирования 13 и блока управления 14. Конденсатор 11 и импульсная ксеноновая лампа 5 соединены между собой так, что образуют разрядный контур с индуктивностью

L.

Высоковольтный выпрямитель 12 может быть реализован в различных вариантах, например по схеме AC/DC преобразователя, работающего на емкостную нагрузку.

Блок инициирования 13 лампы 5 также может быть выполнен по-разному, например 5 в виде быстродействующего сильноточного ключа (тиристора, транзистора и т.д.) или в виде импульсного повышающего трансформатора.

Блок управления 14 обеспечивает согласованную и синхронизированную работу остальных компонентов блока питания в циклическом режиме «заряд-разряд».

В конкретном примере выполнения устройства для окислительной деструкции

10 металлоорганических комплексов жидких радиоактивных отходов технические параметры имеют следующие значения: емкость накопительного конденсатора - 1 мкФ, напряжение заряда - 4 кВ, индуктивность разрядного контура = 10 мкГн, расстояние между импульсной шаровой лампы электродами составляет 5...10 мм, а начальное давление ксенона в лампе - 5...10 атм.

15 Работа устройства осуществляется следующим образом.

На вход 2 корпуса 1 фотохимического реактора поступает раствор ЖРО. Оператор установки или соответствующая автоматика подает команду включения на блок управления 14, который запускает автоматический циклический режим заряда-разряда. Высоковольтный выпрямитель 12 заряжает накопительный конденсатор 11, при этом 20 напряжение заряда контролируется блоком управления 14. При достижении заданного значения напряжения на конденсаторе 11 (определяется по срабатыванию соответствующим образом настроенного компаратора в блоке управления) высоковольтный выпрямитель 12 выключается, а конденсатор 11 оказывается заряженным до напряжения U. По команде блока управления 14 включается блок 25 инициирования 13, который вырабатывает импульс поджига высокого напряжения (~20...30 кВ), прикладываемый к электродам 7 и 8 импульсной ксеноновой лампы 5. Межэлектродный промежуток лампы пробивается, и начинается разряд конденсатора 11 через лампу 10.

Далее процессы заряда и разряда циклически повторяются до тех пор, пока не будут 30 остановлены соответствующей командой. Максимальная частота повторения циклов «заряд-разряд» и, соответственно, импульсов излучения определяется временем заряда конденсатора 11 до напряжения U (мощностью зарядного устройства - высоковольтного выпрямителя 12) и может достигать 1000 Гц и более. Важно то, что в зависимости от программ, заложенных в память блока управления, и от управляющих команд оператора 35 частота повторения импульсов излучения может меняться от 0 (одиночные импульсы) до максимальной.

Разряд конденсатора в среде ксенона приводит к образованию высокотемпературной интенсивно излучающее плазмы. При соблюдении определенных взаимосвязей между конструктивными параметрами устройства, определенных соотношением (1), 40 эффективная температура излучения плазмы превышает 15000 К, характер спектра излучения - непрерывный во всем диапазоне прозрачности кварцевой колбы 6 лампы 5 (по меньшей мере, от 165 до 2000 нм), при этом в спектре излучения превалирует УФ компонента излучения (более 50%), а интенсивность излучения в спектральном диапазоне 45 200...300 нм составляет не менее $3,7 \cdot 10^4$ Вт/см², что, по крайней мере, на порядок превосходит аналогичную характеристику устройства-прототипа.

Излучение лампы 5 попадает на протекающий в фотохимическом реакторе между кварцевой колбой 6 и внутренней стенкой корпуса 1 раствор ЖРО и инициирует в нем фотохимические реакции окисления. При этом благодаря высокой эффективной

температуре излучения импульсной лампы обладает очень высокой интенсивностью в УФ области спектра, что приводит к высокой скорости фотохимических реакций и к интенсивному фотоокислению содержащихся в обрабатываемом растворе ЖРО металлогорганических комплексов.

⁵ Обработанный раствор ЖРО выводится из фотохимического реактора через выходное отверстие 3.

Для практического использования предложенного решения очень важным является большой ресурс работы ($\sim 10^8 \dots 10^9$ импульсов) импульсной лампы шарового типа, который обеспечивается за счет того, что при выполнении приведенного в формуле ¹⁰ изобретения признака о соотношении наименьшего внутреннего радиуса колбы и расстояния между электродами лампы разогретая до высокой температуры плазма не контактирует с кварцевой колбой лампы, а слой холодного ксенона (толщиной $\Delta=R_{\min}-r_p$, где R_{\min} - минимальный внутренний радиус колбы лампы, r_p - наружный радиус ¹⁵ разрядного (плазменного) канала) экранирует жесткое вакуумное ультрафиолетовое излучение плазмы с энергией квантов, превышающей потенциал ионизации ксенона, благодаря чему повышается механическая стойкость кварцевой стенки к динамическим нагрузкам и исключается проявление эффектов обратимой непрозрачности кварца.

Формула изобретения

²⁰ Устройство для окислительной деструкции металлоорганических комплексов жидких радиоактивных отходов, содержащее фотохимический реактор с импульсной ксеноновой лампой и блок питания с накопительным конденсатором, высоковольтным выпрямителем, блоком инициирования и блоком управления, при этом импульсная ²⁵ ксеноновая лампа подключена к блоку питания так, что импульсная ксеноновая лампа и накопительный конденсатор образуют разрядный контур, отличающееся тем, что колба импульсной ксеноновой лампы выполнена в виде шара или иного тела вращения, при этом в импульсной ксеноновой лампе наименьший внутренний радиус колбы превышает расстояние между электродами не менее чем в 5 раз, а параметры импульсной ³⁰ ксеноновой лампы и разрядного контура связаны соотношением

$$A \cdot \left(\frac{C}{\tau_m^2} \right)^{0.25} \cdot \left(\frac{U}{l} \right)^{0.2} \geq 1,$$

где

³⁵ С - емкость накопительного конденсатора, Ф;

У - напряжение заряда накопительного конденсатора, В;

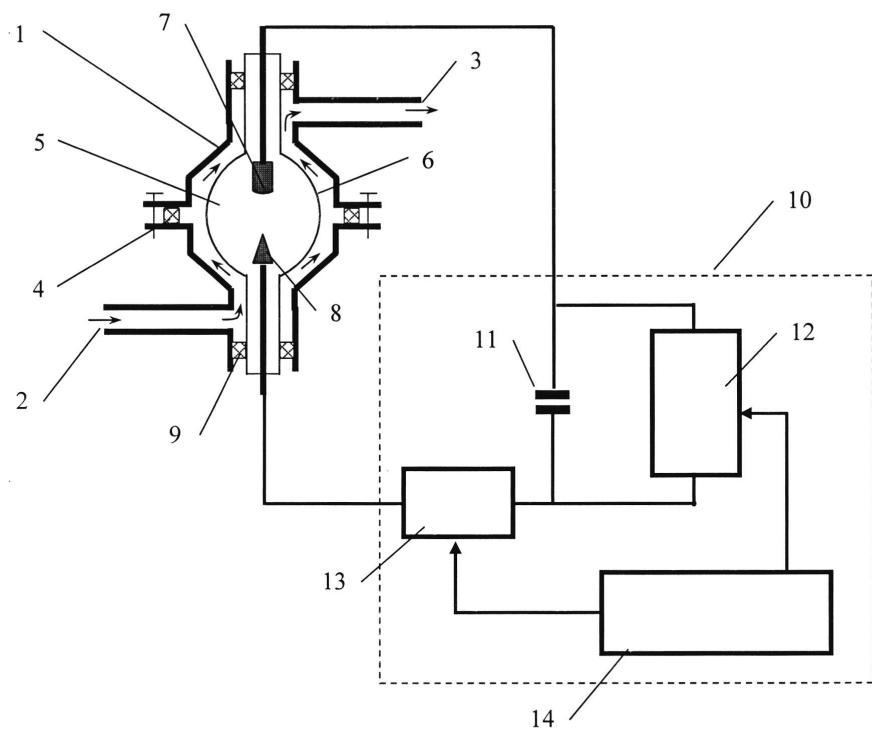
τ_m - время достижения максимума разрядного тока, с;

l - длина межэлектродного промежутка лампы, м;

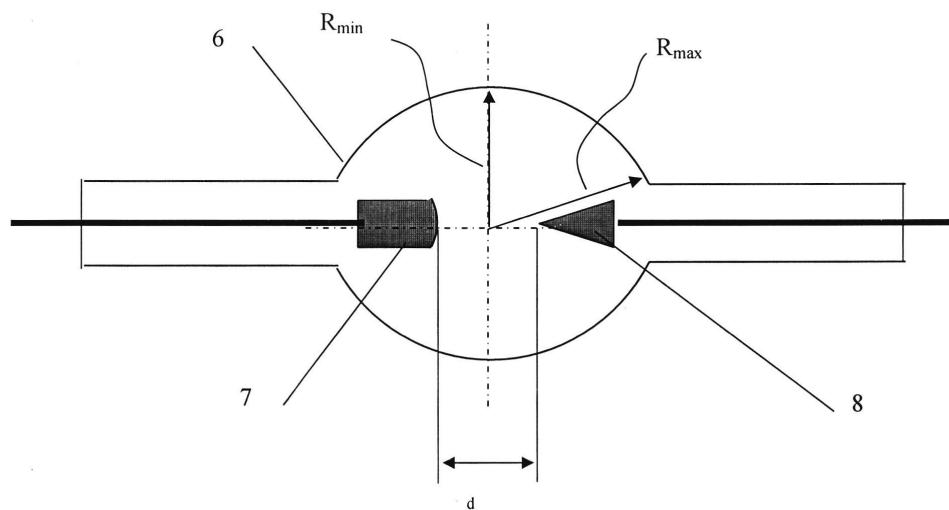
$A=5 \cdot 10^{-3}$ - коэффициент.

⁴⁰

⁴⁵



Фиг. 1



Фиг. 2