УДК 536.422.1

Исследование процесса испарения облученного реакторного графита в равновесной низкотемпературной плазме^{*}

Е.В. Беспала¹, И.Ю. Новоселов², А.О. Павлюк¹, С.Г. Котляревский¹

¹Акционерное общество «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых реакторов», Северск, Томская область

²Томский политехнический университет

E-mail: bespala_evgeny@mail.ru

В работе описана проблема накопления облученного графита, образующегося при эксплуатации уранграфитовых ядерных реакторов. Показано, что основными неуглеродными загрязнителями, вносящими наибольший вклад в суммарную удельную активность графита, являются ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ⁹⁰Sr, ³⁶Cl и ³H. Предложен способ плазменной переработки облученного графита, позволяющий проводить объемную дезактивацию. Представлены результаты расчета равновесного состава продуктов плазмохимических реакций в системах «облученный графит–аргон» и «облученный графит–гелий» в широком диапазоне температур. Описана разработанная математическая модель процесса очистки пористой поверхности графита в равновесной низкотемпературной плазме. Приведены результаты расчета скорости сублимации радиоактивных загрязнителей в зависимости от температуры плазмы и скорости прокачки плазменного потока при использовании различных плазмообразующих газов. Проведена оценка степени извлечения ¹³⁷Cs с внешней поверхности поры графита. Выявлены и доказаны преимущества использования более легкого плазмообразующего газа — гелия.

Ключевые слова: облученный графит, плазма, переработка, дезактивация.

Введение

После остановки канальных уран-графитовых ядерных реакторов возникает проблема обращения с облученным ядерным графитом кладки реактора, служащим замедлителем нейтронов при его эксплуатации. Графитовые радиоактивные отходы (PAO) существенно отличаются по ряду параметров от PAO других типов, что обуславливает особый подход к решению данной задачи. Во-первых, графитовая кладка реактора не заменяется в процессе эксплуатации реактора (за исключением графитовых втулок) и в процессе работы подвергается нейтронному облучению [1]. Во-вторых, реакторный графит кладки имеет уникальную пористую структуру и кристаллическую решетку, изменение которой при воздействии эксплуатационных факторов приводит к изменению физико-механических свойств графита [2]. В-третьих, в процессе эксплуатации ядерного реактора графит не приобретает никаких уникальных свойств, определяющих перспективы его дальнейшего полезного использования. В связи с этим возникает необходимость

^{*} Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 16-38-00382 мол_а) и гранта УМНИК (№ 10212ГУ/2015).

[©] Беспала Е.В., Новоселов И.Ю., Павлюк А.О., Котляревский С.Г., 2018

разработки способов и устройств для переработки облученного ядерного графита с целью снижения класса радиоактивности отходов и уменьшения себестоимости захоронения.

В работе [3] приведены результаты исследования радиоактивного загрязнения втулок уран-графитового реактора. Установлено, что в состав загрязнителей входят активационные радионуклиды ³H, ¹⁴C, ⁵⁵Fe, ⁶⁰Co и др., продукты деления ⁹⁰Sr, ¹⁰⁶Ru, ¹²⁵Sb, ¹³³Ba, ¹³⁷Cs, ¹⁵⁴Eu, ¹⁵⁵Eu и др. и трансурановые элементы ²⁴¹Am, ²⁴³Am, ²⁴⁴Cm и др. При этом основными неуглеродными загрязнителями, вносящими наибольший вклад в суммарную удельную активность, являются ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ⁹⁰Sr, ³⁶Cl и ³H.

Современная наука предлагает различные способы утилизации графитовых РАО: остекловывание [4], анодирование в содержащем кислород электролите [5], термохимическая обработка [6], сжигание в среде термического окислителя и пиролиз [7]. Большинство указанных выше способов ведут к увеличению объемов РАО, поскольку образуются газообразные радиоактивные соединения и их смеси, для улавливания которых необходимо использование дополнительных технических средств (барботеров, скрубберов и т.д.).

Одним из перспективных способов дезактивации облученного ядерного графита является плазменная обработка [8]. Разработка плазменной технологии переработки РАО сопровождается большими дозовыми нагрузками при экспериментальных исследованиях. Математическое моделирование позволяет значительно уменьшить объем экспериментальных исследований и оптимизировать процесс. Настоящее исследование посвящено моделированию процессов тепломассопереноса при воздействии потока низкотемпературной плазмы на загрязненный радионуклидами графит.

1. Термодинамическое моделирование равновесного состава

Процесс плазменной дезактивации облученного ядерного графита предполагает взаимодействие высокотемпературного плазменного потока с обрабатываемой поверхностью, в результате чего происходит испарение или сублимация примесей, находящихся в нем. Очевидно, что для уменьшения количества образующихся вторичных РАО при высокотемпературной переработке графитовых элементов необходимо использовать в качестве теплоносителя инертные газы, например, аргон или гелий. Однако в этом случае возможно образование различных химических соединений, обусловленных наличием в графите различных радионуклидов. Образующиеся радиоактивные продукты плазмохимической реакции имеют различные физико-химические свойства и для их иммобилизации требуются различные подходы и методы. В этой связи проводился расчет равновесного состава продуктов плазмохимических реакций при плазменной переработке облученного графита в инертной среде.

Термодинамическое моделирование выполнялось в специализированной программе ТЕРРА [9, 10]. Предполагалось, что количество углерода намного больше, чем количество наиболее активных радионуклидов: ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ⁹⁰Sr, ³⁶Cl, ³H. Результаты расчета представлены на рис. 1, при этом из графика исключены инертный плазмообразующий газ аргон и углерод.

Наиболее вероятными химическими соединениями, в которых могут находиться радионуклиды в облученном графите, являются хлориды и гидриды, что объясняется наличием примесей хлора (³⁶Cl) и водорода (³H). При температуре от 500 до 2000 °C все радионуклиды, за исключением ⁶⁰Co, находятся в форме хлоридов (SrCl₂, SrCl, CsCl). На рис. 1 видно, что путем изменения среднемассовой температуры плазмы можно проводить процесс селективного испарения (сублимации) радионуклидов с поверхности облученного графита, что позволяет снизить активность РАО. Так, в диапазоне температур от 500 до 3000 °C при давлении, близком к атмосферному, происходит селективное

Теплофизика и аэромеханика, 2018, том 25, № 1



Рис. 1. Равновесный состав продуктов плазмохимических реакций при очистке облученного графита в низкотемпературной плазме.

испарение металлического цезия, а в интервале температур от 600 до 4000 °С — металлического стронция.

Следует отметить, что при повышении газовой температуры плазмы в последнюю очередь будет испаряться металлический кобальт, находящийся в графите в виде радионуклида ⁶⁰Со. Связано это с тем, что данный радионуклид не образует никаких соединений и имеет температуру кипения порядка 2870 °C. Углерод, из которого состоят графитовые элементы ядерного реактора, начинает испаряться при температуре плазмы более 3000 °C. Таким образом, при плазменной переработке облученного графита возможно селективное удаление радионуклидов с его поверхности путем изменения температуры плазмы.

2. Моделирование процесса очистки облученного графита в плазме

Причинами глубинного загрязнения облученного ядерного графита являются диффузия, коррозия, образование оксидной пленки и т.п. Наличие такого загрязнения объясняется тем, что в графитовых порах могут присутствовать различные продукты деления и активации, которые проникают туда в результате обезвоживания технологического канала и разгерметизации оболочки ТВЭЛа. При этом скорость и коэффициент диффузии увеличиваются из-за высоких температур в технологической ячейке при инциденте и за счет воздействия нейтронного излучения.

Известно, что пористые материалы дезактивируются трудно, поскольку загрязнение их радионуклидами сопровождается диффузией последних внутрь объема. При дезактивации таких материалов необходимо удалять весь загрязненный слой. Поэтому для переработки облученного графита использовалась равновесная плазма дугового разряда. Предполагалось, что высокотемпературный поток, состоящий из плазмообразующего газа (аргона и гелия), распространяется вдоль образца графита, на поверхности которого находятся поры (рис. 2). Скорость газа на входе в расчетную ячейку высотой *h* над

поверхностью графита составляла u_0 . Считалось, что поперечные и продольные размеры ячейки намного больше толщины испаряемой пленки δ . Графитовая поверхность нагревается за счет контакта с высокотемпературным потоком и теплопередачи от нижней стенки.

Рис. 2. Схема расчетной ячейки.

слой радиоактивного загрязнителя, 2 — графит,
 з — высокотемпературный плазменный поток.





Для моделирования процессов тепломассопереноса радиоактивного загрязнителя, находящегося внутри графитовой поры, решались нестационарные уравнения теплопереноса (1)–(3) в декартовой системе координат. При этом направление оси *x* совпадало с направлением вектора скорости *u* высокотемпературного потока:

$$c_1 \rho_1 \frac{\partial T_1}{\partial t} = \lambda_1 \left(\frac{\partial^2 T_1}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_1}{\partial y^2} \right), \quad h_1 < y < h_1 + \delta, \quad L_1 < x < L_2;$$
(1)

$$c_2 \rho_2 \frac{\partial T_2}{\partial t} = \lambda_2 \left(\frac{\partial^2 T_2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_2}{\partial y^2} \right), \quad h_0 < y < h_2, \quad 0 < x < L_1, \quad L_2 < x < L_3,$$

$$h_0 < y < h_1, \quad L_1 < x < L_2;$$
(2)

$$c_{3}\rho_{3}\frac{\partial T_{3}}{\partial t} = \lambda_{3}\left(\frac{\partial^{2}T_{3}}{\partial x^{2}} + \frac{\partial^{2}T_{3}}{\partial y^{2}}\right), \quad (h_{1} + \delta) < y < h_{2}, \quad L_{1} < x < L_{2},$$

$$h_{2} < y < h_{3}, \quad 0 < x < L_{3},$$
(3)

где c_1 , ρ_1 , λ_1 — теплоемкость, плотность и теплопроводность радиоактивного загрязнителя, c_2 , ρ_2 , λ_2 — теплоемкость, плотность и теплопроводность ядерного графита, c_3 , ρ_3 , λ_3 — теплоемкость, плотность и теплопроводность плазменного потока, h_0 — координата, соответствующая нижней поверхности слоя дезактивируемого графита, h_1 — координата, соответствующая глубине графитовой поры, h_2 — координата, соответствующая глубине графитовой поры, h_3 — координата, соответствующая глубине графитовой поры, h_3 — координата, соответствующая границе плазменного потока, L_1 , L_2 — координаты, соответствующая длине дезактивируемого образца графита, T_1 , T_2 , T_3 — температуры радиоактивного загрязнителя, что теплофизические и газодинамические свойства плазмообразующего газа зависят от температуры плазменной системы в данный момент времени, свойства радиоактивного загрязнителя и графита остаются постоянными. Исходя из этого, были выбраны параметры плазмообразующего газа, представленные в таблице.

Для решения уравнений (1)-(3) выбирались следующие граничные условия:

$$\partial T_2 / \partial x = 0, \quad x = 0, \quad x = L_3, \quad h_0 < y < h_2,$$
(4)

$$\partial T_3 / \partial x = 0, \quad x = 0, \quad x = L_3, \quad h_2 < y < h_3,$$
 (5)

Таблица

Теплофизические и газодинамические параметры различных плазмообразующих газов в зависимости от температуры

Газ	Скорость плаз- менного потока, <i>и</i>	Кинематическая вязкость, <i>v</i>	Теплопроводность, λ	Температуропровод- ность, α
Ar	$u_{\rm Ar} = u_0(T_{\rm Ar}/298)$	$v_{\rm Ar} = 1,37 \cdot 10^{-5} \left(\frac{T_{\rm Ar}}{298}\right)^{1,75}$	$\lambda_{\rm Ar} = 1,54 \cdot 10^{-3} \left(\frac{T_{\rm Ar}^{1,5}}{T_{\rm Ar} + 160} \right)$	$\alpha_{\rm Ar} = 2,04^{-5} \left(\frac{T_{\rm Ar}}{298}\right)^{1,75}$
Не	$u_{\rm He} = u_0 (T_{\rm He} / 298)$	$v_{\rm He} = \frac{3,04 \cdot 10^{-8} (T_{\rm He})^{2.5}}{T_{\rm He} + 80}$	$\lambda_{\text{He}} = 0,146 + 3,339 \cdot 10^{-4} \cdot T_{\text{He}} - 4,219 \cdot 10^{-8} \cdot T_{\text{He}}^2$	$\alpha_{\text{He}} = (0,00103 \cdot T_{\text{He}}^2 + 0,5284 \cdot 10^{-4} \cdot T_{\text{He}} - 62,0524) \cdot 10^{-6}$

Теплофизика и аэромеханика, 2018, том 25, № 1

$$\partial T_2 / \partial y = 0, \quad y = 0, \quad 0 < x < L_3, \tag{6}$$

$$\partial T_3 / \partial y = 0, \quad y = h_3, \quad 0 < x < L_3,$$
(7)

$$-\lambda_1 \cdot \left(\partial T_1 / \partial y\right) = a_1 (T_g - T_s) - \theta_s M_s, \quad L_1 < x < L_2, \quad y = (h_1 + \delta), \tag{8}$$

$$-\lambda_2 \left(\partial T_2 / \partial y\right) = a_2 (T_g - T_{h2}), \quad 0 < x < L_1, \quad L_2 < x < L_3, \quad y = h_2, \tag{9}$$

$$-\lambda_2 \left(\frac{\partial T_2}{\partial x} \right) = a_2 (T_g - T_{L1}), \quad (h_1 + \delta) < y < h_2, \quad x = L_1, \tag{10}$$

$$-\lambda_2 \left(\frac{\partial T_2}{\partial x} \right) = a_2 (T_g - T_{L2}), \quad (h_1 + \delta) < y < h_2, \quad x = L_2, \tag{11}$$

$$\lambda_1 \frac{\partial T_1}{\partial y} = \lambda_2 \frac{\partial T_2}{\partial y} = -a_2 (T_{h_1^-} - T_{h_1^+}), \quad L_1 < x < L_2, \quad y = h_1,$$
(12)

$$\lambda_1 \frac{\partial T_1}{\partial x} = \lambda_2 \frac{\partial T_2}{\partial x} = -a_2 (T_{L_1^-} - T_{L_1^+}), \quad h_1 < y < (h_1 + \delta), \quad x = L_1,$$
(13)

$$\lambda_{1} \frac{\partial T_{1}}{\partial x} = \lambda_{2} \frac{\partial T_{2}}{\partial x} = -a_{2} (T_{L_{2}^{-}} - T_{L_{2}^{+}}), \quad h_{1} < y < (h_{1} + \delta), \quad x = L_{2},$$
(14)

где a_1 — коэффициент теплоотдачи при конвективном теплообмене высокотемпературного газового потока с поверхностным слоем радиоактивного загрязнителя, a_2 — коэффициент теплоотдачи при конвективном теплообмене высокотемпературного газового потока с поверхностным слоем графита, a_3 — коэффициент теплоотдачи при теплообмене между слоем радиоактивного загрязнителя и графитом, $T_{\rm s}$, $\theta_{\rm s}$ — температура и теплота сублимации радиоактивного загрязнителя соответственно, M — массовая скорость сублимации с обрабатываемой поверхности, $T_{\rm g}$ — газовая температура плазменного потока, T_{h2} — температура на границе плазма-графит, T_{L1} , T_{L2} , T_{h1} — температуры на границе радиоактивный загрязнитель-графит.

Из уравнения теплового баланса на поверхности испаряющегося радиоактивного загрязнителя (8) видно, что процесс конвективного теплообмена на границе радиоактивный загрязнитель-плазменный поток определяется режимом течения газа вследствие прямой зависимости коэффициента теплоотдачи *a* от чисел Нуссельта и Рейнольдса:

$$a = \lambda_3 \mathrm{Nu}/(2H),\tag{15}$$

$$Nu = 0,75 \,\text{Re}^{0,43} \,\text{Pr}^{1/3},\tag{16}$$

$$\operatorname{Re} = 2H(u/v_3),\tag{17}$$

$$\Pr = v_3 / \alpha_3, \qquad (18)$$

где *H* — радиус канала, по которому течет плазмообразующий газ, Nu, Re, Pr — числа Нуссельта, Рейнольдса и Прандтля соответственно. Процесс массообмена с учетом уравнения (8) при допущении, что количество паров загрязнителя в объеме высокотем-пературного газового потока пренебрежимо мало, описывается следующим выражением:

$$M = \frac{\beta \mu p_t \exp[-(\theta_s / R_g)(T_s^{-1} - T_t^{-1})]}{R_g T_s},$$
(19)

где p_t , T_t — давление и температура насыщенных паров радиоактивного загрязнителя в тройной точке, $R_{\rm g}$ — универсальная газовая постоянная, μ — молекулярная масса

117

радиоактивного загрязнителя, β — коэффициент массообмена, который вычисляется по формуле

$$\beta = \mathrm{Sh}D/(2H). \tag{20}$$

Здесь *D* — коэффициент диффузии паров радиоактивного загрязнителя в плазменный поток, Sh — число Шервуда, зависящее от чисел Рейнольдса и Шмидта (Sc) следующим образом:

$$Sh = 0,75 \operatorname{Re}^{0,43} \operatorname{Sc}^{1/3},$$
 (21)

$$Sc = v_3 / D. \tag{22}$$

Из графиков, представленных на рис. 1, видно, что в процессе плазменной очистки облученного ядерного графита образующийся радионуклид ¹³⁷Cs имеет достаточно высокую массовую концентрацию по отношению к другим радионуклидам и их соединениям в широком диапазоне температур, поэтому расчеты проводились для металлического цезия, находящегося внутри поры графита (рис. 2).

Вследствие того, что в процессе сублимации радиоактивного цезия происходит его диффузия в высокотемпературный плазменный поток инертного плазмообразующего газа, для решения уравнения (8) необходимо знать параметры это процесса. Поскольку вычисление некоторых параметров диффузии затруднено, то для их определения использовались выражения для коэффициента диффузии цезия в аргон и гелий из работы [11]:

$$D = 69 \cdot 10^{-6} \left(\frac{T_{\rm Ar}}{273}\right)^{1,65},$$
(23)

$$D = 207 \cdot 10^{-6} \left(\frac{T_{\rm He}}{273}\right)^{1.65}.$$
 (24)

Считалось, что в начальный момент времени температура выбранной расчетной ячейки одинакова во всех точках и равна T_0 . Решение уравнений (1)–(3) с граничными условиями (4)–(14) проводилось методом конечно-разностных элементов. Разностные аналоги уравнений (1)–(3) решались локально-одномерным методом, а для решения одномерных разностных уравнений использовался метод прогонки с неявной четырехточечной схемой. В свою очередь, нелинейные уравнения решались методом итераций. Принимались следующие числовые значения параметров, входящих в уравнения (1)–(14): $c_1 = 273$ Дж/кг·К, $c_2 = 710$ Дж/кг·К, $\rho_1 = 1873$ кг/м³, $\rho_2 = 1650$ кг/м³, $\lambda_1 = 10$ Вт/м·К, $\lambda_2 = 150$ Вт/м·К, $\mu = 137$ г/моль, $\theta_s = 43$ кДж/моль, $T_s = 961$ К, $T_t = 400$ К, $p_t = 0,394$ торр, $T_0 = T_w = 298$ К, $u_0 = 10$ м/с, H = 30 мм, $\delta_{Cs} = 2$ мкм, $\delta_C = 20$ мм.

3. Результаты расчетов

В момент контакта высокотемпературного плазменного потока с поверхностью графита происходит нагрев последнего по всей длине расчетной ячейки. При этом возможна очистка облученного графита от радиоактивных загрязнителей в широком диапазоне температур за счет изменения режима течения высокотемпературного потока [12].

Поскольку в качестве источника равновесной низкотемпературной плазмы используется дуговой разряд, в настоящей работе проводилось моделирование процесса тепломассопереноса металлического цезия с внешней поверхности поры при начальных температурах плазмообразующего газа аргона $T_{\rm Ar}$ равных 2700, 1500, 1200 и 900 °C. Результаты расчетов изменения температуры поверхностного слоя пленки цезия в середине поры и массовой скорости сублимации представлены на рис. 3. При этом начальная



Рис. 3. Изменение температуры пленки цезия (*a*) и массовой скорости сублимации (*b*) внутри поры облученного графита при начальной газовой температуре плазменного потока 2700 (*1*), 1500 (*2*), 1200 (*3*), 900 (*4*) °С.

скорость прокачки плазмообразующего газа u_0 была выбрана равной 10 м/с. Выгорание цезиевой пленки внутри поры графита и потеря энергии плазменного потока на излучение не учитывались.

Из рис. За видно, что за счет конвективного теплообмена между потоком аргоновой плазмы и цезием, а также теплопередачи между цезием и графитом максимальная температура плазмы в приповерхностном слое ниже, чем начальная температура газового потока. При начальной среднемассовой газовой температуре аргоновой плазмы 900 °C достигается температура 790 °C, а при 2700 °C — не превышает 2620 °C. При этом время нагревания тонкой пленки цезия внутри поры до максимальной температуры газового потока не превышает двух минут. Очевидно, что количество радиоактивного загрязнителя, испарившегося с внешней поверхности поры, а соответственно и степень извлечения ¹³⁷Cs, будет существенно зависеть от параметров высокотемпературного потока (рис. 3*b*). С повышением газовой температуры плазмы увеличивается массовая скорость сублимации цезия. Из графиков видно, что при температуре плазменного аргонового потока 2700 °C время выхода рассматриваемой системы внутри поры на квазистационарный режим составляет 1,5–2 мин., а скорость сублимации ~ 60 мг/(м²·с). С уменьшением газовой температуры аргоновой плазмы снижается степень извлечения радионуклида с поверхности графита.

Оценим степень извлечения металлического цезия с внешней поверхности поры графита при его обработке высокотемпературным аргоновым потоком. Исходя из того, что начальное содержание ¹³⁷Cs зависит от толщины пленки δ_{Cs} и плотности графита, степень извлечения ε в момент времени *t* будет определяться по формуле

$$\varepsilon = Mt/(\rho_1 \delta_{\rm Cs}), \tag{25}$$

где ρ_1 — плотность металлического цезия, δ_{Cs} — толщина пленки цезия внутри поры, S — площадь поверхности пленки, M — массовая скорость сублимации цезия.

Расчетные данные показывают, что при начальной газовой температуре плазменного потока 900 °C степень извлечения на участке 1 мм² (наибольшая площадь открытой поверхности поры в облученном графите) через 30 минут после начала процесса составит 6,7, а при температуре 2700 °C — превысит 28. В первом случае время полной дезактивации составит не более 4,5 минут, во втором — около 1 минуты.

Степень очистки облученного графита от радиоактивных загрязнителей, находящихся внутри поры, зависит от газодинамического режима, а именно, от скорости прокачки плазменного потока вдоль дезактивируемой поверхности. Расчет проводился при начальной газовой температуре плазмы 1500 °C. Результаты вычислений изменения температуры поверхностного слоя пленки цезия внутри поры и массовой скорости





сублимации при начальных скоростях высокотемпературного газового потока 1, 5, 10, 20 и 40 м/с представлены на рис. 4.

Скорость движения плазменного потока вдоль дезактивируемого образца незначительно влияет на процесс теплопередачи (рис. 4а). Из графиков видно, что время выхода нагреваемой пористой системы на квазистационарный термодинамический режим не превышает 2,7 минут в интервале скоростей подачи газа 5-40 м/с. Исключение составляет кривая 5, которая соответствует начальной скорости прокачки высокотемпературного потока 1 м/с. Вероятно, это связано с тем, что при установившемся режиме течения плазмы не происходит значительных изменений в энергетическом балансе системы. Однако из рис. 4b видно, что скорость прокачки газа существенно влияет на массовую скорость сублимации металлического цезия с внешней поверхности поры графита: с увеличением скорости высокотемпературного потока возрастает и скорость сублимации. При этом скорость сублимации графита при начальной скорости движения газа 40 м/с в 9 раз выше, чем при 1 м/с. Это можно объяснить тем, что при увеличении скорости плазменного потока увеличивается количество газа, контактирующего с подложкой. В результате за счет увеличения перепада концентрации цезия увеличивается количество его паров, диффундирующих в поток аргона. Степень извлечения металлического цезия через 30 минут после начала процесса при начальной скорости газа 1 м/с составит 4,8, а при 40 м/с — превысит 43. Соответственно, в первом случае время полной дезактивации поры графита не превысит 6,5 минут, во втором — 0,7 минут. Стоит заметить, что время дезактивации всей пористой поверхности графита не зависит от общего количества пор.

Для сравнения эффективности очистки облученного графита от радиоактивных загрязнителей в виде пленки цезия ¹³⁷Cs проводилось моделирование системы, в которой в качестве плазмообразующего газа использовался инертный газ — гелий. Считалось, что коэффициент диффузии паров цезия в ионизированный гелий (см. уравнение (24)) зависит от газовой температуры плазмы. Результаты расчетов изменения температуры поверхностного слоя пленки цезия в середине поры и массовой скорости сублимации представлены на рис. 5. Начальная скорость прокачки высокотемпературного потока выбиралась равной 10 м/с. Видно, что, в отличии от аргоновой плазмы, время перехода термодинамической системы в квазистационарное состояние увеличивается (рис. 5*a*). Наблюдается более плавное изменение температуры, что дает возможность контролировать параметры системы. Однако в случае с гелием в результате отвода тепла вместе с продуктами дезактивации температура плазменного потока вблизи поверхности поры не достигает своего максимального значения, что характерно для других плазмообразующих газов.



Рис. 5. Изменение температуры пленки цезия (*a*) и массовой скорости сублимации (*b*) внутри поры облученного графита при начальной газовой температуре гелиевой плазмы 900 (*1*), 1200 (*2*), 1500 (*3*), 2700 (*4*) °C.

Определим степень извлечения радиоактивных загрязнителей через 30 минут после начала процесса. При начальной температуре гелиевой плазмы 2700 °C она составит 52, а при 900 °C будет не менее 13, что в 1,85 раз больше, чем при идентичных условиях в аргоновой плазме. В первом случае время полной дезактивации поры графита не превысит 3,4 секунды, во втором — 2,23 минуты. Таким образом, использование гелия в качестве теплоносителя в низкотемпературной плазме уменьшает время дезактивации облученного графита.

Заключение

В настоящей работе представлена разработанная математическая модель, описывающая процесс тепломассопереноса при взаимодействии высокотемпературного плазменного потока с пористой поверхностью облученного графита. Эта модель использовалась для расчета степени извлечения металлического цезия с внешней поверхности поры графита при его плазменной дезактивации. Показано, что на эффективность очистки облученного графита от радиоактивных примесей существенно влияет газовая температура плазмы, газодинамический режим истечения плазменного потока, а также качественный состав плазмообразующего газа. Выявлены и доказаны преимущества использования более легко плазмообразующего газа (гелия). Расчеты показали, что пористая графитовая поверхность может быть полностью дезактивирована от радиоцезия гелиевой плазмой с температурой 2700 °С и скоростью прокачки газа 10 м/с за время, не превышающее 3,4 секунды.

Список литературы

- 1. Bespala E.V., Pavliuk A.O., Kotlyarevskiy S.G. Analysis of winger energy release process in graphite stack of shut-down uranium-graphite reactor // IOP Conf. Series: Materials Sci. and Engng. 2015. Vol. 93. P. 1–5.
- Виргильев Ю.С., Калягин И.П., Макарченко В.Г. Влияние степени совершенства структуры графита на изменение его размеров при нейтронном облучении // Атомная энергия. 1974. Т. 36. С. 310–312.
- 3. Бушуев А.В., Кожин А.Ф., Зубарев В.Н. и др. Возможность утилизации отработавших графитовых втулок реакторов СХК путем сжигания // Атомная энергия. 2003. Т. 94, № 2. С. 130–137.
- Lee W.E., Ojovan M.I., Stennett M.C., Hyatt N.C. Immobilisation of radioactive waste in glasses, glass composite materials and ceramics // Advances in Applied Ceramics. 2006. Vol. 105, No. 1. P. 3–12.
- 5. Головачев М.Г., Лисовских В.Г. Аспекты экологически приемлемой технологии переработки графитовых радиоактивных отходов // Проблемы радиоэкологии и пограничных дисциплин. 2010. Т. 14. С. 314–326.
- Ojovan M.I., Lee W.E., Sobolev I.A. et al. Thermochemical processing using powder metal fuels of radioactive and hazardous waste // J. Process Mechanical Engng. 2004. Vol. 218. P. 1–9.

- 7. Пат. 2546981 РФ, МПК⁵¹¹ G21F9/00 (2006.01). Способ обработки облученного реакторного графита / Роменков А.А., Туктаров М.А., Карлина О.А., Юрченко А.Ю; заявитель и патентообладатель ОАО «НИКИЭТ». № 2013146306/07; заявл. 16.10.2013; опубл. 10.04.2015, Бюл. № 10.9 с.
- Bespala E., Novoselov I., Ushakov I. Heat transfer during evaporation of cesium from graphite surface in an argon environment // MATEC Web of Conference. 2016. Vol. 72. P. 1–5.
- Трусов Б.Г. Программная система ТЕРРА для моделирования фазовых и химических равновесий в плазмохимических системах // Сб. материалов III Междунар. симп. по теорет. и прикл. плазмохимии. 2002. С. 217–220.
- **10. Белов Г.В., Трусов Б.Г.** Термодинамическое моделирование химически реагирующих систем. М.: МГТУ им. Н.Э. Баумана, 2013. 96 с.
- 11. Арефьев К.М., Боришанский В.М., Воронцова Л.А. и др. Коэффициенты диффузии паров щелочных металлов в инертных газах. М.: ГУП МосНПО Радон, 2007. 376 с.
- 12. Беспала Е.В., Павлюк А.О., Котляревский С.Г. Влияние газодинамики высокотемпературного потока на эффективность переработки ядерного графита // Альтернативная энергетика и экология. 2015. № 23. С. 19–25.

Статья поступила в редакцию 25 января 2017 г., после доработки — 20 марта 2017 г.