

БЕЗОПАСНОЕ ОБРАЩЕНИЕ С ЯДЕРНЫМИ МАТЕРИАЛАМИ

УДК 533.9, 533.902, 533.9.03, 533.9.07, 621.039, 621.039.7

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ВЕРИФИКАЦИЯ ИОННО-ПЛАЗМЕННОЙ ТЕХНОЛОГИИ ДЕЗАКТИВАЦИИ МЕТАЛЛОКОНСТРУКЦИЙ ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

© 2025 г. А. С. Петровская^а, *, А. Б. Цыганов^а

^аЛаборатория физики плазмы, ООО “ИнноПлазмаТех”, Санкт-Петербург, 191036 Россия

*E-mail: anita3425@yandex.ru

Поступила в редакцию 01.04.2025 г.

После доработки 17.04.2025 г.

Принята к публикации 22.04.2025 г.

Вывод из эксплуатации ядерных энергетических установок и дезактивация внутриконтурного оборудования от радиоактивных поверхностных отложений при плановых ремонтах реакторов является одной из актуальных проблем атомной отрасли. Широко применяемые радиохимические методы дезактивации приводят к увеличению объемов вторичных радиоактивных отходов, поэтому для эффективного решения проблемы дезактивации нами разрабатывается ионно-плазменная “сухая” технология, основанная на механизмах ионного и термического распыления радиоактивных поверхностных отложений в инертном газе, исключающая формирование жидких радиоактивных отходов. В настоящей статье представлены результаты экспериментальной проверки работоспособности ионно-плазменной технологии в лабораторных условиях на примере распыления металлических образцов сплавов нержавеющей стали, меди, алюминия, латуни. Экспериментально определены диапазоны рабочих параметров технологии.

Ключевые слова: дезактивация поверхности металлоконструкций, вывод из эксплуатации ядерных энергетических установок, поверхностные радиоактивные отложения, шпинели, сухая ионно-термическая технология дезактивации

DOI: 10.56304/S2079562925060211

ВВЕДЕНИЕ

Одной из мировых проблем ядерной энергетики является дезактивация реакторного оборудования при выводе из эксплуатации и плановых остановах ядерных энергетических установок (ЯЭУ), а также сокращение при этом объемов вторичных радиоактивных отходов. Для решения этой проблемы необходим поиск новых эффективных технологий дезактивации металлоконструкций ЯЭУ, позволяющих сократить финансовые расходы и объемы вторичных РАО.

Радиационные загрязнения внутренних поверхностей оборудования ЯЭУ вызываются активированными продуктами коррозии, включая такие химические элементы металлоконструкций, как Co, Fe, Mn, Cr, Ni, Ti, а также возможные продукты деления ядерного топлива, которые переносятся теплоносителем по всему контуру ЯЭУ. Химический состав радиоактивных отложений сложен, а величины его активности зависят от времени экспозиции, режимов эксплуатации ЯЭУ и особенностей конструкционных материалов. Например, коррозия металлоконструкций из нержавеющей стали формирует поверхностные отложения

в виде шпинелей $Ni_nCr_mFe_{(3-n-m)}O_4$, где $n = 0-2$, $m = (2-n)$, $Ni_nFe_{(3-n)}O_4$ (где $n = 0-2$) или в виде смешанных ферритов кобальта и никеля $(CoO)_x(NiO)_y(FeO)_{(1-x-y)}Fe_2O_3$, где $1 > y \geq x$ [1]. Также коррозионные отложения внутренних поверхностей оборудования реакторных установок могут содержать металлы Fe, Mn, Ni, Ti, Zr, Cr и их оксиды, а также возможны продукты топливной композиции U, Pu. В частности, радиоактивная загрязненность в первом контуре водно-водяного энергетического реактора (ВВЭР) определяется долгоживущими радионуклидами ^{60}Co , ^{58}Co , ^{54}Mn , а при длительной эксплуатации активность изотопа ^{60}Co составляет уже не менее 90% от общей активности слоя поверхностных осадков.

В настоящий момент широко применяемым подходом к дезактивации внутриконтурного оборудования ЯЭУ являются различные разновидности химических технологий дезактивации [2], а также безреагентные методы, включающие ультразвуковые, электролитические, ударно-волновые воздействия [3–8], имеющие ряд недостатков: увеличение объемов жидких вторичных РАО, необходимость эмпирического подбора типа раство-

ра, его концентрации и режима дезактивации в зависимости от характера радиоактивного отложения, а также дополнительная коррозия и истончение стенок арматуры и трубопроводов. Известны также лазерные методы дезактивации металлических поверхностей ЯЭУ [9], которые относительно дорогие, низкоэффективные и трудоемкие с точки зрения улавливания радионуклидов.

В данной статье мы предлагаем “сухую” ионно-плазменную технологию дезактивации, свободную от образования жидких РАО и позволяющую удалять радиоактивный слой отложений с поверхностей металлоконструкций ЯЭУ. Технология основана на использовании укороченного плазменного разряда в среде инертного газа (например, аргона) для ионного и термического распыления радиоактивных отложений, и их последующего осаждения в компактной твердой форме на электрод-коллектор портативного распылительного устройства. В настоящей статье представлены результаты экспериментальной проверки работоспособности ионно-плазменной технологии в лабораторных условиях на примере распыления металлических образцов сплавов нержавеющей стали, меди, алюминия, латуни.

Также технология применима для решения мировой проблемы дезактивации реакторного графита, а именно для удаления высокоактивного слоя радиоактивного ^{14}C с поверхностей графитовых блоков кладки уран-графитовых реакторов (в частности, РБМК). Важно отметить, что данные [10] о пространственном распределении основного дозобразующего 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).

Важной проблемой, стоящей перед ГК “Росатом” и АО “Концерн Росэнергоатом”, является вывод из эксплуатации 15 реакторов ВВЭР и 11 реакторов РБМК до 2049 года [11]. Кроме того, накопленные объемы облученного реакторного графита в мире ~260 тыс. т, а в России ~50–60 тыс. т. Предлагавшиеся в последние годы различные технологии дезактивации графита в виде кислотного травления, абразивной обработки, измельчения на фракции, термического испарения и т.п., приводят к многократному увеличению объема вторичных РАО [12, 13] и многолетнему растяжению процесса вывода из эксплуатации с соответствующими огромными непроизводительными затратами. При этом разрабатываемая нашим научным коллективом ионно-плазменная технология дезактивации позволяет провести быструю дезактивацию и сократить расходы госбюджета до 500 млрд руб. при выводе из эксплуатации 11 блоков реакторов РБМК, при этом выполнение дезактивационных

работ производится на месте расположения реакторной установки.

ПРИНЦИПЫ ТЕХНОЛОГИИ

Физические принципы ионно-плазменной технологии дезактивации ЯЭУ основаны на ионном и термическом распылении радиоактивных отложений с проводящей загрязненной радионуклидами поверхности при зажигании укороченного разряда (длина разрядного промежутка порядка 0.3–3 мм) между дезактивируемой поверхностью (катод) и сменным электродом-коллектором (анод) в инертном газе (аргон) при давлении 0.1–1 атм. Рабочее напряжение на разрядном промежутке 150–600 В, плотность тока 0.1–1 А/см². Реализация технологии может быть обеспечена с помощью портативной распылительной ячейки, содержащей корпус, систему охлаждения и изоляции, электрод-коллектор и систему подвода и откачки с фильтрацией инертного газа. Распылительная ячейка на манипуляторе может передвигаться по дезактивируемой поверхности, чтобы обеспечить температурный режим работы и последовательную обработку всей поверхности. В частности, для дезактивации внутренней поверхности трубопровода ЯЭУ сменный электрод-коллектор распылительного устройства представляет собой пластину, по форме подобную внутренней поверхности трубопровода. В процессе дезактивации распылительное устройство и электрод-коллектор устанавливается параллельно обрабатываемой катодной поверхности, при этом поперечные размеры анода много больше разрядного промежутка между катодом и анодом и распыляемый материал оседает на аноде. Более подробно технология и конструкция распылительного устройства описана в нашем совместном патенте с ГК “Росатом” и АО “Концерн Росэнергоатом” [14, 15]. Кроме того, для дезактивации графитовых блоков ЯЭУ без их фрагментации и повышения производительности может быть использована специальная дезактивационная камера с одновременной обработкой всех поверхностей блока. Универсальность ионно-плазменной технологии применительно к удалению радиоактивных продуктов коррозии заключается в возможности эффективного ионного и термического распыления отложений независимо от их химического состава в среде инертного газа. Скорость распыления определяется условиями разряда, вкладываемой мощностью и временем экспозиции, при этом распыленные атомы радиоактивных продуктов коррозии без образования химических соединений с инерт-

ным газом осаждаются в виде твердого осадка на аноде распылительного устройства.

Главные преимущества ионно-плазменной технологии: отсутствие жидких РАО; сокращение вторичных РАО в десятки раз по сравнению с любыми жидкостными методами (нет эффекта разбавления радионуклидов растворителями); удаление любых радиоактивных отложений независимо от их химического состава; осаждение слоя распыленных атомов радиоактивного отложения в форме твердого осадка на электроде-коллекторе для последующего компактного захоронения; дезактивация и подготовка к захоронению непосредственно на месте расположения ЯЭУ.

В настоящей статье выполнены эксперименты по распылению модельных образцов ряда металлических сплавов (реакторная нержавеющая сталь, латунь, алюминий, медь), устанавливаемых в качестве катода для подтверждения работоспособности ионно-плазменной технологии. Были исследованы процесс переноса и осаждения распыленного слоя атомов на металлические подложки (анод), а также подбор рабочих параметров технологии.

ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА И РЕЗУЛЬТАТЫ

В качестве распыляемых в укороченном разряде образцов (катоды) были исследованы ряд металлических сплавов (реакторная нержавеющая сталь, латунь, алюминий, медь) в виде пластин диаметром 15 мм, толщиной 1 мм. Осаждение распыленного слоя атомов с поверхности катодов происходило на анодные пластинки диаметром 15 мм и толщиной 1 мм, изготовленные из никеля. Подтверждение работоспособности технологии, а именно наличие осажденного слоя распыленных атомов с катода на никелевый анод, выполнено посредством регистрации элементного состава поверхности анодов с осажденным слоем после экспозиции в разряде методом сканирующей электронной микроскопии (SEM – Scanning Electron Microscopy) на микроскопе Merlin Zeiss с X-ray микроанализом при использовании энергодисперсионного EDS-детектора Oxford X-Max 80. Спектры элементного состава поверхности катодов и анодов были измерены до и после воздействия укороченного разряда в аргоне. Для выполнения эксперимента по распылению образцов использовалась высоковакуумная прогреваемая для обезгаживания экспериментальная установка в ООО “ИнноПлазмаТех”, позволяющая проводить исследования укороченных разрядов в инертных газах высокого давления и подбирать оптимальные условия плазменно-ионного распыления различных образцов. Экспериментальная установка включала турбомоле-

кулярный насос, обеспечивавший разрежение не хуже 10^{-8} торр в вакуумной камере стенда, клапан с большим проходным сечением обеспечивал отсечение насоса от камеры перед напуском рабочего газа, установка также имела средства измерения вакуума и давления напускаемого рабочего газа. Напуск рабочего газа (инертный газ или смесь) из баллона высокого давления обеспечивался с помощью редукторов и вентилей-напекателей в высоковакуумном исполнении. Конструкция держателей образцов (катод и анод-коллектор диаметром 15 мм) для проведения экспериментов по распылению материала и переносу распыленных атомов позволяет зафиксировать их параллельно друг другу с заданным зазором 0.1–5 мм на трех керамических направляющих. Эксперименты по распылению образцов металлических сплавов выполнены при рабочем напряжении на разрядном промежутке в диапазоне 150–600 В и плотности тока 0.1–1 А/см², при этом длина разрядного промежутка (расстояние между катодом и анодом) варьировалась в диапазоне 0.3–2 мм. Экспериментальная установка обеспечивает образование аргоновой плазмы между катодом и анодом, при этом положительные ионы инертного газа, ускоряясь в катодном слое плазмы, бомбардируют катод и распыляют его, выбивая нейтральные атомы материала катода. В эксперименте приняты необходимые меры изоляции, исключающие замыкание разряда на любые металлические конструкции в вакуумной камере. Диффузия распыленных атомов в аргоне приводит к пересечению ими разрядного промежутка и осаждению на подложку. После заданного времени экспозиции в плазме с заданными параметрами анодный образец извлекается из камеры и подвергается анализу на сканирующем электронном микроскопе с рентгеновской системой микроанализа для определения элементного состава распыленного катодного материала, осевшего на аноде.

На рис. 1–3 показаны спектры элементного состава никелевых пластин (анод) с осажденным слоем распыленных атомов сплавов цинка (Zn), алюминия (Al), латуни (Zn, Cu). Процентное содержание (ат. %) атомов Zn, Al, Cu на поверхности и, соответственно, толщина осевшего слоя на никелевую пластину, определяется временем экспозиции плазменного разряда. В наших предыдущих исследованиях [16] найдено, что оптимальная экспозиция плазменного разряда при дезактивации выбирается в диапазоне от одной до нескольких секунд, с целью исключить перегрев дезактивируемой поверхности. В данном эксперименте время экспозиции укороченного разряда варьировалась от одной до пяти секунд. Для распыления всей толщины поверхностного отложения рекомендуется увеличить суммарное время экспозиции плазменного разряда, последовательно перемещая портативную распылительную ячейку

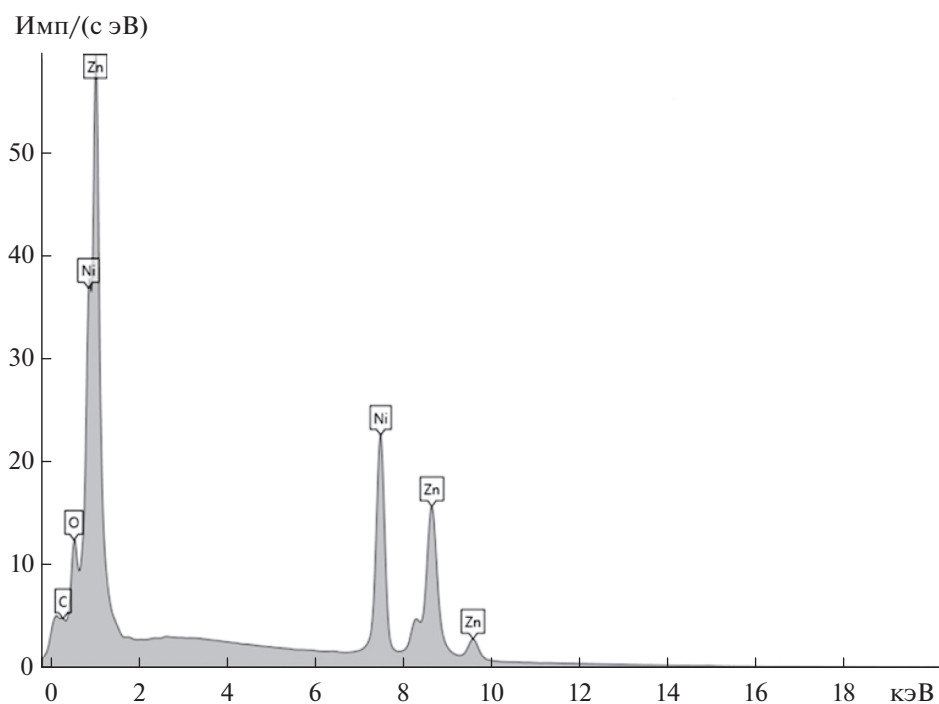


Рис. 1. Спектр элементного состава образца из никеля с осажденным слоем атомов цинка.

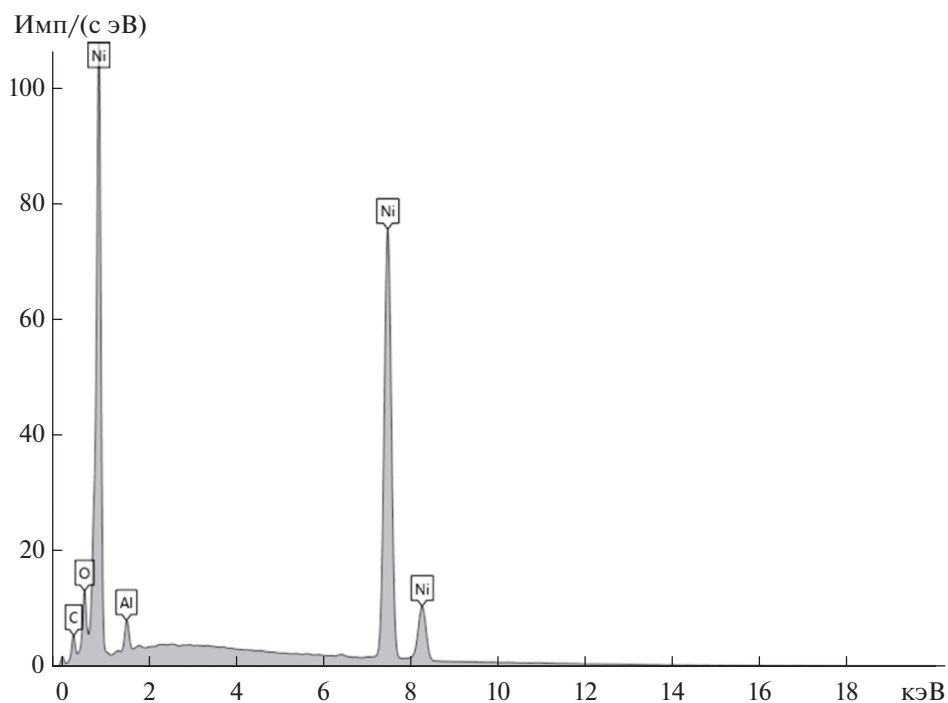


Рис. 2. Спектр элементного состава образца из никеля с осажденным слоем атомов алюминия.

шаг за шагом по обрабатываемой поверхности, при этом возвращаясь на исходное положение по мере остывания дезактивируемой области, и так до полного распыления поверхностного отложе-

ния. Экспериментальному исследованию зависимости толщины осажденного слоя на поверхность анода и скорости осаждения распыленных атомов в зависимости от распыляемого сплава и

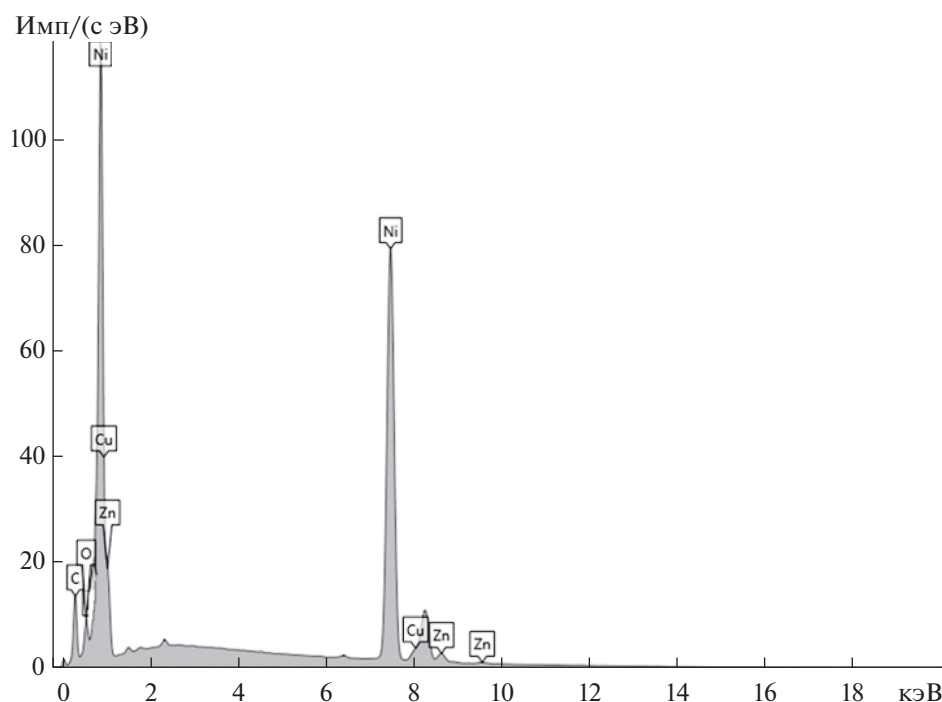


Рис. 3. Спектр элементного состава образца из никеля с осадленным слоем атомов латуни (Zn, Cu).

времени экспозиции плазменного разряда будет посвящена отдельная статья. Теоретические расчеты, выполненные по данному вопросу, опубликованы в работе [17].

Также выполнены эксперименты по распылению и осаждению атомов реакторной нержавеющей стали на никелевую пластину. При малом времени экспозиции укороченного плазменного разряда (порядка 1 с) в аргоне наблюдается распыление и осаждение на никелевую пластину преобладающего химического элемента стали — железа порядка нескольких ат. %. При увеличении времени экспозиции укороченного разряда наблюдается также присутствие атомов Cr и Mn на поверхности никелевой пластины. На рис. 4 и 5, соответственно, приведен спектр элементного состава поверхности никелевой пластины (анода) с осадженными атомами нержавеющей стали и морфология поверхности никелевого анода с равномерно осадленным слоем атомов железа. Равномерность осаждения атомов железа на поверхность никелевой пластины подтверждается профилем распределения его концентрации, приведенном на рис. 6. Равномерное осаждение атомов железа на никелевую пластину в процессе зажигания плазменного разряда объясняется однородной пространственной структурой горения разряда, без формирования дуги или “шнурования”. Из полученных результатов по элементному составу поверхности образцов никелевых анодов, на которые

осаждались распыленные атомы образцов (катодов) из реакторной нержавеющей стали, сплавов цинка, меди, латуни, алюминия, следует перенос атомов Fe, Mn, Cu, Zn, Al на поверхности никелевых анодов за счет зажигания плазменного разряда в среде аргона при напряжении на разрядном промежутке в диапазоне 150–600 В, плотности тока 0.1–1 А/см² и расстоянии между катодом и анодом в диапазоне 0.3–2 мм.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Статья посвящена проблемам дезактивации оборудования и вывода из эксплуатации ЯЭУ и разрабатываемой, в качестве решения, “сухой” ионно-плазменной технологии дезактивации металлоконструкций без формирования жидких РАО. Представлены результаты экспериментальной проверки работоспособности ионно-плазменной технологии в лабораторных условиях на примере распыления металлических образцов из некоторых сплавов: нержавеющей стали, латуни, меди, алюминия. Приводится описание физических параметров разрабатываемой технологии и лабораторного стенда для ее осуществления, а также результатов ионного распыления образцов из указанных сплавов с последующим осаждением слоя распыленных атомов на никелевый анодный электрод. В эксперименте найдены диапазоны рабочих параметров ионно-плазменной технологии дезакти-

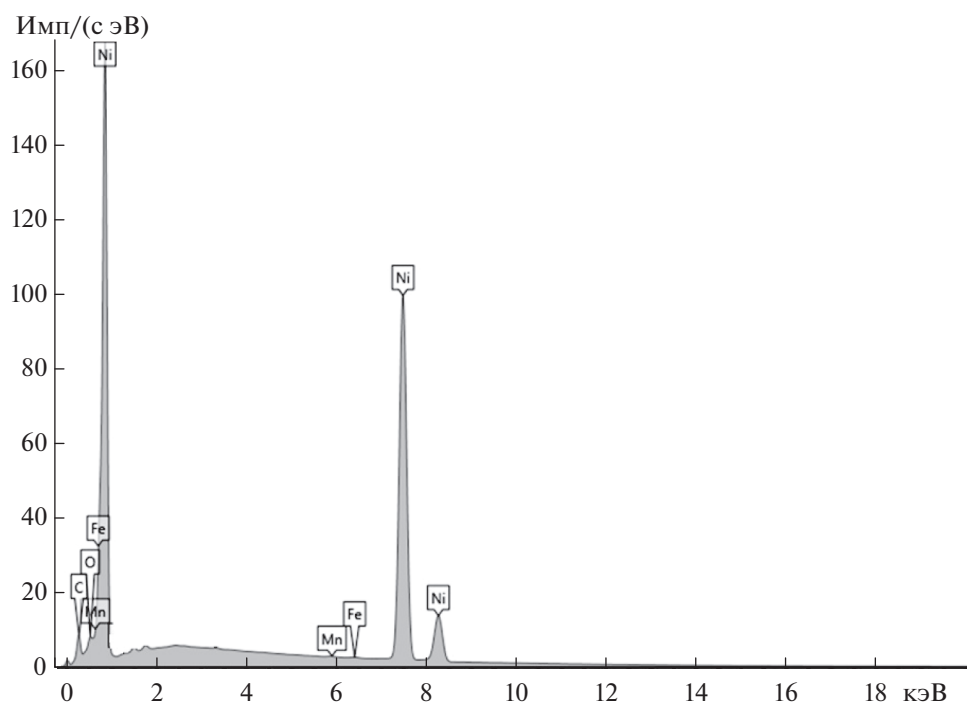


Рис. 4. Спектр элементного состава образца из никеля с осажденным слоем атомов Fe и Cr из нержавеющей стали.

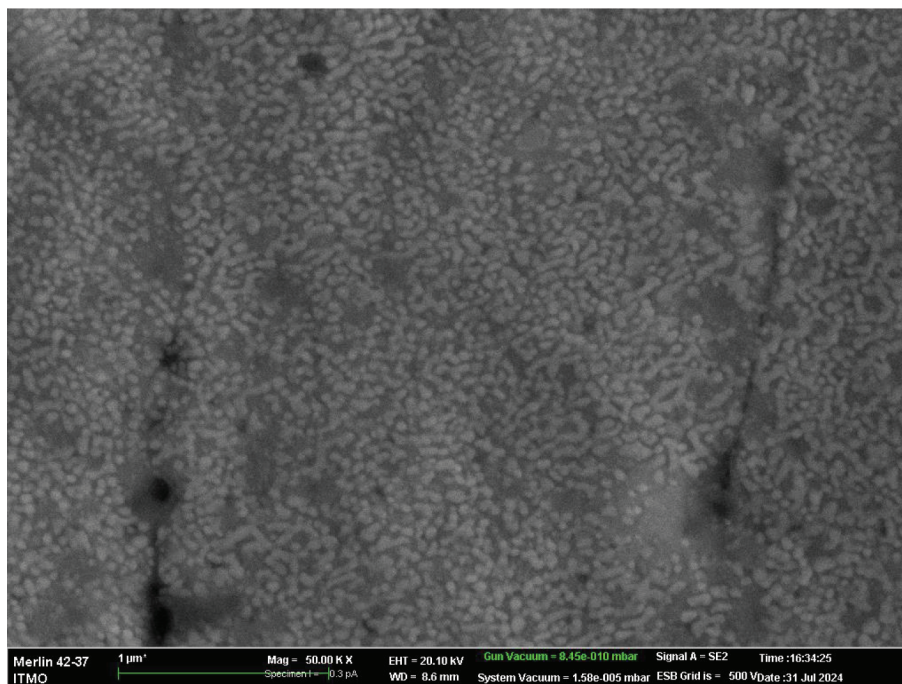


Рис. 5. Морфология поверхности образца из никеля с осажденным слоем атомов железа нержавеющей стали.

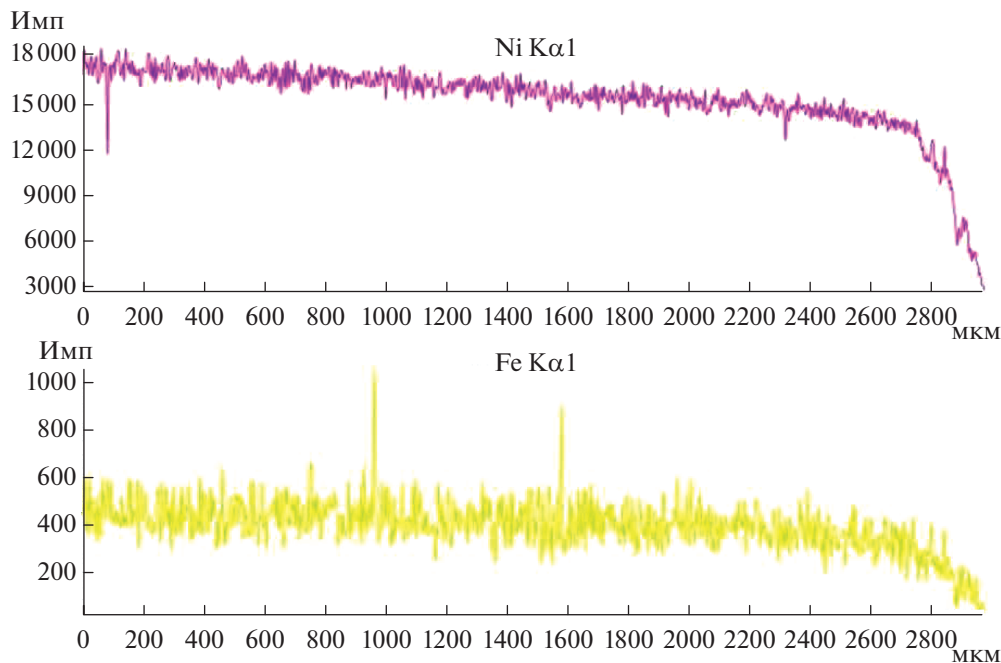


Рис. 6. Профиль распределения концентрации атомов железа на подложке из никеля.

вации металлоконструкций ЯЭУ: напряжение на разрядном промежутке 150–600 В, плотность тока 0.1–1 А/см², длина разрядного промежутка 0.3–2 мм.

Подтверждение работоспособности технологии, а именно экспериментальное обнаружение осажденного слоя распыленных атомов из указанных образцов на никелевую пластину (анод), получено посредством регистрации спектров элементного состава поверхности анодов на микроскопе Merlin Zeiss с X-ray микроанализом при использовании EDS детектора Oxford X-Max 80.

БЛАГОДАРНОСТИ

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

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- Орлов С.Н., Змитродан А.А., Кривобоков В.В. // Теплоэнергетика. 2021. № 5. С. 32.
- Алешин А.М., Змитродан А.А., Кривобоков В.В., Орлов С.Н. // Атомная энергия. 2021. Т. 132 (8). С. 88.
- Yastrebinsky R.N., Pavlenko V.I., Karnauhov A.A. // IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng. 2019. V. 687. P. 066053.
- Vitkovsky S.L., Danilov A.P., Shchedrin M.G., Kolyagina I.A. // Nucl. Eng. Technol. 2017. V. 3 (4). P. 313.
- Liu S., He Y., Xie H., Ge Y., Lin Y., Yao Z., Jin M., Liu J., Chen X., Sun Y., Binhui W. // Sustainability. 2022. V. 14. P. 4021.
- Tian Z., Song L., Li X. // Int. J. Corros. 2019. P. 1206098.
- Toader G., Pulpea D., Rotariu T., Diacon A., Rusen E., Moldovan A., Podaru A., Ginghina R., Alexe F., Iorga O., Bajenaru S.A., Ungureanu M., Dirloman F., Pulpea B., Leonat L. // Polymers. 2021. V. 13. P. 4194.
- Chunhai L., Qingfeng T., Min C., Xuejuan Z., Zhaofa Z. Radioanal J. // Nucl. Chem. 2018. V. 316 (7). P. 1.
- Qian W., Feisen W., Chuang C., Hui C., Fei J., Chen Y., Dasong L. // Nucl. Eng. Technol. 2023. V. 55 (1). P. 12.
- LaBrier D., Dunzik-Gougar M.L. // J. Nucl. Mater. 2015. V. 460. P. 174.
- Былкин Б.К., Давыдова Г.Б., Журбенко Е.А. // Атомная энергия. 2011. Т. 110 (3). С. 171.
- Мышкин В.Ф., Беспала Е.В., Павлюк А.О., Беспала Ю.Р., Новоселов И.Ю. // Изв. вузов. Ядер. энерг. 2019. № 3. С. 154.
- Vulpus D., Baginski K., Kraus B., Thomauske B. // Nucl. Eng. Des. 2013. V. 265. P. 294.
- Петровская А.С., Цыганов А.Б. Устройство для плазменной дезактивации элементов конструкции ядерного реактора. Патент на изобретение РФ № 2771172, приоритет от 11.05.2021.
- Петровская А.С., Цыганов А.Б., Стахий М.Р. Патент РФ № 2711292. Заявка ЕР 19888171.6, US 20210272715, CA3105179A1, КНР CN112655056A и др.
- Петровская А.С., Цыганов А.Б. // Физ. тверд. тела. 2023. Т. 65 (12). С. 2184.
- Петровская А.С., Цыганов А.Б. // Письма в ЖТФ. 2024. Т. 50 (23). С. 68.

Experimental Verification of Ion-Plasma Deactivation Technology of Nuclear Power Plants

A. S. Petrovskaya^{1, *} and A. B. Tsyganov¹

¹*Plasma Application Laboratory, InnoPlasmaTech LLC, St. Petersburg, 191036 Russia*

**e-mail: anita3425@yandex.ru*

Received April 1, 2025; revised April 17, 2025; accepted April 22, 2025

Abstract—Decommissioning of nuclear power plants and deactivation of reactor primary loop from radioactive surface deposits during scheduled repairs is one of the urgent problems of the nuclear industry. Widely used radiochemical methods of deactivation lead to an increase in the secondary radioactive waste volume. Therefore, to solve effectively the deactivation problem, we are developing the “dry” ion-plasma technology based on the ion and thermal sputtering of radioactive surface deposits in an inert gas and eliminating the formation of liquid radioactive waste. This article presents the results of the experimental test of the ion-plasma technology operability at laboratory conditions using the metal samples of reactor stainless steel, brass alloys, copper and aluminum. The ranges of technology operating parameters were experimentally determined.

Keywords: decontamination of metal structures, decommissioning of nuclear power plants, surface radioactive deposits, spinels, “dry” ion-thermal decontamination technology