

3. Определены коэффициенты конкордации и выявлены критичные факторы, влияющие на процесс экстракции.
4. Разработан алгоритм диагностики работы оборудования химико-технологического процесса

с применением метода математической статистики.

5. Проведена апробация методики в производственных условиях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Афанасьева Т.А., Блиничев В.Н. Надежность химико-технологических производств. – Иваново, 2007. – 199 с.
2. Кривоустов С.И. Диагностика работы экстракционного оборудования // Актуальные проблемы химической технологии и подготовки кадров: Матер. Всеросс. научно-практ. конф. – Уфа: УГНТУ, 2006. – С. 262–265.

3. Рузинов Л.П. Статистические методы оптимизации химических процессов. – М.: Химия, 1972. – 200 с.

Поступила 26.02.2009 г.

УДК 541.138.2

УДАЛЕНИЕ ПРОЧНОФИКСИРОВАННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТЛОЖЕНИЙ ЭЛЕКТРОЛИТИЧЕСКИМ МЕТОДОМ

Г.Н. Колпаков, Н.А. Колпакова, В.А. Кузов*, В.И. Хвостов*

Томский политехнический университет
*Сибирский химический комбинат, г. Северск
E-mail: nak@anchem.chtd.tpu.ru

Показана возможность очистки лома нержавеющей стали контура охлаждения промышленного реактора, работающего при высоких температурах («горячая» нитка) от радиоактивных загрязнений электролитическим методом. Установлено, что для труб «горячей» нитки системы охлаждения реакторов очистка происходит ступенчато путем замачивания очищаемой детали в фоновом электролите и последующем электролизе на каждой ступени. Процесс обработки осуществляется сначала в растворе 140 г/дм³ NaCl, а затем в растворе 3 % HNO₃. Образцы труб очищаются от радиоактивных загрязнений с 10⁴ β-частиц/(см²·мин) до фоновых значений.

Ключевые слова:

Радиоактивность, дезактивация, оксидные отложения, электролитическая дезактивация.

Key word:

Radiioactivity, decontamination, oxide layer, electrolytic decontamination.

При выводе из эксплуатации ядерно-энергетических установок образуются металлургические отходы, представляющие собой изделия различных типов, загрязненные радиоактивными веществами. Объемы таких отходов весьма значительны. Задача дезактивации состоит в удалении оксидных слоев и коррозионных отложений, содержащих радиоактивные вещества. Для этих целей применяют химические, механические, физические, электрохимические и электромагнитные способы [1, 2].

В качестве объектов исследований были выбраны стальные трубы выводимого из эксплуатации оборудования промышленных реакторов.

Исследования, проведенные нами ранее, показали, что для удаления фиксированных отложений «холодной» нитки наиболее удобен электрохимический метод [3]. Однако при работе оборудования при высоких температурах радиоактивные отложения более прочно связаны с металлом трубопровода, потому что отложения при высокой температуре спекаются.

Целью данной работы было выбрать условия очистки лома нержавеющей стали контура охлаждения реактора, работающего при высоких температурах («горячая» нитка), от радиоактивных загрязнений электролитическим методом.

Для эксперимента отобраны 3 образца труб отводящего коллектора 1-го контура охлаждения реактора «горячей» нитки длиной 100 мм с внешним диаметром 195 мм и внутренним – 170 мм. Площадь внутренней поверхности образца составляла – 534 см², внешней поверхности – 613 дм². Образцы промаркированы номерами – 1, 2, 3.

Трубы контура охлаждения реактора не входят в состав активной зоны и не имеют наведенную активность. Плотность потока β-излучения и мощность экспозиционной дозы образцов труб, подлежащих очистке, измерялась с помощью дозиметрических приборов РУП-1, ДКС и γ-спектрометра Канберра. Установка дезактивации представляет собой бездиафрагменный электролизер, где в качестве одного из электродов служит дезактивируе-

мый образец. Второй электрод выполнен из графитовой втулки внешним диаметром 80 мм, коаксиально расположенный внутри дезактивируемого образца. Если дезактивируемый образец является катодом, то такой режим называется катодным, а если анодом – анодным.

На внутренней стороне образцов «горячей» нитки имеются гладкие отложения от желтовато-коричневого до красновато-бурого цвета, толщиной около 0,5 мм. Радиоактивное загрязнение внутренних отложений на образцах составляло $(3...8) \cdot 10^3$ β -частиц/(см²·мин). Внешняя поверхность образцов не имела отложений, её загрязнённость не превышала $4 \cdot 10^4$ β -частиц/(см²·мин). Дезактивация в катодном режиме оказалась неэффективна и далее нами не исследовалась. Образцы обрабатывались в несколько циклов со сменой условий. Условия дезактивации [3] и радиоактивность образцов по окончании каждого цикла приведены в табл. 1.

Образец 1. Первоначальное поверхностное радиоактивное загрязнение было равно $0,9 \cdot 10^4$ β -частиц/(см²·мин); мощность ионизирующего излучения на внутренней поверхности образца – $6 \cdot 10^3$ мкР/ч. В первых двух циклах дезактивация образца проводилась в анодном режиме в отсутствие диафрагмы. Для интенсификации процесса была опробована асбестовая диафрагма.

Образец 2. Первоначальное поверхностное радиоактивное загрязнение 10^4 β -частиц/(см²·мин), мощность ионизирующего излучения на поверхности образца – $3,5 \cdot 10^3$ мкР/ч. Образец обрабатывался в анодном режиме в растворе 140 г/дм^3 NaCl. Затем был сменён тип электролита на раствор 3 % HNO₃.

Образец 3. Этот образец имел первоначальное поверхностное радиоактивное загрязнение 10^4 β -частиц/(см²·мин), мощность ионизирующего излучения на поверхности образца – $6 \cdot 10^3$ мкР/ч. Сначала образец обрабатывался 40 мин в анодном режиме в растворе NaCl, а затем 40 мин в электролите 6 % HNO₃.

Анализ поверхности образцов выявил во всех случаях наличие питтинговой и язвенной электроэрозии, потому что при длительном воздействии электрического тока начинается электрорастворение обнажившегося металла, а оставшаяся пленка отложений не претерпевает видимых изменений. Радиоактивность образцов оставалась высокой. Одновременно температура дезактивирующего раствора увеличивалась до 60...65 °С для NaCl и 80...85 °С для кислотного электролита.

Нами была исследована зависимость напряжения, приложенного к клеммам электролизера, от времени очистки при дезактивации образца в разных электролитах. Процесс обработки был стабилизирован по току, плотность тока 200 мА/см².

Характер зависимостей, приведенных на рисунке, показал, что спад напряжения обусловлен сте-

пенью очистки поверхности металла от пленки. Это связано с тем, что пленка отложений не пропускает электрический ток. Следовательно, чем меньше отложений остается на поверхности металла, тем меньше электрическое сопротивление электродной системы. Критерием окончания процесса очистки может служить выход напряжения на стационарный режим очистки, когда уже не происходит изменения сопротивления прохождению тока.

Таблица 1. Результаты дезактивации отрезка трубы «горячей нитки»

| № цикла | | 1 | 2 | 3 |
|--|--|------|------------------|------------------|
| Образец № 1 | | | | |
| Активность | β -частиц/(см ² ·мин) | 3000 | 1000 | 200 |
| | γ , мкР/ч | 1200 | 670 | 150 |
| Наличие диафрагмы | | Нет | Нет | Есть |
| Время опыта, мин | | 20 | 20 | 20 |
| Плотность тока, мА/см ² | | 187 | 187 | 374 |
| Электролит | | NaCl | NaCl | NaCl |
| Кoeffициент дезактивации $K_{д\beta}$ | | 0,66 | 0,88 | 0,97 |
| Кoeffициент дезактивации $K_{д\gamma}$ | | 0,8 | 0,88 | 0,97 |
| Образец № 2 | | | | |
| Активность | β -частиц/(см ² ·мин) | 8000 | 4000 | 10 |
| | γ , мкР/ч | 2500 | 670 | 20 |
| Время опыта, мин | | 20 | 40 | 40 |
| Плотность тока, мА/см ² | | 187 | 187 | 374 |
| Электролит | | NaCl | NaCl | HNO ₃ |
| Кoeffициент дезактивации $K_{д\beta}$ | | 0,11 | 0,56 | -1 |
| Кoeffициент дезактивации $K_{д\gamma}$ | | 0,58 | 0,90 | -1 |
| Образец № 3 | | | | |
| Активность | β -частиц/(см ² ·мин) | 7000 | 10 | – |
| | γ , мкР/ч | 2500 | 20 | – |
| Время опыта, мин | | 40 | 40 | – |
| Плотность тока, мА/см ² | | 187 | 230 | – |
| Электролит | | NaCl | HNO ₃ | – |
| Кoeffициент дезактивации $K_{д\beta}$ | | 0,22 | -1 | – |
| Кoeffициент дезактивации $K_{д\gamma}$ | | 0,58 | -1 | – |

Как видно из рисунка, время выхода на стационарный режим не превышает 10 мин.

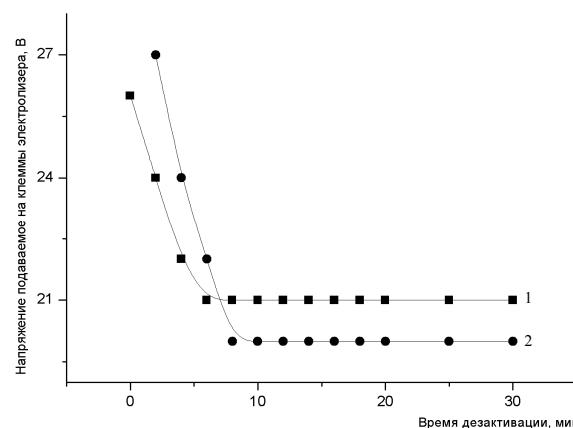


Рисунок. Зависимость межэлектродного напряжения от времени электроочистки: 1) фон 140 г/дм^3 NaCl; 2) фон 6 % HNO₃

Увеличение температуры, при которой происходит электролитическая очистка поверхности, приводит к увеличению спада напряжения, что характеризует большую скорость очистки. Для нагретого электролита меньше потери электроэнергии, которые уходят на его разогрев до рабочей температуры.

Ранее нами показано [3], что электрохимический процесс тогда проходит эффективно, когда пленка проницаема для прохождения электролита к поверхности металла. Поэтому для обеспечения процесса дезактивации необходимо обеспечить контакт электролита с металлической поверхностью. Это можно сделать за счет химического разрушения отложений, что можно осуществить путем предварительного замачивания образца в отработанном электролите без наложения электрического тока. Электролитическая обработка при высоких плотностях тока, как мы видим, приводит к питинговой и язвенной эрозии металла, что не желательно.

По результатам проведенной работы предложен комбинированный способ электрохимической очистки: сначала замачивание в фоновом электролите, что приводит к смачиванию отложений и увеличивает их пористость, затем электролитическая дезактивация. Замачивание в растворе NaOH с концентрацией 15...20 мас. %, температура раствора 20...40 °С, время пропитки не менее 24 ч, затем электролитическая обработка в анодном режиме в растворе NaCl (240 г/л), время обработки 30 мин, плотность тока 100 мА/см², температура электролита 50 °С.

После этого образец трубы замачивался повторно в растворе азотной кислоты (60 г/дм³) и выдерживался не менее 100 ч. Температура раствора поддерживалась 20...40 °С. Затем в этом же растворе проводилась электрохимическая обработка образца трубы в анодном режиме. Обработку в растворе кислоты рекомендуется проводить при следующих условиях: время обработки 10 мин, плотность тока не менее 100 мА/см². Результат дезактивации комбинированным способом, описанным выше, показан в табл. 2.

Процесс пропитки можно интенсифицировать различными способами, например, за счет увеличения температуры раствора или путем воздействия на отложения ультразвуком и др.

Таким образом, проведенные нами исследования показали, что перед электрохимической обработкой металла с радиоактивными отложениями

необходимо проводить пропитку отложений в фоновом электролите, что приводит к проникновению электролита на границу между отложениями и металлом. Пропитка в NaOH способствует разрушению отложений, что улучшает контакт электролита с металлической поверхностью и уменьшает сопротивление прохождению тока.

Таблица 2. Результаты дезактивации образца «горячей» нитки комбинированным способом

| Сторона трубы | Величина радиоактивного загрязнения/мощность дозы ионизирующего излучения | | | | Фон |
|------------------|---|--|---------------------|--------------------------------|-------------------------------|
| | Внутренняя | β -частиц/(см ² -мин) | 2600 | 490 | |
| γ , мкР/ч | | 4,6·10 ² | 3,2·10 ² | 31 | |
| Наружная | β -частиц/(см ² -мин) | 96 | 75 | 14 | Фон |
| | γ , мкР/ч | 2,07·10 ² | 2,5·10 ² | 12 | |
| Примечание | | Исходные характеристики образца | Обработка в NaCl | Замачивание в HNO ₃ | Электролиз в HNO ₃ |

Более плотные и прочные соединения удаляются в растворах кислот. При электрохимической обработке дезактивируемой поверхности в анодном режиме, помимо его воздействия на отложения, происходит электрорастворение поверхностного слоя металла на границе раздела «металл-отложения», что ослабляет силу сцепления отложений с металлом и позволяет удалить радионуклиды, проникшие в металл за счет диффузионных процессов.

Выводы

Показана возможность очистки лома нержавеющей стали «горячей» нитки контура охлаждения реактора от внешнего радиоактивного загрязнения электролитическим методом.

Предложено очистку труб «горячей» нитки системы охлаждения реакторов проводить замачиванием очищаемой детали в фоновом электролите и двухступенчатым электролизом сначала в растворе NaCl, а затем в растворе HNO₃.

Образцы труб очищаются от отложений с начальным радиоактивным загрязнением 10⁴ β -частиц/(см²-мин) и мощностью ионизирующего излучения на поверхности образца – 6·10³ мкР/ч до фоновых значений, допускающих повторное использование металла в народном хозяйстве.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ампелогова Н.И., Симановский Ю.М., Трапезников А.А. Дезактивация в ядерной энергетике. – М.: Энергоатомиздат, 1982. – 130 с.
2. Зимон А.Д., Пикалов В.К. Дезактивация. – М.: Атомная техника, 1994. – 180 с.

3. Колпаков Г.Н., Колпакова Н.А., Кузов В.А., Хвостов В.И. Очистка лома нержавеющей стали от радиоактивных загрязнений электрохимическим методом // Известия Томского политехнического университета. – 2009. – Т. 314. – № 3. – С. 74–78.

Поступила 21.09.2009 г.