

ПЛАЗМЕННАЯ ПЕРЕРАБОТКА ОБЛУЧЕННОГО РЕАКТОРНОГО ГРАФИТА

Беспала Е.В., Павлюк А.О., Ушаков И.А.

Научный руководитель: Мышкин В.Ф., профессор, д.ф.-м.н

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,

Россия, г.Томск, пр. Ленина, 30, 634050

E-mail: bespala_evgeny@mail.ru

В работе показана возможность плазменной переработки облученного реакторного графита уран-графитовых реакторов. Предложен способ организации процесса разделения ядерного графита и радиоактивных технологических примесей путем конденсации при различных температурах. Рассчитан равновесный состав плазмообразующего газа для очистки углерода от примесных радионуклидов с помощью термодинамического моделирования.

TREATMENT OF IRRADIATED REACTOR GRAPHITE IN PLASMA

Bespala E.V., Pavliuk A.O., Ushakov I.A.

Scientific Supervisor: Prof., Dr. Myshkin V.F.

Tomsk Polytechnic University, Russia, Tomsk, Lenina str., 30, 634050

E-mail: bespala_evgeny@mail.ru

The possibility of plasma processing of irradiated graphite sleeves uranium-graphite reactors is shown. The experimental setup for the separation of nuclear and radioactive graphite process impurities by organizing the deposition process at different temperatures is proposed. Equilibrium composition of the plasma forming gas for cleaning of carbon from impurity radionuclides is calculated by thermodynamic modeling.

За время существования атомной энергетики в России были построены 13 промышленных уран-графитовых реакторов и 18 энергетических реакторов типа РБМК [1]. Отличительной конструкционной особенностью этих реакторов является использование графита в качестве замедлителя нейтронов. При этом все графитовые конструкции эксплуатировались при высоких температурах и больших потоках нейтронов в контакте с тепловыделяющими элементами.

В результате длительного облучения графита внутри реактора происходит накопление радионуклидов с различным периодом полураспада. При этом активность графита определяется изотопным составом и зависит от энергии и плотности потока нейтронов, времени облучения, истории эксплуатации реактора, химического состава исходного материала. После остановки таких реакторов возникает необходимость переработки радиоактивных графитовых блоков. При выводе из эксплуатации промышленных уран-графитовых реакторов по варианту «безопасного захоронения на месте» графитовая кладка остается внутри пункта захоронения [2]. Однако облученные графитовые втулки и графитовые конструкционные элементы, извлекаемые из приреакторного хранилища, требуют переработки.

Широко разрабатываются технологии утилизации облученного реакторного графита: традиционное сжигание и сжигание в кипящем слое, пиролиз с помощью перегретого водяного пара, лазерное испарение. Сжигание имеет ряд особенностей, например, скорость окисления зависит от температуры, размера частиц, вида и количества окислителя. С ростом температуры возрастает скорость окисления, а, следовательно, и количество перерабатываемого графита. Однако все эти способы ведут к накоплению большого количества радиоактивных отходов (РАО) [3].

В технологии переработки облученного графита необходимо добиваться уменьшения первоначального количества РАО, например, по объему или весу. Разрабатывается плазменный способ сепарации изотопов углерода в постоянном магнитном поле [4]. Анализ результатов этого исследования показывает, что возможно одновременно организовать процесс очистки графита от технологических примесей и продуктов активации. Энергоэффективный способ очистки графита от технологических примесей может быть разработан на основе использования физико-химических свойств радионуклидов, имеющих наибольшее различие.

Целью исследований является анализ физико-химических свойств элементов технологических примесей, входящих в облученный графит и соединений этих элементов.

В работе [5] приводятся экспериментальные данные об элементном составе облученной графитовой втулки, эксплуатировавшийся в промышленном уран-графитовом реакторе в течении 20 лет. В таблице 1 приведены некоторые физические свойства элементов основных технологических примесей, входящих в состав облученной графитовой втулки и кладки уран-графитового реактора.

Свойства технологических примесей графитовых втулок

Таблица 1

Элемент	^{14}C	Eu	Ba	Ni	Sm	Tc	Co	Cs	Sr	Am	Pu
$T_{\text{расп}}, \text{лет}$	5700	8,5	10,7	96	90	210000	5,27	30,1	28,5	433,2	24000
$T_{\text{кип}}, \text{K}$	3973	1800	2143	3186	2076	4538	3143	940,7	1657	2284	3507

Из таблицы видно, что температуры кипения технологических примесей графита и продуктов активации существенно отличаются. Например, металлический уран и технеций испаряется лишь при значительно больших температурах, чем графит. Температура кипения цезия равна 940,7K. Температура кипения остальных технологических примесей находится в диапазоне 1800-3507K. Такие температуры легко достижимы с помощью газоразрядной плазмы. Однако, нагрев и удержание в газовой фазе сырья при температурах более 4500K создает трудности с выбором материалов для плазмохимического реактора. При этом нагрев легкоиспаряющихся компонентов до высоких температур, с точки зрения энергоэффективности, не целесообразно.

Известно, что в технологии получения чистого ядерного графита используются содержащие галоген газообразные соединения, например, дифторхлорметан [6].

Для оценки состава смеси дифторхлорметана и графита с технологическими примесями при различных температурах проводили расчет равновесного состава с помощью программы ТЕРРА. Термодинамический анализ показывает, что при температуре выше 2100°C дифторхлорметан диссоциирует с образованием атомарных фтора и хлора, что способствует значительному росту их химической активности. При этом углерод вступает в реакцию с хлором и также образует газообразные соединения (см. рисунок 1). Поэтому исходный графит обрабатывается дифторхлорметаном в диапазоне температур 2370-2470K [6].

Термодинамическое моделирование в программе ТЕРРА показывает, что добавление хлора или фтора в плазмообразующий газ приводит к образованию соединений с более низкой температурой кипения, чем у исходных примесей. Из рисунка 1 видно, что в результате реакции хлорирования происходит уменьшение температуры кипения образующихся соединений до 2000K, а при фторировании – до 2300K. При температурах больших, чем указанные, образуются в основном монохлориды и монофториды, которые будут окисляться при медленном охлаждении плазменного потока.

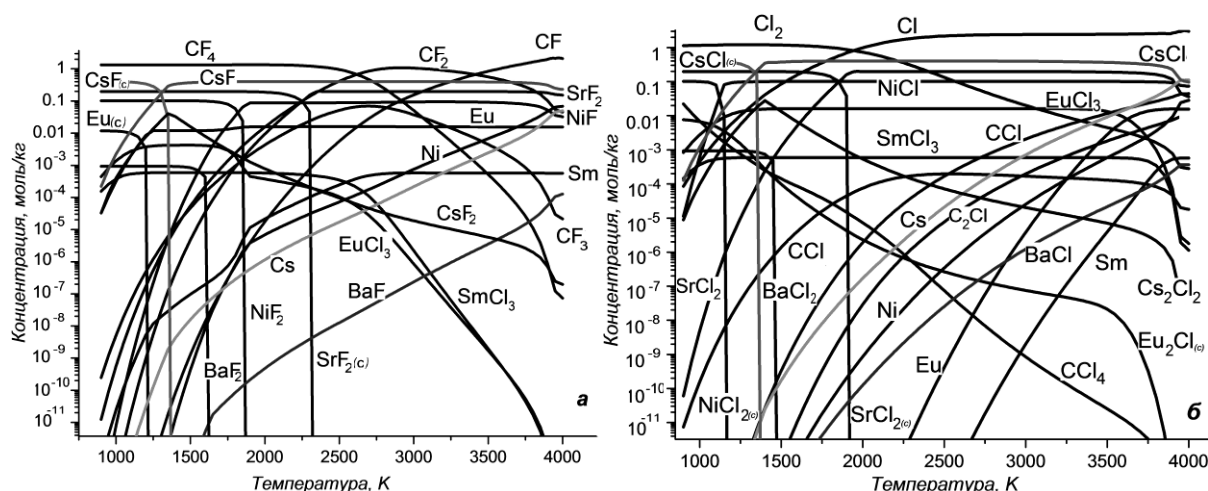


Рис 1. Равновесный состав смеси технологических примесей и F (а), Cl (б)

Видно, что газообразные CsCl и CsF, разрушающиеся при охлаждении в диапазоне температур 1300-1000К. Образующийся при этом цезий конденсируется при дальнейшем охлаждении до температуры 940,7К. Такая же ситуация наблюдается с Eu_2Cl_6 . Однако, образование летучих соединений технологических примесей в некотором диапазоне температур позволяет выделять их из графита. При этом использование галогенов в качестве окислителя обеспечивает также выделение из графита радионуклида ^{36}Cl , который также может присутствовать в облученном графите.

Температура плазменного потока в точке ввода дифторхлорметана не должен превышать 2470К. Анализ литературных данных по генераторам высокочастотной плазмы и собственные экспериментальные результаты по измерению температуры показывают, что температурой плазменного потока можно управлять изменяя состав плазмообразующей аргон-гелиевой смеси.

ВЫВОД. Показано, что в потоке низкотемпературной плазмы возможно практически полное разделение в один этап ядерного графита от радиоактивных технологических примесей.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Раменков А.А. Достигнуты результаты // РЭА. – 2011. – №3. – С. 32-35.
2. Izmetiev A., Pavliuk A., Kotlyarevsky S. Application of void-free filling technology for additional safety barriers creation during uranium-graphite reactors decommissioning // Advanced Materials Research. – 2015. – V.1084. – PP. 613-619.
3. Цыганов А.А., Комаров Е.А, Павлюк А.О, Котляревский С.Г. Проблема утилизации реакторного графита остановленных промышленных уран-графитовых реакторов // Известия Томского политехнического университета. – 2007. – Т.310. – №2. – С. 94-98.
4. Myshkin V.F., Khan V.A. Plekanov V.G., Izhoukin D.A., Bepala E.V. Spin isotope separation under incomplete carbon oxidation in a low-temperature plasma in an external magnetic field // Russian Phys. J.. – 2015. – V.57. – № 10. – PP. 1442-1448.
5. Бушуев А.В., Кожин А.Ф., Зубарев В.Н. Возможность утилизации отработавших графитовых втулок реакторов СХК путем сжигания // Атомная энергия. – 2003. – Т.94. – №2. – С. 130-137.
6. Пат. 2394758 РФ. МПК6 C01B31/04. Способ получения чистого графита / Перевезенцев В.П., Авдеенко М.А., Вылков В.Г., Полонский И.О. Заявлено 08.08.2008; Оpubл. 20.07.2010, – 5 с.