

О выборе инертного газа для ионно-плазменной технологии дезактивации реакторного оборудования

© А.С. Петровская, А.Б. Цыганов

ООО „ИнноПлазмаТех“, Санкт-Петербург, Россия
E-mail: anita3425@yandex.ru

Поступило в Редакцию 2 мая 2025 г.

В окончательной редакции 8 июля 2025 г.

Принято к публикации 8 июля 2025 г.

Дезактивация внутренконтурного оборудования реакторов при плановых остановах и выводе из эксплуатации является одной из актуальных проблем ядерной энергетики. Разрабатываемая нами для решения данной проблемы „сухая“ ионно-плазменная технология дезактивации позволяет избежать формирования вторичных жидких радиоактивных отходов. Выполнен расчет коэффициентов и скоростей ионного распыления отложений в форме оксидов и шпинелей для разных ионов инертных газов с целью выбора наиболее эффективной среды для дезактивации. Установлено, что наиболее эффективным для реализации технологии является аргон.

Ключевые слова: вывод из эксплуатации, поверхностные радиоактивные отложения, ядерные энергетические установки, ионно-термическая технология дезактивации, сокращение вторичных радиоактивных отходов, внутренконтурное реакторное оборудование.

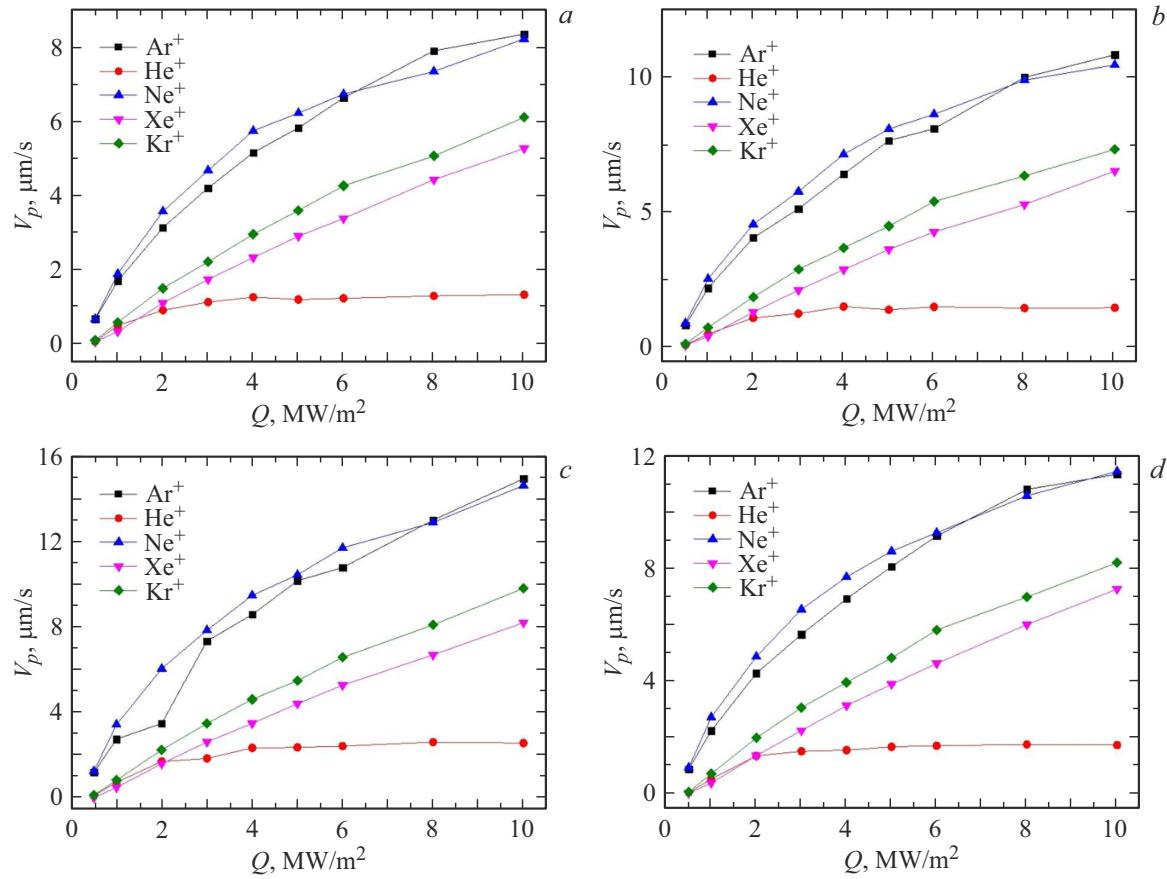
DOI: 10.61011/PJTF.2025.24.62097.7991

Для решения одной из актуальных проблем ядерной энергетики — дезактивации внутренконтурного оборудования реакторных установок (РУ) — нами разрабатывается принципиально новая „сухая“ ионно-плазменная технология, основанная на применении укороченного разряда в инертном газе для удаления поверхностных радиоактивных отложений. Радиационными загрязнениями внутренних поверхностей трубопроводов РУ являются активированные продукты коррозии в форме соединения оксидов металлов и шпинелей с общей формулой $Ni_nCr_mFe_{3-n-m}O_4$ ($n = 0-2$, $m = 2 - n$), $Ni_nFe_{3-n}O_4$ ($n = 0-2$) или смешанных ферритов кобальта и никеля $(CoO)_x(NiO)_y(FeO)_{1-x-y}Fe_2O_3$, где $1 > y \gg x$ [1]. Например, состав отложений в активной зоне водо-водяного энергетического реактора для парогенераторных трубок из никелевых сплавов состоит из внутреннего $Ni_xFe_{1-x}Cr_2O_4$ ($0 < x < 1$) и внешнего $Ni_xFe_{3-x}O_4$ ($x = 0.6$) слоев или магнетита Fe_3O_4 для парогенераторных трубок из нержавеющей стали. В реакторе ВК-50 (многоцелевой исследовательский реактор „водяной кипящий 50 MW“) состав отложений определяется оксидом γ - Fe_2O_3 , в транспортных ядерных энергетических установках отложения содержат соединения Fe_3O_4 , α - Fe_2O_3 , γ - Fe_2O_3 и γ - $FeOOH$ с примесями легирующих элементов Cr, Ni, Mn при их различном соотношении [2]. Химические процессы формирования поверхностных радиоактивных отложений сложны, их химический состав определяется типом РУ и условиями ее эксплуатации. Например, при низкой температуре в деаэрированном водном теплоносителе преимущественно образуется гидрат закиси железа Fe_3O_4 . В воде, насыщенной кислородом, железо окисляется до γ - $FeOOH$, который при $T > 520$ К трансформируется в рыхлый порошок гематита α - Fe_2O_3 , а последний восстанавливается

металлом до магнетита Fe_3O_4 , который окисляется кислородом до α - Fe_2O_3 . При контакте с водным теплоносителем образуются также вюстит (FeO), магемит (γ - Fe_2O_3), гетит (α - $FeOOH$), акаганит (β - $FeOOH$) и шпинель типа $NiO(Cr,Fe)_2O_3$ [3]. Часто радиоактивные отложения образуют двухфазные окалины, в которых шпинель диспергирована в матрице простого окисла основного элемента. При окислении сплавов Fe–Cr вблизи металла сначала формируются FeO и $FeCr_2O_4$, затем FeO переходит в Fe_3O_4 , который с $FeCr_2O_4$ образует шпинель $Fe(FeCr)_2O_4$. Таким образом, на внешней поверхности окисла образуется Fe_2O_3 , а шпинель превращается в $(FeCr)_2O_3$ [4]. Наиболее часто и широко применяемыми технологиями дезактивации внутренконтурного оборудования РУ являются радиохимические методы, приводящие к увеличению объемов вторичных жидких радиоактивных отходов (ЖРО), коррозии арматуры и трубопроводов, при этом выбор типа раствора, его концентрации и режима дезактивации зависит от типа радиоактивного отложения и дезактивируемого металла [5,6].

Для эффективного решения проблемы дезактивации внутренконтурного оборудования нами предлагается принципиально новая „сухая“ ионно-плазменная технология, свободная от формирования вторичных ЖРО и позволяющая посредством ионного распыления удалять слой радиоактивного отложения независимо от его химического состава.

Физические принципы ионно-плазменной технологии дезактивации базируются на использовании процессов ионного распыления поверхностных радиоактивных отложений с дезактивируемой поверхности в условиях зажигания укороченного разряда (длина разрядного промежутка порядка 1–5 mm) между дезактивируемой по-



Зависимости скорости V_p ионного распыления поверхностных отложений от вкладываемой мощности в разряд. *a* — Fe_2O_3 , *b* — Fe_3O_4 , *c* — NiCrFeO_4 , *d* — FeCr_2O_4 .

верхностью (катод) и сменным электродом-коллектором (анод) в инертном газе (аргон) при давлении 0.1–1 atm, напряжении на разрядном промежутке 100–1000 V, плотности тока 0.1–1 A/cm² [7,8]. Распыление отложений реализуется посредством ионов инертного газа, получившим кинетическую энергию в области катодного падения укороченного разряда, а распыленные атомы радиоактивных отложений осаждаются на электроде-коллекторе (аноде) в виде твердого осадка. Детальное описание технологии представлено в нашем совместном патенте с ГК „Росатом“ [9]. Время дезактивации и скорость ионного распыления зависят от параметров укороченного разряда и используемого инертного газа, а также формулы удалаемого соединения. Для нахождения наиболее эффективной газовой среды для дезактивации при помощи программы SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) [10] выполнен численный расчет коэффициентов ионного распыления радиоактивных отложений внутриконтурного оборудования РУ в форме оксидов и шпинелей FeO , Fe_3O_4 , Fe_2O_3 , NiFe_2O_4 , NiCrFeO_4 , FeCr_2O_4 , $\text{NiCr}_2\text{Fe}_2\text{O}_4$ в разных инертных газах (He, Ar, Ne, Xe, Kr). Расчет выполнен для ионов He^+ , Ar^+ , Ne^+ , Xe^+ , Kr^+ с энергией в диапазоне 50–1000 eV с целью выбора оптимального инертного газа, в котором реализуется наиболее эффективное ионное распыление

указанных отложений. На основе полученных значений коэффициентов распыления ионами He^+ , Ar^+ , Ne^+ , Xe^+ , Kr^+ скорость распыления рассчитана по формуле

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

где K — коэффициент распыления, e — заряд электрона, ρ — плотность распыляемого отложения (оксида и/или шпинели) [g/cm³], j — плотность тока ионов, M_C — молярная масса оксида и/или шпинели [g/mol], N_a — число Авогадро.

На рисунке приведены зависимости от вкладываемой в разряд мощности Q скоростей ионного распыления поверхностных отложений Fe_2O_3 , Fe_3O_4 , NiCrFeO_4 и FeCr_2O_4 ионами инертных газов He^+ , Ar^+ , Ne^+ , Xe^+ , Kr^+ .

Из представленных на рисунке данных видно, что наибольшие значения коэффициентов распыления и, следовательно, скоростей ионного распыления наблюдаются при зажигании укороченного разряда в среде аргона и неона и распылении поверхностных отложений ионами Ar^+ и Ne^+ соответственно. Аналогичные результаты наблюдаются при распылении и других оксидов и шпинелей, например FeO , NiFe_2O_4 , $\text{NiCr}_2\text{Fe}_2\text{O}_4$ и др. В частности, для шпинели NiFe_2O_4 коэффициент распыления ионами Ar^+ и Ne^+ при энергии 500 eV имеет значения

порядка 2, а скорости распыления слоя — 8 и $9 \mu\text{m/s}$ при плотности тока ионов 1 A/cm^2 . Таким образом, при фактически равных физических параметрах распыления аргоном и неоном в силу экономических причин предпочтение следует отдавать использованию более дешевого аргона. Эффективность распыления ионами аргона различных модельных сплавов (нержавеющей стали, циркония, нерадиоактивных поверхностных отложений на нержавеющей стали в форме оксидов и шпинелей), а также реакторного графита продемонстрирована нами в экспериментальных условиях на лабораторном стенде. Получены рабочие параметры технологии при использовании аргона для зажигания укороченного разряда и источника ионов Ar^+ , обеспечивающих эффективное распыление: давление аргона 0.65 atm , длина разрядного промежутка не более 2 mm , напряжение на разрядном промежутке 500 V , плотность тока 1 A/cm^2 , при этом, чтобы избежать перегрева дезактивируемой поверхности, следует использовать импульсный режим зажигания разряда, как это показано нами в работе [11]. Технология была опробована в лабораторных условиях для дезактивации реакторного графита, а именно продемонстрировано распыление поверхностного слоя графита и осаждение распыленного слоя графита на никелевые и танталовые электроды-коллекторы (аноды). Известно, что в отработанной графитовой кладке РБМК (реактор большой мощности канальный) преимущественно на поверхности графитовых блоков локализован дозообразующий изотоп ^{14}C . Ранее достигнутые результаты исследований ионно-плазменной технологии применительно к дезактивации реакторного графита были представлены нами на техническом совещании по приглашению секретариата МАГАТЭ [12].

Настоящая работа посвящена одной из актуальных задач ядерной энергетики — дезактивации внутренконтурного оборудования реакторов при плановых остановах, выводе их из эксплуатации — и поиску эффективных технологий удаления радиоактивных отложений с поверхностей оборудования РУ. Для решения данной задачи нами предложен принципиально новый подход „сухая“ ионно-плазменная технология дезактивации, свободная от использования радиохимии, растворов, образования вторичных ЖРО, позволяющая в среде инертного газа посредством ионного распыления удалять поверхностные отложения и в твердой форме осаждать их на электроды-коллекторы. Для выбора инертного газа, позволяющего производить эффективную дезактивацию, выполнены расчеты коэффициентов распыления радиоактивных отложений в форме оксидов и шпинелей FeO , Fe_3O_4 , Fe_2O_3 , NiFe_2O_4 , NiCrFeO_4 , FeCr_2O_4 , $\text{NiCr}_2\text{Fe}_2\text{O}_4$ ионами инертных газов He^+ , Ar^+ , Ne^+ , Xe^+ , Kr^+ с энергией в диапазоне 50 – 1000 eV . Получено, что наибольшие значения коэффициентов распыления и, следовательно, скоростей ионного распыления наблюдаются при зажигании укороченного разряда в среде аргона и неона. Таким образом, при фактически равных физических параметрах распыления аргоном и

неоном в силу экономических причин предпочтение следует отдавать использованию аргона. Полученные значения скорости ионного распыления радиоактивных отложений 0.5 – $20 \mu\text{m/s}$ могут быть использованы на следующем этапе исследовательских работ для постановки эксперимента по измерению скоростей распыления шпинелей, сравнению теоретических и экспериментальных значений скоростей распыления, а также для оценки времен дезактивации РУ при плановых остановах 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] С.Н. Орлов, А.А. Змитродан, В.В. Кривобоков, 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/S0040363621040044].
- [2] В.Г. Крицкий, Ю.А. Родионов, П.С. Стяжкин, С.А. Матвеев, *Дезактивация АЭС и ЯЭУ с водным теплоносителем* (Буки Веди, М., 2016).
- [3] Химическая технология ядерных энергетических установок, под ред. В.М. Седова (Энергоиздат, М., 1985).
- [4] Н.И. Ампелогова, Ю.М. Симановский, А.А. Трапезников, *Дезактивация в ядерной энергетике* (Энергоиздат, М., 1982).
- [5] S. Liu, Y. He, H. Xie, Y. Ge, Y. Lin, Z. Yao, M. Jin, J. Liu, X. Chen, Y. Sun, W. Binhui, Sustainability, **14**, 4021 (2022). DOI: 10.3390/su14074021
- [6] R.N. Yastrebinsky, V.I. Pavlenko, A.A. Karnauhov, IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng., **687**, 066053 (2019). DOI: 10.1088/1757-899X/687/6/066053
- [7] А.С. Петровская, А.Б. Цыганов, Письма в ЖТФ, **50** (23), 68 (2024). DOI: 10.61011/PJTF.2024.23.59405.6402k [A.S. Petrovskaya, A.B. Tsyanov, Tech. Phys. Lett., **50** (12), 62 (2024). DOI: 10.61011/TPL.2024.12.60354.6402k].
- [8] А.С. Петровская, А.Б. Цыганов, патент РФ № 2771172 (2022).
- [9] А.С. Петровская, А.Б. Цыганов, М.Р. Стакив, патент РФ № 2711292, ЕР 19888171.6, US 20210272715, CA3105179A1, CN112655056A (2020).
- [10] 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
- [11] А.С. Петровская, А.Б. Цыганов, ФТТ, **65** (12), 2184 (2023). DOI: 10.61011/FTT.2023.12.56755.5167k [A.S. Petrovskaya, A.B. Tsyanov, Phys. Solid State, **65** (12), 2095 (2023). DOI: 10.61011/PSS.2023.12.57674.5167k].
- [12] A.S. Petrovskaya, in *Technical Meeting on Processing Technologies for Irradiated Graphite Waste* (IAEA, Headquarters, Vienna, Austria, 2024).