

Роль ионного и термического распыления радиоактивных отложений в процессе ионно-плазменной дезактивации ядерных энергетических установок

© А.С. Петровская, А.Б. Цыганов

ООО „ИнноПлазмаТех“, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: anita3425@yandex.ru

Поступило в Редакцию 25 апреля 2024 г.

В окончательной редакции 10 июня 2024 г.

Принято к публикации 30 октября 2024 г.

Одной из актуальных мировых проблем ядерной энергетики является вывод из эксплуатации реакторных установок с дезактивацией реакторного и энергетического оборудования, а также дезактивация поверхностей первого контура при плановых остановах реакторов. Для решения данной проблемы нами предлагается ионно-плазменная „сухая“ технология дезактивации. Представлены расчеты необходимых скоростей ионного и термического распыления реакторного графита и радиоактивных отложений с дезактивируемых поверхностей внутриконтурного оборудования ядерных энергетических установок.

Ключевые слова: вывод из эксплуатации, поверхностные радиоактивные отложения, ядерные энергетические установки, ионно-термическая технология дезактивации, дезактивация поверхности металлоконструкций, реакторный графит.

DOI: 10.61011/PJTF.2024.23.59405.6402k

Проблема вывода из эксплуатации ядерных энергетических установок (ЯЭУ) ставит задачу поиска эффективных технологий дезактивации металлоконструкций ЯЭУ, а также реакторного графита. До 2049 г. планируется вывод из эксплуатации 15 реакторов ВВЭР и 11 реакторов РБМК [1]. Известно также, что накопленные объемы облученного реакторного графита в мире ~ 260 тыс. тонн, а в России ~ 50–60 тыс. тонн. Предлагаемые в последние годы различные технологии дезактивации графита, включающие кислотное травление, абразивную обработку, измельчение на фракции, термическое испарение и т.п., приводят к многократному увеличению объема вторичных радиоактивных отходов (РАО) [2,3]. Однако данные [4] о пространственном распределении дозообразующего радионуклида ^{14}C (период полураспада 5700 лет), составляющего 95% активности в графитовом блоке, свидетельствуют о том, что наибольшая его доля локализована в приповерхностном слое (глубиной до 5 мм), что открывает путь для разработки новых подходов к дезактивации реакторного графита.

Радиоактивные загрязнения внутренних поверхностей трубопроводов ЯЭУ вызваны активированными продуктами коррозии металлических конструкций реактора и в некоторых случаях продуктами деления вследствие их переноса теплоносителем. Например, коррозия металлоконструкций из нержавеющей стали дает отложения в виде шпинелей $\text{Ni}_m\text{Cr}_m\text{Fe}_{3-n-m}\text{O}_4$ ($n = 0-2$, $m = 2-n$), $\text{Ni}_n\text{Fe}_{3-n}\text{O}_4$ ($n = 0-2$) или смешанных ферритов кобальта и никеля $(\text{CoO})_x(\text{NiO})_y(\text{FeO})_{1-x-y}\text{Fe}_2\text{O}_3$, где $1 > y \gg x$ [5]. Однако традиционные технологии дезактивации внутриконтурного оборудования ЯЭУ (химические, ультразвуковые, электролитические и др.) приводят к увеличению объемов вторичных РАО, коррозии

арматуры и трубопроводов, при этом выбор типа раствора, его концентрации и режима дезактивации сложным и неоднозначным образом зависит от характера радиоактивного отложения и дезактивируемого металла [6,7].

В настоящей работе мы предлагаем „сухую“ ионно-плазменную технологию дезактивации, позволяющую удалять радиоактивный слой с поверхностей металлоконструкций ЯЭУ, а также поверхностный слой реакторного графита, обогащенный изотопом ^{14}C .

Базовые принципы ионно-плазменной технологии основаны на ионном и термическом распылении радиоактивных отложений с дезактивируемой поверхности при зажигании укороченного разряда (длина разрядного промежутка порядка 1–5 мм) между дезактивируемой поверхностью (катод) и сменным электродом-коллектором (анод) в инертном газе (аргон) при давлении 0.1–1 atm. Рабочее напряжение на разрядном промежутке 100–1000 В, плотность тока 0.1–1 А/см². Технология реализуется посредством мобильного распылительного устройства [8], перемещающегося при помощи манипулятора по дезактивируемой поверхности. Для дезактивации внутренней поверхности трубопроводов ЯЭУ используется вариант распылительного устройства со сменным электродом-коллектором (пластиной, по форме подобной внутренней поверхности трубопровода) [8,9], которое также перемещается посредством манипулятора внутри труб. Удаление радиоактивного загрязнения осуществляется за счет ионного и термического распыления поверхностных атомов в укороченном разряде, при этом ионное распыление обеспечивается ионами аргона, получившими энергию более 100 eV в области катодного падения разряда. Скорость ионного распыления и толщина распыленного слоя зависят от

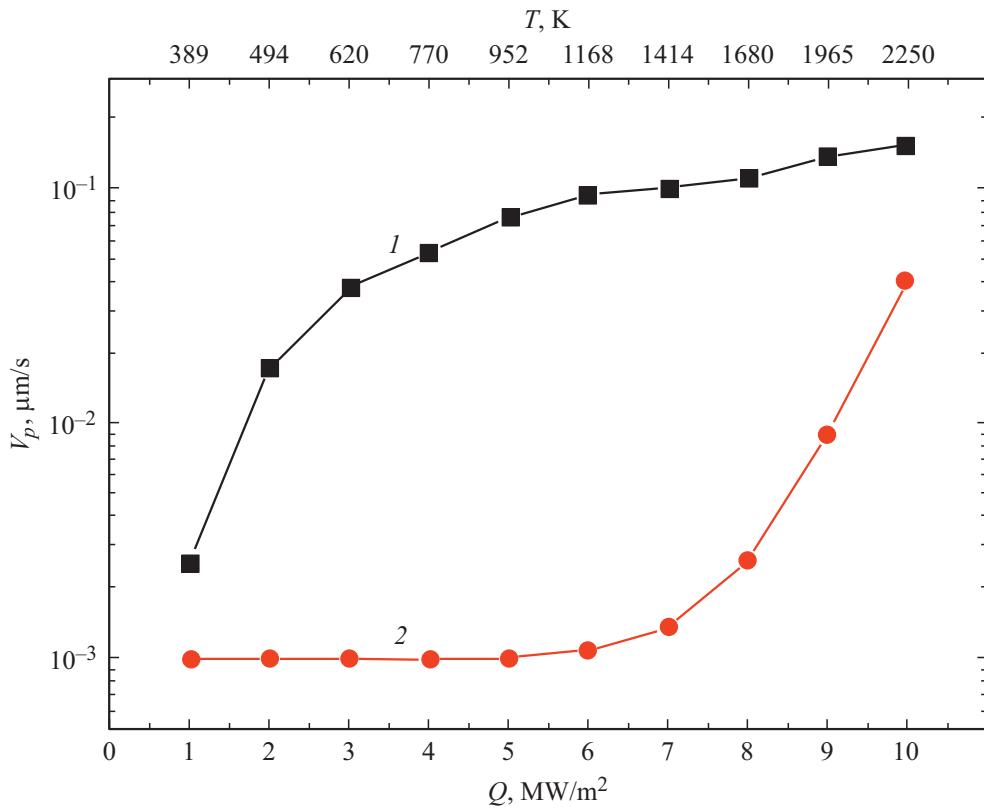


Рис. 1. Зависимости скорости V_p ионного (1) и термического (2) распыления реакторного графита от вкладываемой мощности Q в разряд и соответствующей температуры T обрабатываемой поверхности графита.

мощности, вкладываемой в разряд, при этом распыленные атомы с дезактивируемой поверхности в режиме массопереноса осаждаются на электроде-коллекторе (аноде) в виде твердого осадка. Важно подчеркнуть, что технология свободна от образования вторичных РАО, так как отсутствуют реакции распыленных радионуклидов с инертным газом (аргон). Детальное описание технологии представлено в нашем совместном патенте с ГК „Росатом“ [10].

Для оценки технологической скорости термического распыления реакторного графита решалась задача теплопроводности и были найдены максимальные значения температуры на поверхности графитового блока РБМК (марки ГР-280) в процессе его дезактивации распылительным устройством в зависимости от мощности разряда (10^6 – 10^7 W/m²). Полученные значения температуры обрабатываемой поверхности графита лежат в диапазоне 400–2250 К. На основе данных [11] о скоростях испарения графита в среде аргона при давлении 1 atm в диапазоне температур 2200–2600 К методом экстраполяции определена скорость термического распыления реакторного графита в диапазоне температур 400–2250 К, при этом скорость ионного распыления реакторного графита была определена по формуле

$$V_p = K j M_C / e N_a \rho, \quad (1)$$

где K — коэффициент распыления графита, e — заряд электрона, ρ — плотность реакторного графита [g/cm³], j — плотность тока ионов, M_C — масса атомов углерода, N_a — число Авогадро. В укороченном разряде, применяемом при дезактивации, фактически 90% от напряжения 100–1000 В в разрядном промежутке падает вокруг катода (в виде катодного падения); следовательно, ионы аргона вблизи катода приобретают энергию свыше 100 eV. Коэффициент распыления реакторного графита ионами аргона с энергией из диапазона 100–1000 eV был рассчитан с использованием программы SRIM (The Stopping and Range of Ions in Matter) [12], построенной на основе метода Монте-Карло и приближении парных столкновений ионов и атомов мишени. Зависимости скоростей ионного и термического распыления реакторного графита от мощности разряда и соответствующих температур обрабатываемой поверхности графита приведены на рис. 1. Из полученных данных видно, что термическое распыление вносит вклад при повышении температуры дезактивируемой поверхности более 2000 К, при этом также ускоряется процесс термодиффузии других радионуклидов из объема графитового блока к поверхности, что дополнительно способствует очистке графитовой матрицы.

При дезактивации металлоконструкций ЯЭУ также имеет место механизм ионного распыления радиоактивных отложений. На примере дезактивации металлокон-

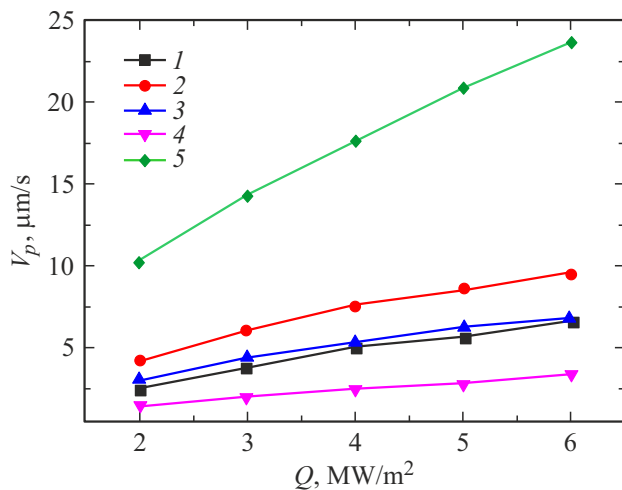


Рис. 2. Зависимости скорости ионного распыления V_p радиоактивных отложений (1 — NiCrFeO₄, 2 — NiFe₂O₄, 3 — Fe₂O₃, 4 — TiO₂, 5 — U₃O₈) внутриконтурного оборудования ЯЭУ от вкладаваемой мощности Q в разряд.

струкций, содержащих радиоактивные отложения в виде NiCrFeO₄, NiFe₂O₄, Fe₂O₃, TiO₂ и U₃O₈, рассчитаны скорости их распыления ионами аргона в диапазоне энергий 200–600 eV, а коэффициенты распыления получены с использованием программы SRIM. На рис. 2 приведены зависимости скоростей ионного распыления указанных выше отложений от вкладаваемой мощности в разряд. Как ранее было показано нами в [10], в случае дезактивации металлоконструкций ЯЭУ важно избежать перегрева обрабатываемой поверхности. Для этого оптимальным режимом дезактивации является импульсное зажигание разряда продолжительностью 1–2 с при вкладаваемой мощности в разряд не более $6 \cdot 10^6$ W/m², что создает температуру на дезактивируемой поверхности не более 1000 К. Поэтому ионный режим распыления радиоактивных отложений с внутренних поверхностей внутриконтурного оборудования является предпочтительным.

Таким образом, в работе рассмотрены две актуальные проблемы вывода из эксплуатации ЯЭУ (проблемы дезактивации внутриконтурного оборудования ЯЭУ и обращения с облученным реакторным графитом), для решения которых авторами разрабатывается мобильная ионно-плазменная технология, позволяющая удалить и компактно собрать радионуклиды с наименьшим объемом вторичных и жидких радиоактивных отходов непосредственно на месте расположения ЯЭУ. На примере дезактивации реакторного графита марки ГР-280 рассчитаны скорости ионного и термического распыления поверхностного слоя, при этом суммарная скорость распыления при вкладаваемой мощности в разряд $\sim 1 \cdot 10^7$ W/m² имеет значение порядка 0.1 мкм/с. Показано, что процесс термического распыления при дезактивации реакторного графита вносит вклад при температурах выше 2000 К. Также рассчитаны скорости ионного распыления радиоактивных отложений

NiCrFeO₄, NiFe₂O₄, Fe₂O₃, TiO₂ и U₃O₈ с внутренних поверхностей внутриконтурного оборудования ЯЭУ, при этом скорости ионного распыления лежат в диапазоне 5–25 мкм/с в зависимости от удаляемого осадка. Полученные значения скорости распыления радиоактивных отложений будут использованы для оценки времен дезактивации объектов ЯЭУ при плановых остановках и выводе из эксплуатации.

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 24-29-00321 (<https://rscf.ru/project/24-29-00321/>).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Б.К. Былкин, Г.Б. Давыдова, Е.А. Журбенко, Атомная энергия, **110** (3), 171 (2011). [B.K. Bylkin, G.B. Davydova, E.A. Zhurbenko, Atom. Energy, **110** (3), 203 (2011). DOI: 10.1007/s10512-011-9411-7].
- [2] В.Ф. Мышкин, Е.В. Беспала, А.О. Павлюк, Ю.Р. Беспала, И.Ю. Новоселов, Изв. вузов. Ядерная энергетика, № 3, 154 (2019). DOI: 10.26583/npe.2019.3.14
- [3] D. Vulpius, K. Baginski, B. Kraus, B. Thomauske, Nucl. Eng. Des., **265**, 294 (2013). DOI: 10.1016/j.nucengdes.2013.09.007
- [4] D. LaBrier, M.L. Dunzik-Gougar, J. Nucl. Mater., **460**, 174 (2015). DOI: 10.1016/j.jnucmat.2015.01.063
- [5] С.Н. Орлов, А.А. Змитродан, В.В. Кривообоков, Теплоэнергетика, № 5, 32 (2021). DOI: 10.1134/S0040363621040044 [S.N. Orlov, A.A. Zmitrodan, V.V. Krivobokov, Therm. Eng., **68** (5), 361 (2021). DOI: 10.1134/S0040601521040042].
- [6] S. Liu, Y. He, H. Xie, Y. Ge, Y. Lin, Z. Yao, M. Jin, J. Liu, X. Chen, Y. Sun, B. Wang, Sustainability, **14** (7), 4021 (2022). DOI: 10.3390/su14074021
- [7] R.N. Yastrebinsky, V.I. Pavlenko, A.A. Karnauhov, IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng., **687** (6), 066053 (2019). DOI: 10.1088/1757-899X/687/6/066053
- [8] А.С. Петровская, А.Б. Цыганов, патент РФ № 2771172 (2022).
- [9] А.С. Петровская, А.Б. Цыганов, ФТТ, **65** (12), 2184 (2023). DOI: 10.61011/FTT.2023.12.56755.5167k [A.S. Petrovskaya, A.B. Tsyganov, Phys. Solid State, **65** (12), 2095 (2023). DOI: 10.61011/PSS.2023.12.56764.5167k].
- [10] А.С. Петровская, А.Б. Цыганов, М.Р. Стахив, патент РФ № 2711292, EP 19888171.6, US 20210272715, CA3105179A1, CN112655056A (2020).
- [11] А.Е. Чальх, Технология и оборудование электродных и электроугольных предприятий (Металлургия, М., 1972).
- [12] J.F. Ziegler, M.D. Ziegler, J.P. Biersack, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, **268** (11), 1818 (2010). DOI: 10.1016/j.nimb.2010.02.091