

ветствующих проектов позволит обоснованно распределить финансовые обязательства между государством и организацией, размещающей отходы, и аккумулировать необходимые денежные средства к времени консервации пунктов размещения и перевода в пункты захоронения.

Выводы. Научная и организационная работа по обоснованию отнесения накопленных радиоактивных отходов к особым способствует принятию решений по дальнейшему дифференцированному обращению с ними. Вместе с тем выявлено, что одним из основных правовых препятствий для безопасного и финансово менее затратного захоронения в месте нахождения является избыточность критериев отнесения отходов к особым по местоположению и происхождению. Важным направлением в области регулирования является разработка норм и правил безопасности пунктов размещения и консервации особых радиоактивных отходов, в полной мере учитывающих их особенности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Обзор** зарубежных практик захоронения отработанного ядерного топлива и радиоактивных отходов. Под общ. ред. И.И. Линге, Ю.Д. Полякова. М.: Изд-во «Комтех-принт», 2015. 208 с.
2. **Особые** радиоактивные отходы. Под общ. ред. И.И. Линге. М.: ООО «САМ полиграфист», 2015. 240 с.
3. **Крышев И.И., Курындина Л.А., Линге И.И.** Оценка ущерба окружающей среде при использовании атомной энергии. — Атомная энергия, 2014, т. 117, вып. 3, с. 159—163.
4. **Абрамов А.А., Дорофеев А.Н., Комаров Е.А. и др.** К вопросу оценки объема ядерного наследия в атомной промышленности и на иных объектах мирного использования атомной энергии в России. — Ядерная и радиационная безопасность, 2014, № 3(73), с. 1—11.
5. **Линге И.И., Савкин М.Н., Ведерникова М.В.** Обращение с особыми радиоактивными отходами: прогресс практической деятельности и актуальные задачи. — Радиационная гигиена, 2014, т. 7, № 4, с. 23—30.
6. **Большов Л.А., Линге И.И., Саркисов А.А., Уткин С.С.** Практика и задачи научного обеспечения работ по ядерному наследию. — Атомная энергия, 2016, т. 120, вып. 4, с. 201—207.

Поступила в Редакцию 5.08.16

УДК 621.039.7.66.047

ТЕПЛОМАССОПЕРЕНОС ПРИ ИСПАРЕНИИ ЦЕЗИЯ С ПОВЕРХНОСТИ ГРАФИТА В АРГОНОВОЙ СРЕДЕ

Беспала Е.В., Мышкин В.Ф., Павлюк А.О., Новоселов И.Ю.

(Национальный исследовательский Томский политехнический ун-т, г. Томск)

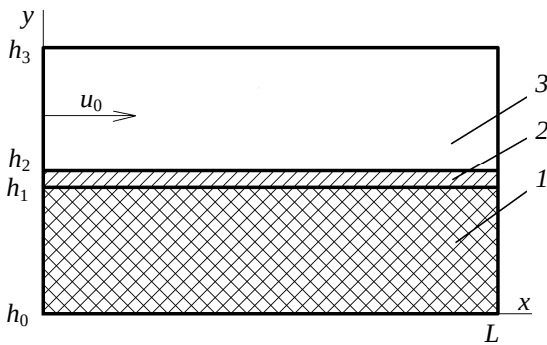
В настоящее время разработаны разные способы переработки радиоактивных отходов. Большинство из них увеличивают объем отходов, поскольку образуются газообразные радиоактивные соединения и смеси.

Известен способ тепловой сепарации смесей с разной температурой испарения. Применение инертного газа при термической переработке радиоактивных отходов позволяет уменьшить количество вторичных отходов. С увеличением температуры газа возрастает испарение веществ, за счет чего повышаются производительность известных установок и степень извлечения радионуклидов с меньшей температурой испарения. При этом увеличивается вклад объемных процессов относительно поверхностных, т.е. происходит обработка всей массы отходов, а не только поверхностного слоя дезактивируемых образцов. Это особенно характерно при дезак-

тивации графитовых конструкционных элементов, пористость которых равна ~23%. Для термической дезактивации может использоваться низкотемпературная аргоновая плазма.

Цель настоящей работы — математическое моделирование теплообмена при воздействии потока низкотемпературной равновесной плазмы на загрязненные радионуклидами участки графита.

Математическая модель. Облученные графитовые конструкционные элементы, как правило, имеют поверхностное загрязнение радиоактивным цезием [1]. Нагрев поверхности содержащего цезий графита газовым потоком приводит к испарению металла (рис. 1). В расчетной ячейке выделяется слой металлического цезия толщиной δ_{Cs} на поверхности графита толщиной δ_C . Высокотемпературный плазменный поток, состоящий из инертного плазмооб-



Р и с. 1. Схема расчетной ячейки: 1 — графит; 2 — слой цезия; 3 — высокотемпературный поток

разующего газа аргона, ориентирован вдоль поверхности графита с цезием. Скорость газа на входе в расчетную ячейку высотой R над поверхностью цезия составляет u_0 . При этом предполагалось, что поперечные и продольные размеры ячейки намного больше толщины пленки цезия δ_{Cs} . Графитовая поверхность нагревается за счет контакта с высокотемпературным потоком и теплопередачи от нижней стенки.

Для моделирования теплообмена и испарения металлического цезия с поверхности графита решали нестационарные уравнения теплопереноса в декартовой системе координат. При этом направление оси x совпадало с направлением движения высокотемпературного газового потока:

$$\begin{cases} c_1 \rho_1 \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial y} \left(\lambda_1 \frac{\partial T}{\partial y} \right), & h_2 < y < h_1; \\ c_2 \rho_2 \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial y} \left(\lambda_2 \frac{\partial T}{\partial y} \right), & h_1 < y < h_0, \end{cases} \quad (1)$$

где c_1 , ρ_1 , λ_1 — теплоемкость, плотность и теплопроводность металлического цезия соответственно; c_2 , ρ_2 , λ_2 — теплоемкость, плотность и теплопроводность графита соответственно; h_0 , h_1 , h_2 — координата, соответствующая нижней поверхности дезактивируемого графита, пленки металлического цезия, месту контакта высокотемпературного потока с металлическим цезием соответственно.

Принимали, что теплофизические и газодинамические свойства аргона зависят от температуры, свойства цезия и графита остаются постоянными. Исходя из этого, параметры плазмобразующего газа выбирали следующими:

$$\begin{aligned} u_{Ar} &= u_0 (T_{Ar}/298); \\ v_{Ar} &= 1,37 \cdot 10^{-5} (T_{Ar}/298)^{1,75}; \\ \lambda_{Ar} &= 1,54 \cdot 10^{-3} (T_{Ar}^{1,5}/(T_{Ar} + 160)); \\ \alpha_{Ar} &= 2,04 \cdot 10^{-5} (T_{Ar}/298)^{1,75}, \end{aligned} \quad (2)$$

где u_{Ar} — скорость газового потока при температуре T_{Ar} ; v_{Ar} , λ_{Ar} , α_{Ar} — кинематическая вязкость, теплопроводность, температуропроводность аргона при температуре T_{Ar} .

Уравнение баланса тепла на поверхности испаряющегося металлического цезия имеет вид

$$-\lambda_1 \frac{\partial T}{\partial y} \Big|_{y=h_2(t)} = a(T_{Ar} - T_s) - \theta_s M, \quad (3)$$

где a — коэффициент теплоотдачи при конвективном теплообмене газового потока с поверхностным слоем металлического цезия; T_s , θ_s — температура и теплота испарения цезия соответственно; M — массовая скорость испарения цезия с обрабатываемой поверхности.

Из уравнения (3) видно, что теплообмен на границе аргон—цезий будет определяться режимом течения газового потока, поскольку коэффициент теплоотдачи a связан с числами Нуссельта и Рейнольдса:

$$\begin{aligned} a &= \lambda_{Ar} Nu/(2R); \\ Nu &= 0,75 Re^{0,43} Pr^{1/3}; \\ Re &= 2Ru_{Ar}/v_{Ar}; \\ Pr &= v_{Ar}/\alpha_{Ar}, \end{aligned} \quad (4)$$

где R — радиус канала, по которому течет плазмобразующий газ; Nu , Re , Pr — числа Нуссельта, Рейнольдса, Прандтля соответственно.

Процесс конвективного массообмена с учетом уравнения (3) при допущении, что количество паров цезия в объеме газового потока пренебрежимо мало, описывается выражением

$$M = \frac{\beta \mu p_t \exp[-(\theta_s/R_g)(T_s^{-1} - T_t^{-1})]}{R_g T_s}, \quad (5)$$

где p_t , T_t — давление и температура насыщенных паров цезия в тройной точке; R_g — универсальная газовая постоянная; μ — молекулярная масса цезия; β — коэффициент массообмена, который вычисляется по формуле

$$\beta = ShD/(2R), \quad (6)$$

где D — коэффициент диффузии паров цезия в аргоне; Sh — число Шервуда, зависящее от числа Шмидта Sc и Рейнольдса:

$$\begin{aligned} Sh &= 0,75 Re^{0,43} Sc^{1/3}; \\ Sc &= \nu_{Ar}/D. \end{aligned} \quad (7)$$

Для расчета коэффициента диффузии паров цезия в газообразном аргоне можно использовать формулу [2]

$$\begin{aligned} D &= \left(2 \cdot 10^{-3} - 5 \cdot 10^{-5} \sqrt{\frac{M_1 + M_2}{M_1 M_2}} \right) \times \\ &\times \frac{\sqrt{T^3 (M_1 + M_2) / (M_1 M_2)}}{p \sigma_{12} \Omega_{12} T_{12}}, \end{aligned} \quad (8)$$

где M_1, M_2 — молекулярная масса диффундирующих компонентов бинарной смеси; T_{12} — приведенная температура; T — температура термодинамической системы; p — общее давление; σ_{12} — параметр потенциальной функции Леннарда—Джонса; Ω_{12} — приведенный интеграл столкновений.

Вычисление некоторых параметров в уравнении (8) затруднено, поэтому использовали выражение для коэффициента диффузии [3]

$$D = 69 \cdot 10^{-6} (T_{Ar}/273)^{1,65}. \quad (9)$$

При решении уравнения (1) считали, что температура между слоем металлического цезия и поверхностью графита изменяется за счет теплообмена, характеризующегося коэффициентом теплообмена a_1 при постоянной теплопроводности графита λ_2 . Изменение температуры внешней стенки графитового слоя описывается уравнением

$$-\lambda_2 \frac{\partial T}{\partial y} \Big|_{y=h_0} = a_2 (T_{h_1} - T_w), \quad (10)$$

где a_2 — коэффициент теплопроводности графита; T_{h_1} — температура на границе области цезий—графит; T_w — температура нижней поверхности графитового элемента.

Принимали, что в начальный момент времени температура выбранной расчетной ячейки одинакова во всех областях и равна T_0 . Систему (1) с граничными условиями (3), (10) решали методом конечно-разностных уравнений. При этом расчетная область покрывалась сеткой (y_i, t_i) и в каждом слое t_i определяли решение в

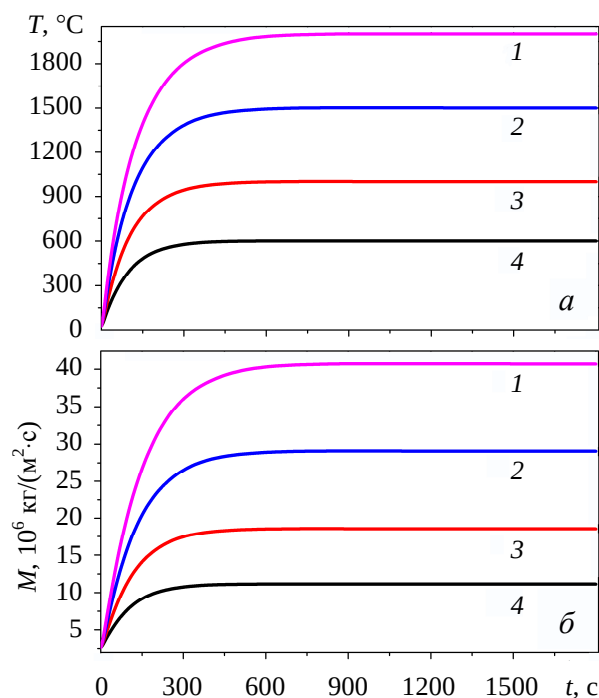
виде полиномиальной функции y . Принимали следующие численные параметры, входящие в уравнения (1)—(10): $c_1 = 273$ Дж/(кг·град.), $c_2 = 710$ Дж/(кг·град.), $\rho_1 = 1873$ кг/м³, $\rho_2 = 1650$ кг/м³, $\lambda_1 = 10$ Вт/(м·град.), $\lambda_2 = 150$ Вт/(м·град.), $\mu = 0,137$ кг/моль, $\theta_s = 43$ кДж/моль, $T_s = 687,85$ °C, $T_t = 126,85$ °C, $p_t = 125$ Па, $T_0 = T_w = 25$ °C, $u_0 = 10$ м/с, $R = 30$ мм, $\delta_{Cs} = 2$ мкм, $\delta_C = 20$ мм.

Расчеты. При контакте высокотемпературного газового потока и графита пленка металлического цезия нагревается. При этом происходит дезактивация облученного графита в широком диапазоне температуры за счет изменения режима течения высокотемпературного потока [4]. При расходе плазмообразующего газа аргона 10 л/мин и его тангенциальной подаче при диаметре плазмохимического реактора 42 мм температура изменяется по закону [5]

$$T(z) = 2506,67 + 68,91z - 3,44z^2 + 0,04z^3,$$

где $T(z)$ — среднемассовая газовая температура плазменного потока на расстоянии z от источника высокочастотного разряда, °C.

По данным, полученным методом зондовой диагностики, температура канала высокочастотного факельного разряда изменяется в диапазоне 600—1800 °C [6]. Поэтому при моделировании испарения цезия с поверхности графита выбирали начальную температуру плазмообразующего газа T_{Ar} 600, 1000, 1500, 2000 °C. На рис. 2, а видно, что за счет конвективного теплообмена между аргонном и цезием, а также теплопередачи между цезием и графитом максимальная температура в приповерхностном слое ниже начальной температуры газового потока. Так, при начальной среднемассовой газовой температуре плазмы 600 °C достигается температура 450 °C, при 2000 °C не превышает 1950 °C. Это связано с тем, что нижняя граница графитового образца поддерживается при постоянной температуре 25 °C. Время нагрева тонкой пленки цезия до температуры газового потока цезия не превышает 8 мин. Количество испарившегося с поверхности графита вещества и степень извлечения ¹³⁷Cs будут существенно зависеть от характеристик высокотемпературного потока (см. рис. 2, б). С повышением газовой температуры плазмы увеличивается массовая



Р и с. 2. Изменение температуры пленки цезия (а) и скорости испарения (б) при начальной газовой температуре плазменного потока 2000 (1), 1500 (2), 1000 (3), 600 °C (4)

скорость испарения цезия. Например, при температуре газового потока 1950 °C время выхода рассматриваемой системы на квазистационарный режим составляет 7—9 мин, скорость испарения ~40 мг/(м²·с). С уменьшением температуры плазмы снижается степень извлечения радионуклида с поверхности графита. Поэтому общее время очистки графитовых радиоактивных отходов будет увеличиваться.

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

$$\varepsilon = Mt/\rho_1\delta_{Cs},$$

где M — массовая скорость испарения цезия, мг/(м²·с); t — время.

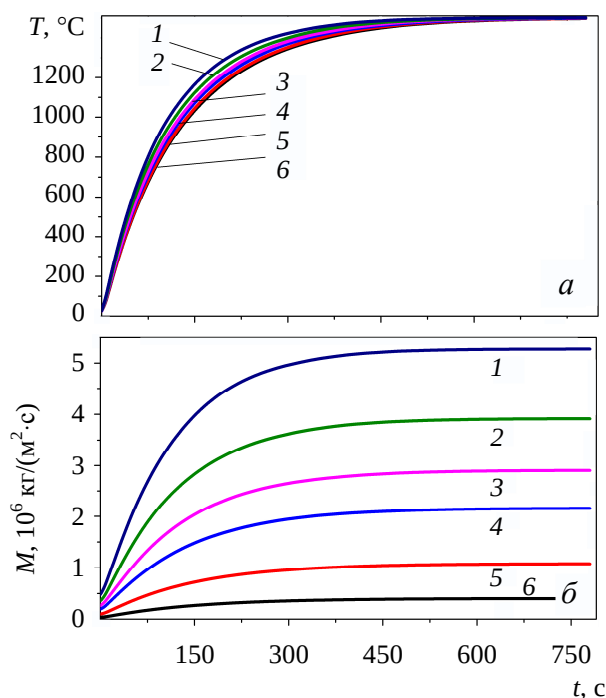
На извлечение ¹³⁷Cs с поверхности графитовых твердых отходов существенно влияет температура плазменного потока. С учетом данных рис. 2 степень его извлечения на участке 1 см² через 30 мин после начала процесса при начальной температуре плазменного потока 600 °C составит 4,3, при 1500 °C превысит 13. В первом

случае время полной дезактивации составит не более 6,25 мин, во втором — около 1,5 мин.

Высокотемпературная переработка графита также зависит от скорости прокачки газа вдоль поверхности дезактивируемого графита. При моделировании принимали, что поток движется в ламинарном режиме без образования вихрей и без отрыва от поверхности (сплошным слоем). Расчет проводили при начальной температуре плазмообразующего газа 1500 °C и толщине пленки 2 мкм.

Скорость высокотемпературного потока вдоль дезактивируемого образца незначительно влияет на теплопередачу (рис. 3, а). Время выхода нагреваемой подложки на квазистационарный режим составляет 7,5—8 мин в интервале скорости подачи газа 0,1—40 м/с. Вероятно, это связано с тем, что в установившемся режиме течения высокотемпературного потока не происходит значительных изменений в энергетическом балансе системы. Изменение термодинамических параметров системы может быть обусловлено лишь изменением толщины слоя цезия δ_{Cs} , которая пренебрежимо мала по сравнению с размерами расчетной ячейки.

На рис. 3, б видно, что скорость прокачки газа существенно влияет на скорость испарения

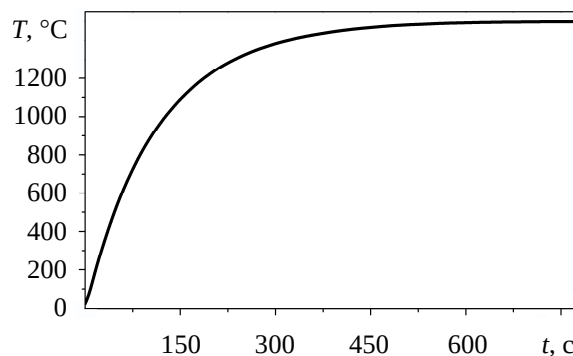


Р и с. 3. Изменение температуры пленки цезия (а) и массовой скорости (б) при начальной скорости высокотемпературного газового потока 40 (1), 20 (2), 10 (3), 5 (4), 1 (5), 0,1 м/с (6)

металлического цезия с поверхности графита: с увеличением скорости газового потока возрастает и скорость испарения. Скорость испарения графита при начальной скорости движения газа 40 м/с в 10 раз выше, чем при 0,1 м/с. Это можно объяснить тем, что при увеличении скорости высокотемпературного потока аргона увеличивается количество газа, контактирующего с подложкой. В результате за счет перепада концентрации цезия увеличивается количество диффундирующих в аргон паров. Степень извлечения через 30 мин после начала процесса при начальной скорости газа 0,1 м/с составит 1,2, при 40 м/с превысит 24. Соответственно в первом случае время полной дезактивации составит около 25 мин, во втором — не более 1,25 мин.

На извлечение ^{137}Cs с поверхности графита также влияет его начальное содержание, которое характеризуется толщиной пленки металлического цезия δ_{Cs} . Так, при толщине слоя 0,1 мкм, температуре плазмы 1500 °С, скорости прокачки газа 10 м/с концентрация цезия через 30 мин после начала плазменной обработки уменьшится в 1060 раз, при толщине 10 мкм — в 12 раз. Очевидно, что при такой толщине слоя изменение температуры у поверхности пленки будет незначительным, что подтверждает расчет (рис. 4).

Таким образом, исследования показали, что значимыми факторами, влияющими на степень извлечения, являются среднemasсовая газовая температура равновесной плазмы, скорость прокачки высокотемпературного потока и толщина пленки цезия. Расчеты с приемлемой точностью справедливы для испарения радиоактивного ^{137}Cs . Оценки показывают, что при температуре 1500 °С, скорости прокачки газа 40 м/с и толщине слоя цезия 2 мкм за время 1,25 мин достигается полная очистка графита от радиоактивного цезия. Поэтому при термической дезактивации графита в низкотемпературной плазме



Р и с. 4. Изменение температуры пленки цезия при толщине испаряемого слоя 0,1—10 мкм

возможно понижение класса радиоактивных отходов, что существенно уменьшает стоимость их захоронения.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 16-38-00382 мол_а.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бушуев А.В., Верзилов Ю.М., Зубарев В.Н. и др. Продукты деления и актиноиды в отработавшем графите кладок реакторов Сибирского химического комбината. — Атомная энергия, 2000, т. 89, вып. 2, с. 139—146.
2. Родионова Е.К. Расчет коэффициентов переноса пара цезия. — Теплофизика высоких темп., 1967, т. 5, № 4, с. 591—600.
3. 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.
4. Myshkin V.F., Khan V.A., Tichy M. e.a. Distribution of temperature field in plasma flow of high frequency unipolar torch plasmatron. — J. Industrial Pollution Control, 2016, v. 3, № 2, p. 401—405.
5. Беспала Е.В., Павлюк А.О., Котляревский С.Г. Влияние газодинамики высокотемпературного потока на эффективность переработки ядерного графита. — Альтернативная энергетика и экология, 2015, т. 23(187), с. 19—25.
6. Мышкин В.Ф., Хан В.А., Беспала Е.В. Формирование газового потока в плазмохимическом реакторе. — Изв. ТПУ. Инжиниринг георесурсов, 2016, т. 327, № 1, с. 91—99.

Поступила в Редакцию 20.04.16