

УДК 66.02

## ПАРАМЕТРЫ РАБОТЫ ПРЯМОТОЧНОЙ УСТАНОВКИ ХЛОРИРОВАНИЯ ОБЛУЧЕННОГО БЕРИЛЛИЯ

Сулейменов Н.А., Котов В.М., Вурим А.Д., Бакланова Ю.Ю.

Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

Бериллий получил широкое применение в ядерной энергетике. При этом он относится к редким металлам, так как содержание его в земной коре  $\sim 5 \times 10^{-4}$  %. Малая распространенность в природе, сложная технология извлечения из руды определяют его высокую стоимость. В процессе облучения бериллия в ядерном реакторе его свойства ухудшаются, в том числе за счет накопления в нем различных нуклидов и радионуклидов. В связи с этим актуальной является проблема очистки облученного бериллия от накопившихся примесей для его повторного использования.

В статье рассмотрены принцип действия и состав оборудования установки хлорирования облученного бериллия. Данная технология заключается в переводе бериллия и его радионуклидов в хлориды с последующим их разделением. Конечным продуктом является хлорид бериллия в жидком виде.

### ВВЕДЕНИЕ

В Филиале «Институт атомной энергии» Республиканского государственного предприятия «Национальный ядерный центр Республики Казахстан» исследования возможности применения хлоридной технологии для очистки облученного бериллия проводятся на протяжении нескольких последних лет [1–3]. В частности, выполнены исследования в обоснование технологии сухой очистки облученного бериллия методом хлорирования, разработаны варианты конструкции установки, выполнены ее расчетное обоснование и экспериментальная проверка. Первый вариант конструкции установки представлял собой циклический хлоратор, изготовленный из стальных труб [4]. В ходе экспериментов на циклическом хлораторе получены данные о скорости взаимодействия хлора с бериллием и влиянии температуры рабочих поверхностей на осаждение хлоридов с различными температурами плавления. Вместе с тем, дальнейшее использование этой установки невозможно из-за того, что хлор активно реагирует с нержавеющей сталью. В итоге конструкция установки была изменена и преобразована в прямоточный хлоратор с кварцевой реакционной камерой [5].

Целью данной статьи является определение параметров работы прямоточной установки хлорирования при проведении экспериментальных исследований по очистке облученного бериллия.

### ОПИСАНИЕ И КОНСТРУКЦИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ УСТАНОВКИ

Схема прямоточной установки хлорирования облученного бериллия представлена на рисунке 1. Конструкция установки включает в себя следующие узлы и оборудование:

- кварцевую реакционную камеру 21;
- фильтр 25, представляющий собой трубу из коррозионностойкой стали с расположенными в ней никелевыми прутками;

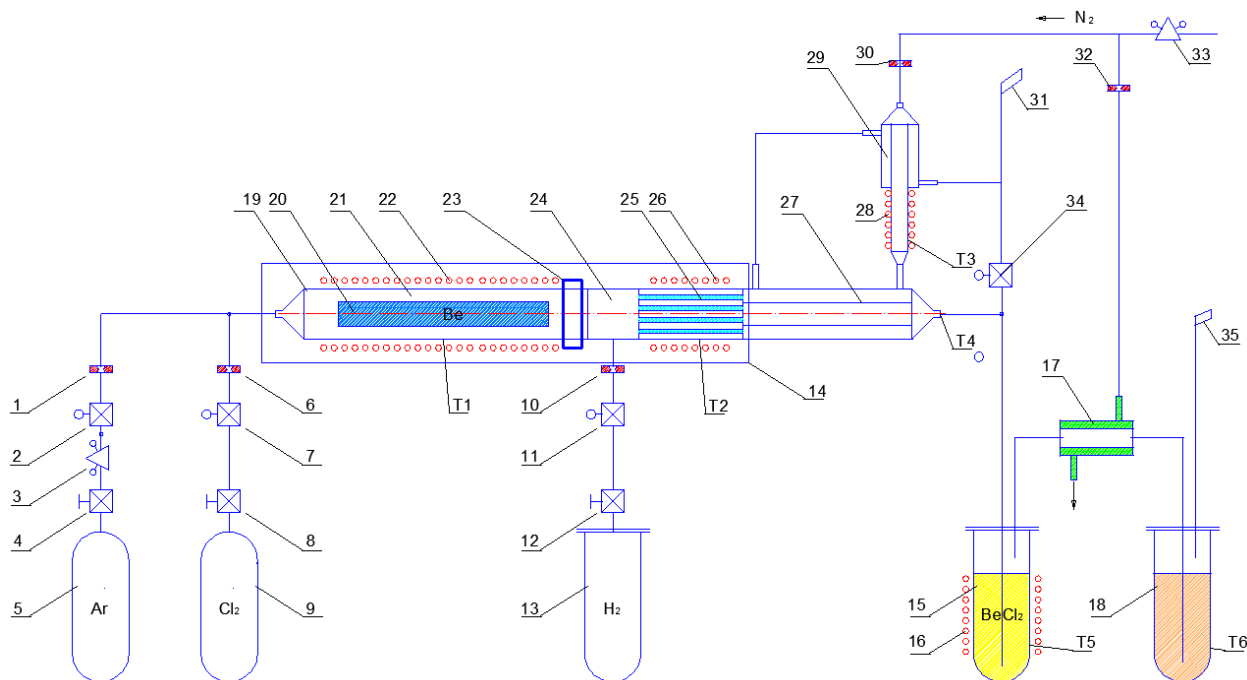
- смеситель газов 24;
- теплообменник 27 для охлаждения продуктов взаимодействия хлора с облученным бериллием;
- оптическую систему 23 для измерения содержания свободного хлора в газовой смеси;
- узел 19 загрузки образцов облученного бериллия в реакционную камеру и их извлечения;
- омические нагреватели реакционной камеры 22, емкости хлорида бериллия 16, теплообменника 28, фильтра 26.

Система подачи и отвода рабочих газов включает в себя баллоны с хлором и аргоном, емкость с водородом, азотную рампу, трубопроводы и агрегаты стеновой автоматики.

Система сбора продуктов технологического процесса состоит из следующих узлов и оборудования:

- приемная емкость 15 для сбора хлорида бериллия;
- теплообменник 17 для охлаждения хлоридов водорода и трития;
- приемная емкость 18 хлорида трития;
- магистрали 31, 35 для сброса в атмосферу газов.

Образцы облученного бериллия представляют собой цилиндры внешним диаметром 30 мм и средней длиной  $\sim 80$  мм общей массой 490 г (54,44 моля). Основными радиоактивными нуклидами в образцах бериллия являются  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{108\text{m}}\text{Ag}$  (гамма-излучатели) и  $^3\text{H}$  (бета-излучатель) [6]. Процесс хлорирования образцов бериллия происходит путем пропускания хлора через бериллий при температуре  $\sim 730$  °С. Остатки непрореагировавшего с бериллием хлора дожигаются водородом в смесителе газов в среде аргона. Полученная газовая смесь поступает в фильтр, где за счет разницы в температурах фазовых переходов осаждаются хлориды  $^{60}\text{CoCl}$ ,  $^{137}\text{CsCl}$ ,  $^{108\text{m}}\text{AgCl}$ .



1, 6, 10, 30, 32 – дросселирующие устройства; 2, 7, 11, 34 – электроклапаны; 3 – редукторы; 4, 8, 12 – ручные вентили; 5 – баллон с аргонem; 9 – баллон с хлором; 13 – буферная емкость с водородом; 14 – защитный корпус; 15 – приемная емкость хлорида бериллия; 16, 22, 26, 28 – нагреватели омические; 18 – приемная емкость хлорида трития; 17, 27, 29 – теплообменники; 19 – узел загрузки образцов бериллия; 20 – образцы бериллия; 21 – реакционная камера; 23 – оптическая система измерения содержания хлора; 24 – смеситель газов; 25 – фильтр; 31, 35 – магистраль газосброса; 33 – редуктор азотной рампы; T1-T6 – термопары

Рисунок 1. Схема установки с прямоточным хлоратором

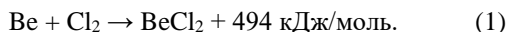
Хлориды  $\text{BeCl}_2$ ,  ${}^3\text{HCl}$ ,  $\text{HCl}$  и остатки свободного водорода поступают в дополнительный теплообменник, где хлорид бериллия охлаждается до температуры  $450\text{ }^\circ\text{C}$  и собирается в приемной емкости. Хлориды  ${}^3\text{HCl}$ ,  $\text{HCl}$ , находясь в газообразном состоянии (т.к. имеют температуру кипения  $-85\text{ }^\circ\text{C}$ ), поступают в теплообменник хлорида трития, где после охлаждения до температуры  $40\text{--}50\text{ }^\circ\text{C}$ , собираются в приемной емкости и растворяются в воде. Газообразные продукты технологического процесса (аргон и остатки водорода) выводятся в атмосферу через магистраль газосброса.

Для определения рабочих режимов установки были проведены расчеты теплофизических характеристик реакционной камеры, теплообменников для охлаждения хлорида бериллия и хлорида трития, емкостей сбора хлорида бериллия и хлорида трития.

## 2. ПАРАМЕТРЫ РАБОТЫ УЗЛОВ ПРЯМОТОЧНОЙ УСТАНОВКИ ХЛОРИРОВАНИЯ ОБЛУЧЕННОГО БЕРИЛЛИЯ

### 2.1. Параметры работы реакционной камеры

В реакционной камере, представляющей собой кварцевую трубу размером  $70 \times 3 \times 1200\text{ мм}$ , протекает экзотермическая реакция взаимодействия хлора с бериллием:



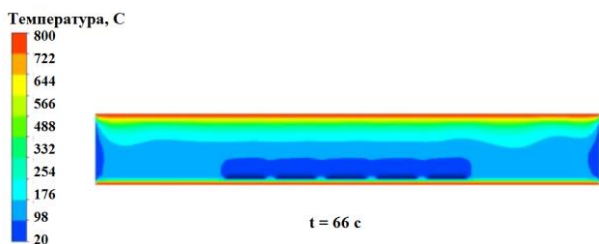
Стехиометрическое количество хлора, соответствующего имеющемуся количеству бериллия, состав-

лит  $3865\text{ г}$ . Соответственно, общая масса хлорида бериллия на выходе равна  $4356\text{ г}$ . Для обеспечения расчетного расхода хлорида бериллия, равного  $1\text{ г/с}$  [1], хлорирование всего бериллия должно быть выполнено в течение  $3,46\text{ ч}$ . При этом расход хлора должен быть равен  $0,89\text{ г/с}$ . Общее количество выделяемой тепловой энергии при полном взаимодействии бериллия с хлором составит  $26,89\text{ МДж}$ .

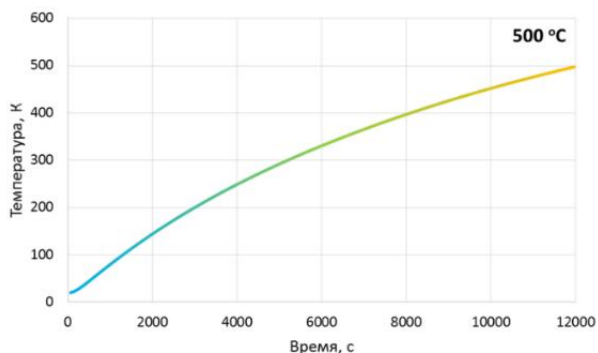
Технические характеристики омического нагревателя, расположенного на внешней поверхности реакционной камеры, рассчитывались исходя из необходимости разогрева образцов до температуры  $730\text{ }^\circ\text{C}$ , при этом температура греющих элементов нагревателя по оценкам не превысит  $800\text{ }^\circ\text{C}$ . Контроль параметров работы нагревателя осуществляется путем измерения температуры внешней поверхности реакционной камеры.

Работа установки начинается с разогрева образцов бериллия в реакционной камере до  $500\text{ }^\circ\text{C}$ . Диаграмма разогрева приведена на рисунке 2.

На следующем этапе в реакционную камеру подается хлор при температуре  $20\text{ }^\circ\text{C}$  и расходе  $0,89\text{ г/с}$ . Так как взаимодействие бериллия с хлором происходит с выделением энергии, то работа хлоратора в таком режиме осуществляется циклически и кратковременно. На рисунке 3 показана диаграмма разогрева образцов бериллия при взаимодействии его с хлором.

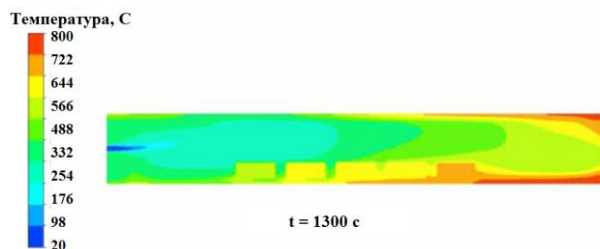


а) температурное поле реакционной камеры

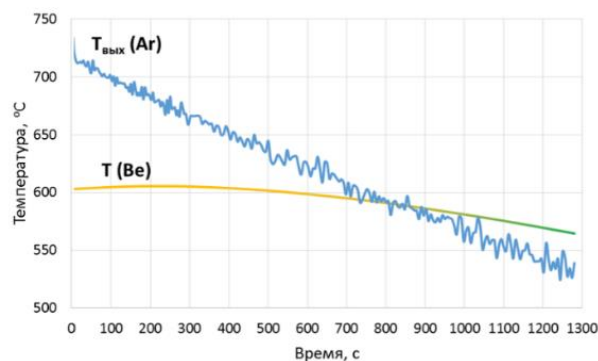


б) диаграмма разогрева образцов

Рисунок 2. Результаты расчета

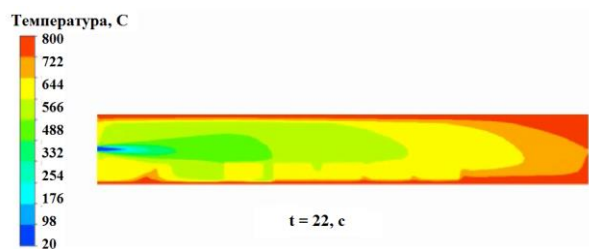


а) температурное поле реакционной камеры

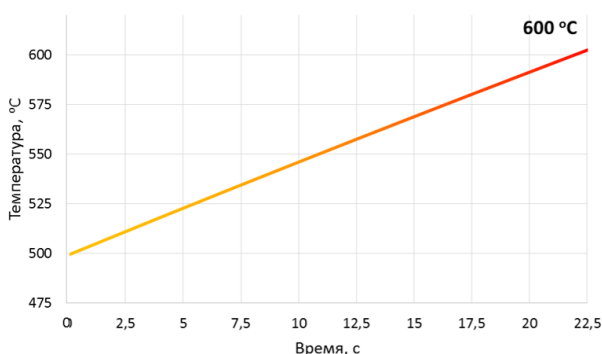


б) диаграмма разогрева образцов

Рисунок 4. Результаты расчета



а) температурное поле реакционной камеры



б) диаграмма разогрева образцов

Рисунок 3. Результаты расчета

При достижении температуры фильтра 600 °C подача хлора прекращается и реакционная камера продувается аргоном с расходом 3 г/с. После снижения температуры на фильтре до 500 °C в реакционную камеру снова подается хлор и работа хлоратора продолжается. Результаты расчета данного режима приведены на рисунке 4.

## 2.2. Параметры работы теплообменника для охлаждения хлорида бериллия и емкости для его сбора

Хлорид бериллия из фильтра с температурой ~550 °C поступает в теплообменник, в котором хлорид бериллия переводится из газообразного в жидкое состояние. Особенностью процесса является небольшая разница между температурой плавления и кипения хлорида бериллия (404 °C и 500 °C, соответственно [7]).

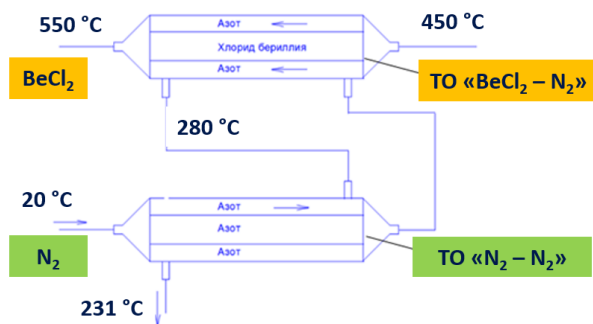
В установке используется система охлаждения хлорида бериллия, состоящая из двух теплообменников (см. позиции 27, 28 рисунка 1). Данная схема охлаждения позволяет подогревать азот в теплообменнике 28 перед его подачей в теплообменник 27 (рисунок 5а). В ходе предварительных расчетов в программе ANSYS [8] определены размеры и количество труб теплообменника системы «BeCl<sub>2</sub> – N<sub>2</sub>» и теплообменника системы «N<sub>2</sub> – N<sub>2</sub>». Сечение теплообменников представлено на рисунке 5б.

Исходные данные для расчета приведены в таблице 1. Движение теплоносителей происходит по прямой схеме.

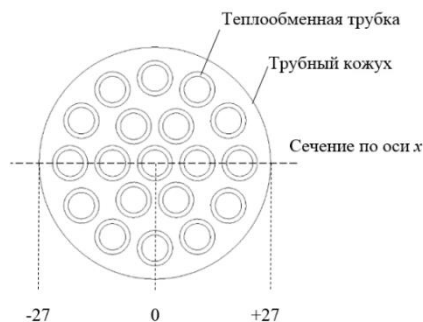
Характеристики теплообменников приведены в таблице 2, 3.

Изменение среднemasсовой температуры теплоносителей по длине теплообменников приведено на рисунке 6.

Распределение температуры теплоносителей по сечениям 1–6 теплообменника «BeCl<sub>2</sub> – N<sub>2</sub>» (см. рисунок 6а) представлено на рисунке 7.



а) схема охлаждения хлорида бериллия



б) сечение теплообменника

Рисунок 5. Параметры теплообменников

Таблица 1. Исходные данные

Параметр	Значение
Теплообменник «BeCl <sub>2</sub> – N <sub>2</sub> »	
G, г/с	
– BeCl <sub>2</sub>	0,7
– N <sub>2</sub>	5
T <sub>вх</sub> , °C	
– BeCl <sub>2</sub>	550
– N <sub>2</sub>	20
Теплообменник «N <sub>2</sub> – N <sub>2</sub> »	
Охлаждаемый азот	
– T <sub>вх</sub> , °C	482
– T <sub>вых</sub> , °C	280
– G, г/с	5
Охлаждающий азот	
– T <sub>вх</sub> , °C	20
– G, г/с	5

Данная схема охлаждения хлорида бериллия исключает возможность отвердевания хлорида бериллия на всех участках основного теплообменника, т.к. в них температура азота выше температуры плавления хлорида бериллия.

После охлаждения в теплообменнике хлорид бериллия при температуре 450 °C поступает в емкость сбора хлорида бериллия. Для поддержания его в жидком состоянии емкость предварительно нагревается омическим нагревателем до температуры не ниже 410 °C. Следует отметить, что хлорид серебра имеет температуру плавления, расположенную между температурами плавления и кипения хлорида бериллия – 455 °C [9], и существует вероятность его накопления в приемной емкости хлорида бериллия.

Таблица 2. Характеристики теплообменника BeCl<sub>2</sub> – N<sub>2</sub>

Параметр	Теплообменник «BeCl <sub>2</sub> – N <sub>2</sub> »			
	среда	газ-газ	газ-газожидкостная смесь	газ-жидкость
T <sub>вх</sub> , °C	BeCl <sub>2</sub>	550	500	500
T <sub>вых</sub> , °C		500	500	450
V <sub>вх</sub> , м/с		3,1	0,0007	0,0007
V <sub>вых</sub> , м/с		2,9	3,03	
T <sub>вх</sub> , °C	N <sub>2</sub>	482	300	280
T <sub>вых</sub> , °C		477	482	300
V <sub>вх</sub> , м/с		3,62	3,61	3,61
V <sub>вых</sub> , м/с				
Размер труб, мм	d <sub>внеш</sub>	8		
	s	1		
	L	100	800	38
N <sub>тр</sub> , шт	19			
S <sub>поверх</sub> , м <sup>2</sup>	0,0158	0,666	0,01	
D <sub>кожуха внутр</sub> , мм	52,4			
Мощность, Вт	29	955	44	

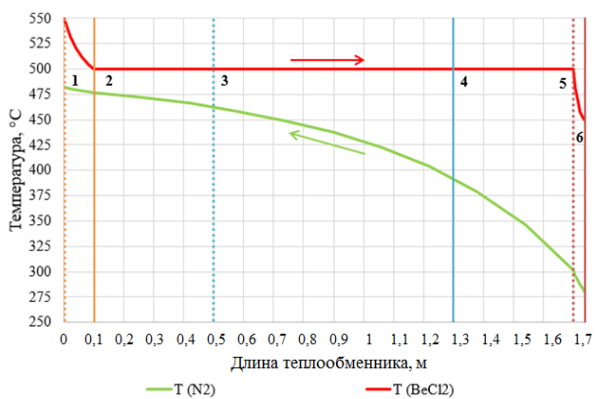
Таблица 3. Характеристики теплообменника «N<sub>2</sub> – N<sub>2</sub>»

Параметр	Теплообменник «N <sub>2</sub> – N <sub>2</sub> »	
	среда	газ-газ
T <sub>вх</sub> , °C	N <sub>2</sub> (охлаждаемый)	482
T <sub>вых</sub> , °C		278
V <sub>вх</sub> , м/с		3,61
V <sub>вых</sub> , м/с		3,67
T <sub>вх</sub> , °C	N <sub>2</sub> (охлаждающий)	20
T <sub>вых</sub> , °C		231
V <sub>вх</sub> , м/с		8,31
V <sub>вых</sub> , м/с		
Размер труб, мм	d <sub>внеш</sub>	8
	s	1
	L	800
N <sub>тр</sub> , шт	19	
S <sub>поверх</sub> , м <sup>2</sup>	0,333	
D <sub>кожуха внутр</sub> , мм	52,4	
Мощность, Вт	1100	

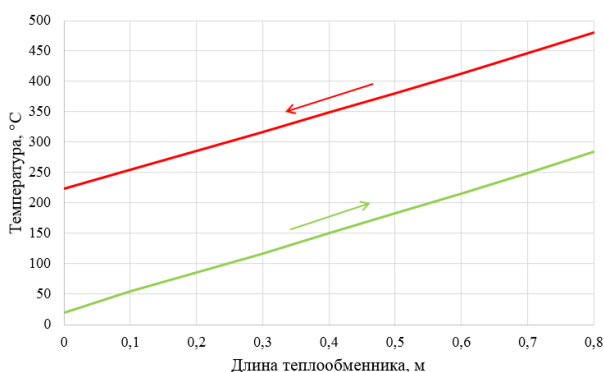
### 2.3. Параметры работы теплообменника хлорида трития и емкости для его сбора

Теплообменник предназначен для охлаждения хлорида трития с дальнейшим накоплением в емкости хлорида трития в жидком виде. В п. 2.1. был оценен расход хлора в реакционной камере – 0,31 г/с. Максимальный расход хлора в теплообменнике будет не выше этого значения, а расход водорода для осуществления стехиометрической реакции будет 0,01 г/с, если предположить, что весь хлор вступит в реакцию с водородом. Активность образцов бериллия по изотопу <sup>3</sup>H составляет 2,5×10<sup>11</sup> Бк [6], соответственно выход <sup>3</sup>H составит 4,15×10<sup>-11</sup> г/с, которым можно пренебречь при учете расхода <sup>3</sup>H в теплофизическом расчете. Исходя из этих предположений расход хлороводородов в расчете принят 0,32 г/с как сумма расходов хлора и водорода.

## ПАРАМЕТРЫ РАБОТЫ ПРЯМОТОЧНОЙ УСТАНОВКИ ХЛОРИРОВАНИЯ ОБЛУЧЕННОГО БЕРИЛЛИЯ



а) теплообменник «BeCl<sub>2</sub> – N<sub>2</sub>»



б) теплообменник «N<sub>2</sub> – N<sub>2</sub>»

Рисунок 6. Распределение среднemasовой температуры теплоносителей по длине теплообменников

Таблица 4. Характеристики теплообменника хлорида трития.

Параметр		Значение
³HCl	T <sub>вх</sub> , °C,	450
	T <sub>вых</sub> , °C,	43
	V <sub>вх</sub> , м/с	0,65
	V <sub>вых</sub> , м/с	0,6
N <sub>2</sub>	T <sub>вх</sub> , °C,	20
	T <sub>вых</sub> , °C,	41
	V <sub>вх</sub> , м/с	3,61
Размер труб, мм	d <sub>внеш</sub>	8
	s	1
	L	500
N <sub>тр</sub> , шт		19
S <sub>поверх</sub> , м <sup>2</sup>		0,208
D <sub>кожуха внутр</sub> , мм		52,4
<b>Мощность, Вт</b>		<b>204</b>

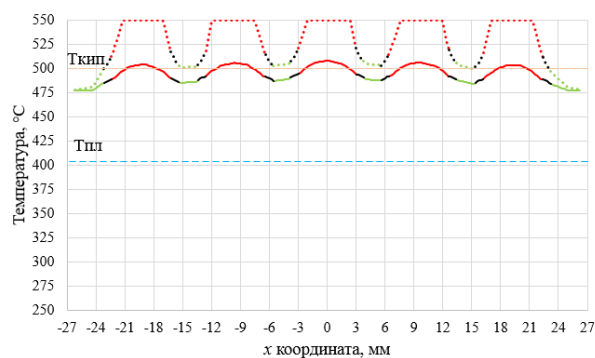
Физические свойства хлорида трития аналогичны свойствам хлороводорода, следовательно, для сбора хлорида трития в жидком виде необходимо охладить его до температуры ниже, чем температура кипения соляной кислоты (48 °C при концентрации в воде 38 %). Для этого используется азот с комнатной температурой и расходом 5 г/с. Распределение средне-

массовой температуры теплоносителей по длине теплообменника показано на рисунке 8.

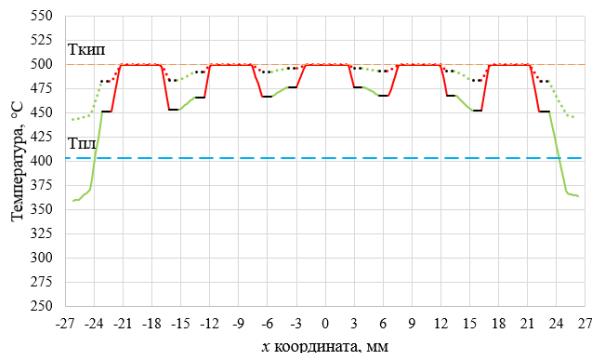
Характеристики теплообменника приведены в таблице 4.

После охлаждения в теплообменнике смесь из хлоридов <sup>3</sup>HCl, HCl, остатков непрореагировавшего водорода и хлора подается в емкость сбора хлорида трития, заполненную водой комнатной температуры. Растворимость хлорида водорода и хлорида трития в воде достаточно высокая [10], в результате чего получается насыщенный раствор соляной кислоты.

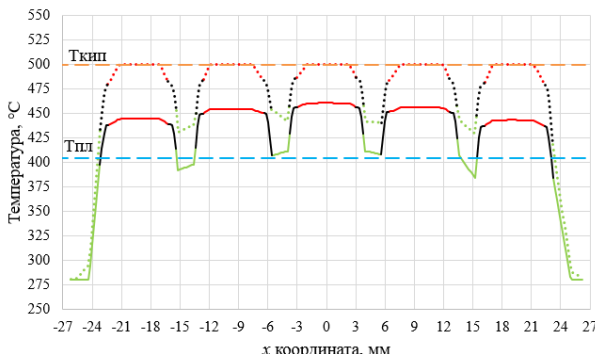
Остатки газов уходят в магистраль газосброса.



а) сечения 1 и 2



б) сечения 3 и 4



в) сечения 5 и 6

Рисунок 7. Распределения температуры по оси x сечения теплообменника системы «BeCl<sub>2</sub> – N<sub>2</sub>»

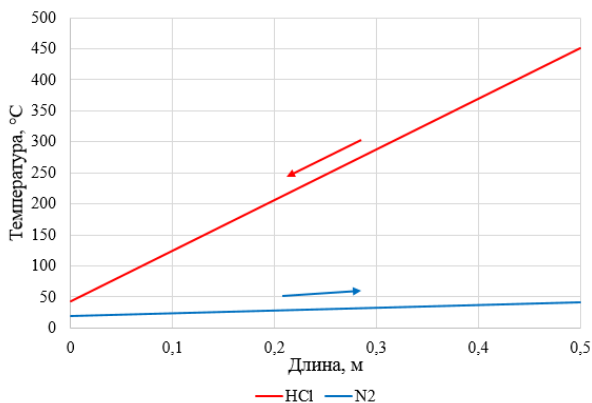


Рисунок 8. Распределение средней температуры теплоносителей по длине теплообменника

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотрены схема и принцип действия установки хлорирования облученного бериллия, а также назначение и температурные режимы основных узлов установки.

Приведены характеристики теплообменника для охлаждения хлорида бериллия, емкостей сбора хлорида бериллия и хлорида трития.

Показано, что в используемой схеме для перевода хлорида бериллия в жидкое состояние предварительный подогрев азота перед его подачей в основной теплообменник хлорида бериллия позволяет исключить образование твердого хлорида бериллия на всех участках теплообменника.

*Работа выполнена при финансовой поддержке Государственного учреждения «Комитет науки Министерства образования и науки Республики Казахстан» в рамках Договора №305 от 30.03.2018 года по теме «Совершенствование метода сухой очистки облученного бериллия».*

### ЛИТЕРАТУРА

1. Технология очистки облученного бериллия: итоговый технический отчет по проекту МНТЦ К-1566 / Институт атомной энергии РГП НЯЦ РК; рук: В.М. Котов. – Курчатов, 2013.
2. Проведение экспериментов по определению степени очистки хлорида бериллия от радионуклидов, отличающихся режимами работ хлоратора, фильтра хлорида кобальта, накопителей хлорида бериллия и трития: отчет о НИР по 02.13 НТП / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; рук: В.М. Котов [и др.]. – Курчатов, 2013.
3. Установка хлорирования облученного бериллия / В.М. Котов, М.А. Баусадыков // Конференция Ядерного общества Республики Казахстан. – Алматы, 2012.
4. Установка с прямоточным хлоратором: сборочный чертеж: АК.21262.00.000СБ / Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК; утв. В.В. Яковлев. – Курчатов, 2014.
5. Оптимизация конструкции теплообменника прямоточной установки очистки облученного бериллия. Тезисы V Международной конференции молодых ученых, аспирантов и студентов «Изотопы: технологии, материалы и применение», НИ ТПУ, 2018.
6. Transportation of Irradiated Beryllium Samples for Scientific Investigation. Specification of Beryllium Samples and Packaging in Containers // Japan Atomic Energy Agency (JAEA), Marubeni Utility Services, Ltd. (MUS). – Dec., 2009.
7. Чиркин, В.С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники / В.С. Чиркин. – М.: Атомиздат, 1968.– 121–128, 291–294, 237–239 с.
8. ANSYS release 14.5 Documentation for ANSYS WORKBENCH: ANSYS Inc. – Электрон. дан. и прогр. – [Б. м.], 2014.
9. Физические свойства // Константы неорганических веществ: справочник / Под редакцией проф. Р. А. Лидина. – 2-е изд., перераб. и доп. – М.: «Дрофа», 2006. – С. 73. – ISBN 5-7107-8085-5.
10. Левинский М.И., Мазанко А.Ф., Новиков И.Н. Хлористый водород и соляная кислота. – М.: Химия, 1985. – 160 с., ил.

### СӘУЛЕЛЕНДІРГЕН БЕРИЛЛИЙДІ ХЛОРЛАУ ҮШІН АРНАЛҒАН ТІК АҒЫНДЫ ҚОНДЫРҒЫСЫНЫҢ ЖҰМЫС ПАРАМЕТРЛЕРІ

Н.А. Сулейменов, В.М. Котов, А.Д. Вурим, Ю.Ю. Бакланова

*ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан*

Бериллий ядролық энергетикада кеңінен қолданылады. Сонымен қатар ол сирек кездесетін металдарға жатады, өйткені оның жер қабығындағы құрамы  $5 \times 10^{-4} \%$  болып саналады. Табиғатта таралудың төмендігі және кең шығарудың күрделі технологиясы оның жоғары құнын анықтайды. Ядролық реакторда сәулелендіру процесінде бериллийдің қасиеттері нашарлайды, соның ішінде әр түрлі нуклидтер мен радионуклидтердің есебінен жиналуы. Осыған байланысты, сәулелендірілген бериллийді қайта пайдалану үшін жинақталған қоспалардан тазартуы өзекті мәселе болып табылады.

Мақалада сәулелендірілген бериллийдің хлорлау қондырғысының жұмыс принципі мен жабдықтарының құрамы қарастырылады. Бұл технология бериллий мен оның радионуклидтерін хлоридтерге айналдыруды және кейінгі бөлуін көздейді. Сұйық түріндегі бериллий хлориді ақырғы өнім болып табылады.

**OPERATING PARAMETERS OF A DIRECT FLOW IRRADIATED  
BERILLIUM CHLORINATION PLANT**

**N.A. Suleimenov, V.M. Kotov, A.D. Vurim, J.J. Baklanova**

*Branch "Institute of Atomic Energy" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan*

Beryllium has been widely used in nuclear power engineering. In this case, it refers to rare metals, since its content in the earth's crust is  $\sim 5 \times 10^{-4} \%$ . A small prevalence in nature, a complex technology of extraction from ore and obtaining products determine its high cost [1]. In the process of using beryllium in nuclear power, various radionuclides accumulate in it, which limit its reuse. According to this, the problem of purification of irradiated in a nuclear reactor beryllium from radionuclides is topical.

The article discusses the principle of operation and the composition of the equipment of the direct flow irradiated beryllium chlorination plant. This technology involves the conversion of beryllium and its radionuclides to chlorides, followed by their separation. The final product is beryllium chloride in liquid form.