

Для цитирования:

Барбин Н.М., Кобелев А.М., Терентьев Д.И., Алексеев С.Г. Поведение углерода и урана при нагревании радиоактивного графита в парах воды. Термодинамическое моделирование. *Изв. вузов. Химия и хим. технология.* 2016. Т. 59. Вып. 9. С. 16–20.

For citation:

Barbin N.M., Kobelev A.M., Terent'ev D.I., Alekseev S.G. Behavior of carbon and uranium at radioactive graphite heating in water vapor. Thermodynamic modeling. *Izv. Vyssh. Uchebn. Zaved. Khim. Khim. Tekhnol.* 2016. V. 59. N 9. P. 16–20.

УДК 541.13+11

Н.М. Барбин, А.М. Кобелев, Д.И. Терентьев, С.Г. Алексеев

Николай Михайлович Барбин (✉)

Кафедра химии, Уральский государственный аграрный университет, ул. Карла Либкнехта, 42, Екатеринбург, Российская Федерация, 620075

Уральский институт ГПС МЧС России, ул. Мира, 22, Екатеринбург, Российская Федерация, 620062

E-mail: NMBarbin@mail.ru (✉)

Антон Михайлович Кобелев

Кафедра пожарной автоматики, Уральский институт ГПС МЧС России, ул. Мира, 22, Екатеринбург, Российская Федерация, 620062

E-mail: antonkobelev85@mail.ru

Дмитрий Иванович Терентьев

Кафедра физики и теплообмена, Уральский институт ГПС МЧС России, ул. Мира, 22, Екатеринбург, Российская Федерация, 620062

E-mail: svireprey@mail.ru

Сергей Геннадьевич Алексеев

Научно-инженерный центр «Надежность и ресурс больших систем и машин», УрО РАН, ул. Студенческая, 54а, Екатеринбург, Российская Федерация, 620049

Уральский институт ГПС МЧС России, ул. Мира, 22, Екатеринбург, Российская Федерация, 620062

E-mail: 3608113@mail.ru

**ПОВЕДЕНИЕ УГЛЕРОДА И УРАНА ПРИ НАГРЕВАНИИ РАДИОАКТИВНОГО ГРАФИТА
В ПАРАХ ВОДЫ. ТЕРМОДИНАМИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ**

Методом термодинамического моделирования исследовано поведение радиоактивного графита при высокой температуре в парах воды. Приведено распределение радиоактивного углерода и урана по фазовым состояниям.

Ключевые слова: термодинамическое моделирование, радиоактивный углерод, уран, фазовые состояния

N.M. Barbin, A.M. Kobelev, D.I. Terent'ev, S.G. Alekseev

Nikolaiy M. Barbin (✉)

Chemistry Department, Ural State Agrarian University, Karla Libknekhta str., 42, Yekaterinburg, 620075, Russia
Ural State Fire Service Institute of Emercom of Russia, Mira str., 22, Yekaterinburg, 620062, Russia

E-mail: NMBarbin@mail.ru (✉)

Anton M. Kobelev

Department of Fire Automatics, Ural State Fire Service Institute of Emercom of Russia, Mira str., 22, Yekaterinburg, 620062, Russia

E-mail: antonkobelev85@mail.ru

Dmiriy I. Terent'ev

Chair of Physics and Heat Transfer, Ural State Fire Service Institute of Emercom of Russia, Mira str., 22, Yekaterinburg, 620062, Russia

E-mail: svireppey@mail.ru

Sergeiy G. Alexeev

Science and Engineering Center "Reliability and Safety of large systems", Ural Branch of RAS, Studencheskaya str., 54a, Yekaterinburg, 620049, Russia

Ural State Fire Service Institute of Emercom of Russia, Mira str., 22, Yekaterinburg, 620062, Russia

E-mail: 3608113@mail.ru

BEHAVIOR OF CARBON AND URANIUM AT RADIOACTIVE GRAPHITE HEATING IN WATER VAPOR. THERMODYNAMIC MODELING

The behavior of radioactive graphite was studied by the method of thermodynamic modeling at high temperature in water vapor. The distribution of radioactive carbon and uranium on phase states is given.

Key words: thermodynamic modeling, radioactive carbon, uranium, phase states

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в мире существует 5 типов ядерных реакторов. Это реактор ВВЭР (водо-водяной энергетический реактор), РБМК (реактор большой мощности канальный), реактор на тяжелой воде, реактор с шаровой засыпкой и газовым контуром, реактор на быстрых нейтронах. Наиболее распространены в России реакторы на тепловых нейтронах, в которых замедлителем и теплоносителем является обычная вода (ВВЭР) и водографитовые реакторы, в которых в качестве замедлителя выступает графит [1].

По состоянию на 2016 г в России эксплуатируется 11 энергоблоков с РБМК-1000 на трех атомных электростанциях: Курской, Ленинградской, Смоленской [1].

Надежность графитовой кладки является одним из факторов, определяющих безопасность работы АЭС (атомная электростанция).

Особо опасными радиоактивными веществами, присутствующими в реакторном графите, являются изотопы урана.

Природный уран представляет собой смесь трех изотопов: ^{234}U (0,006%), ^{235}U (0,7%), ^{238}U (99,3%). Известны искусственные радиоактивные изотопы с массовыми числами 227-240 [2].

Уран является основным энергетическим сырьем для получения ядерного горючего.

Периоды полураспада радионуклидов урана составляют $4,468 \cdot 10^9$ лет для ^{238}U , $2,342 \cdot 10^7$ лет для ^{236}U , $7,038 \cdot 10^8$ лет ^{235}U .

Величина всасывания урана в организм при различных путях поступления зависит от рас-

творимости его соединений. У взрослых людей в организме задерживается в среднем 1,1%, у подростков 1,8% суточного поступления [2].

Острая и хроническая интоксикация характеризуется политропным действием урана на различные органы и системы. Растворимые и нерастворимые соединения урана вызывают однотипный характер поражения, разница заключается лишь в скорости интоксикации и степени тяжести поражения. В ранние сроки воздействия преобладает химическая токсичность элемента, в поздний период оказывает действие радиационный фактор. При длительном поступлении в организм труднорастворимых соединений урана, когда наблюдается биологическое действие урана как α -излучателя, развивается хроническая лучевая болезнь [2].

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В данной работе исследовано поведение углерода и урана в радиоактивном графите при его нагревании в парах воды. Расчеты проводились методом термодинамического моделирования с помощью программы Терра. Модель термодинамического равновесия широко используется в научной и производственной практике при изучении поведения сложных по химическому составу систем при повышенных температурах. Экспериментальные методики не всегда позволяют получить достоверные сведения о свойствах и поведении веществ при высоких температурах в связи со сложностью проведения опытов и ошибками измерений. Программа Терра предназначена для расчета состава фаз, термодинамических и транспортных свойств произвольных систем с химическими и фазовыми превращениями. Она позволяет моделировать предельно равновесные состояния с использованием модели идеального газа. В программу для работы с часто применяемыми простыми веществами встроена простая, открытая для расширения база данных [3-11].

Термодинамическое моделирование проводилось в парах воды при начальном давлении – $0,98 \cdot 10^5$ Па. Начальная температура – 373 К, конечная температура – 3273 К. Температура изменялась с шагом в 100 К. Содержание углерода в системе составляло 5 г, воды – 15 г и урана – 0,00058 г. Количество загружаемых в программу веществ определялось, исходя из примерного содержания образца отработанного графита водографитового ядерного реактора. Результаты термодинамических расчетов представлены ниже.

Распределение углерода по фазовым состояниям в рассматриваемой системе представле-

но на рис. 1. До температуры 873 К весь углерод находится в газо-конденсированной фазе в виде конденсированного углерода, углекислого газа, метана. При дальнейшем увеличении температуры в системе присутствует только газообразная фаза. Метан полностью переходит в угарный газ при температуре 1073 К. В температурном диапазоне от 1073 до 3273 К весь углерод находится в виде угарного и углекислого газа.

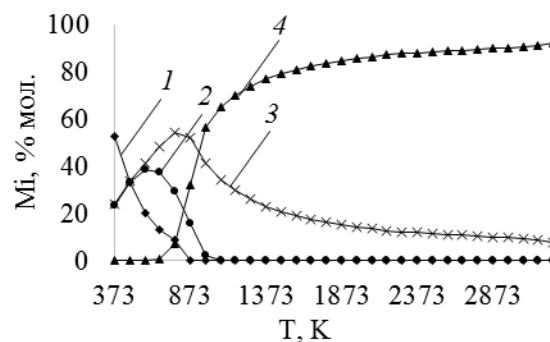


Рис. 1. Распределение углерода по фазовым состояниям:

1 – C(конд.); 2 – CH_4 ; 3 – CO_2 ; 4 – CO

Fig. 1. Distribution of carbon on phase states: 1 – C(cond.);

2 – CH_4 ; 3 – CO_2 ; 4 – CO

Распределение урана по фазовым состояниям представлено на рис. 2. До температуры 1673 К уран находится в конденсированной фазе. При температуре 873 К исчезает конденсированный UO_2Cl_5 . В диапазоне температур от 873 до 1673 К уран присутствует в виде конденсированных UO_2 и CaUO_4 . Дальнейшее увеличение температуры ведет к образованию паро-конденсированной фазы: UO_2 (конд.), UO_3 , UO_2 , UO_3^- , UO_2^+ . При температуре от 1973 до 3273 К уран находится в паровой фазе в виде триоксида урана, диоксида урана и ионизированных UO_3^- , UO_2^+ .

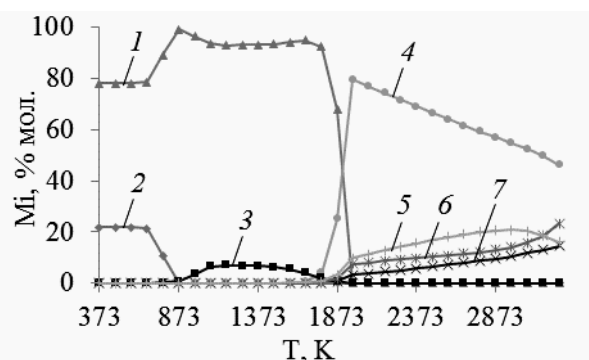


Рис. 2. Распределение урана по фазовым состояниям:

1 – UO_2 (конд.); 2 – UO_2Cl_5 (конд.); 3 – CaUO_4 (конд.); 4 – UO_3 ;

5 – UO_3^- ; 6 – UO_2^+ ; 7 – UO_2

Fig. 2. Distribution of uranium on phase states: 1 – UO_2 (cond.);

2 – UO_2Cl_5 (cond.); 3 – CaUO_4 (cond.); 4 – UO_3 ; 5 – UO_3^- ;

6 – UO_2^+ ; 7 – UO_2

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

По полученным данным термодинамического моделирования выделим четыре температурных интервала поведения урана и углерода в виде таблицы.

Таблица

Фазовые состояния урана и углерода в температурных интервалах (в парах воды)

Table. Phase states of uranium and carbon in the temperature intervals (in water vapor)

Температура	Фазовое состояние элемента	
	уран	углерод
373-873 К	конденсированное	газо-конденсированное
873-1673 К		газообразное
1673-1973 К	паро-конденсированное	
1973-3273 К	парообразное	

Согласно таблице в температурном интервале 373-873 К уран находится в конденсированном состоянии в виде диоксида урана, а углерод – в

газо-конденсированном состоянии в виде С(конд.), CO₂, CH₄, CO. В температурном интервале 873-1673 К уран находится в конденсированном состоянии в виде: UO₂, CaUO₄, а углерод переходит в газообразное состояние за счет сжигания конденсированного С. В температурном интервале 1673-1973 К уран находится в паро-конденсированном состоянии, в виде: UO₂(конд.), UO₃, UO₂, UO₃⁻, UO₂⁺. В температурном интервале 1973-3273 К уран присутствует в виде пара: UO₃, UO₂, UO₃⁻, UO₂⁺.

ВЫВОДЫ

В результате проведенной работы было определено, что при высокой температуре уран находится в виде триоксида урана, диоксида урана и ионизированных UO₃⁻, UO₂⁺, углерод в виде угарного и углекислого газа. Полученные методом термодинамического моделирования данные необходимо учитывать при возникновении возможных аварий на атомных реакторах типа ВВЭР, РБМК ввиду того, что данный радиоактивный газ может быть перенесен в окружающее пространство.

ЛИТЕРАТУРА

1. Росатом: Производство электроэнергии. URL: <http://www.rosatom.ru> (дата обращения: 18.01.2016).
2. **Баженов В. А., Булдаков Л. А., Василенко И. Я., Журавлев В.Ф., Заикина Т.И., Калистратова В.С., Москалев Ю.И., Осипов В.А., Степанов С.В., Филев В.А.** Вредные химические вещества. Радиоактивные вещества. Л.: Химия. 1990. 464 с.
3. **Белов Г.В., Трусов Б.Г.** Термодинамическое моделирование химически реагирующих систем. М.: МГТУ им. Н.Э. Баумана. 2013. 96 с.
4. **Барбин Н.М., Кобелев А.М., Терентьев Д.И., Алексеев С.Г.** *Пожаровзрывобезопасность*. 2014. Т. 23. № 10. С. 38–47.
5. **Кобелев А.М., Барбин Н.М., Терентьев Д.И., Алексеев С.Г.** Расчет теплофизических свойств при нагревании системы радиоактивный графит-пары воды. Тез.докл. XXXI Всероссийской конференции «Сибирский теплофизический семинар». Новосибирск: Институт теплофизики СО РАН. 2014. С. 525-527.
6. **Кобелев А.М., Терентьев Д.И., Барбин Н.М., Алексеев С.Г., Опарин И.Д.** *Техносферная безопасность*. 2014. № 1(2). С. 34-39.
7. **Кобелев А.М., Сидаш И.А., Барбин Н.М., Опарин И.Д.** Сравнительный термодинамический анализ поведения урана, плутония и америция при нагревании радиоактивного графита в атмосфере углекислого газа или в парах воды. Тез.докл. международной научно-практической конференции «Творческое наследие В.Е. Грум-Гржимайло», посвящённой 150-летию со дня рождения Владимира Ефимовича Грум-Гржимайло. Екатеринбург: УрФУ. 2014. С. 276-282.

REFERENCES

1. Rosatom: The production of electricity. URL: <http://www.rosatom.ru> (date of access: 18.01.2016).
2. **Bazhenov V.A., Buldakov L.A., Vasilenko I.Ya., Zhuravlev V.F., Zaikina T.I., Kalistratova V.S., Moskaev Yu.I., Osipov V.A., Stepanov S.V., Filov V.A.** Harmful chemicals. Radioactive substances. L.: Khimiya. 1990. 464 p. (in Russian).
3. **Belov G.V., Trusov B.G.** Thermodynamic modeling of chemically reacting systems. M.: MGTU named by N.E. Bauman. 2013. 96 p. (in Russian).
4. **Barbin N.M., Kobelev A.M., Terent'ev D.I., Alekseev S.G.** *Pozharovzryvobezopastnost*. 2014. V. 23. N 10. P. 38-47 (in Russian).
5. **Kobelev A.M., Barbin N.M., Terent'ev D.I., Alekseev S.G.** Calculation of heat-physical properties at heating system radioactive graphite-water vapor. Abstract of presentation of. XXXI All-Russia Conference «Sibirskiy teplofizicheskiy seminar». Novosibirsk: Institut teplofiziki SO RAN. 2014. P. 525-527 (in Russian).
6. **Kobelev A.M., Terent'ev D.I., Barbin N.M., Alekseev S.G., Oparin I.D.** *Tekhnosfernaya bezopastnost*. 2014. N 1(2). P. 34-39 (in Russian).
7. **Kobelev A.M., Sidash I.A., Barbin N.M., Oparin I.D.** Comparative analysis of uranium, plutonium and americium at heating radioactive graphite in medium of carbon dioxide or in water vapor. Abstract of presentation of. Sci.-Pract. Conference «Tvorcheskoe nasledie V.E. Grum-Grzhimajlo». Ekaterinburg: UrFU. 2014. P. 276-282 (in Russian).
8. **Kobelev A.M., Sidash I.A., Barbin N.M., Borodin A.A., Peshkov A.V.** // *Tekhnosfernaya bezopastnost*. 2015. N 1(6). P. 27-32 (in Russian).

8. **Кобелев А.М., Сидаш И.А., Барбин Н.М., Бородин А.А., Пешков А.В.** *Техносферная безопасность*. 2015. № 1(6). С. 27-32.
9. **Барбин Н.М., Кобелев А.М., Терентьев Д.И., Алексеев С.Г.** Термодинамическое моделирование поведения урана, плутония, америция и европия при горении радиоактивного графита в парах воды. Сб. тр. IX международного семинара вузов по теплофизике и энергетике. Т.1. Казань. 2015. С.71-78.
10. **Барбин Н.М., Кобелев А.М., Терентьев Д.И., Алексеев С.Г.** Термодинамическое моделирование поведения Pu и Am при нагреве радиоактивного графита в парах воды. Сб. трудов всероссийского семинара с международным участием «Радиационная и промышленная экология». Ростов-на-Дону. 2016. С. 331-334.
11. **Барбин Н.М., Сидаш И.А., Терентьев Д.И., Алексеев С.Г.** *Пожаровзрывобезопасность*. 2014. Т. 23. № 11. С. 52-60.
9. **Barbin N.M., Kobelev A.M., Terent'ev D.I., Alekseev S.G.** Thermodynamic modeling of the behavior of uranium, plutonium, americium and europium in the combustion of radioactive graphite in water vapor. Proceedings of the IX international seminar of universities on thermal physics and energy. V. 1. Kazan. 2015. P. 71-78 (in Russian).
10. **Barbin N.M., Kobelev A.M., Terent'ev D.I., Alekseev S.G.** Thermodynamic simulation of the behavior of Pu and Am during heating of radioactive graphite in water vapor. Proceedings of all-Russian seminar with international participation «Radiation and industrial ecology». Rostov-na-Donu. 2016. P. 331-334 (in Russian).
11. **Barbin N.M., Sidash I.A., Terent'ev D.I., Alekseev S.G.** *Pozharovzryvobezopastnost*. 2014. V. 23. N 11. P. 52-60 (in Russian).

*Поступила в редакцию 21.06.2016
Принята к опубликованию 17.08.2016*

*Received 21.06.2016
Accepted 17.08.2016*