

# Возможность применения углеродволоконистого материала Бусофит для контроля радиоиода в газовых выбросах атомных электростанций

А. В. Обручиков, С. М. Лебедев

---

Исследована способность углеродволоконистого материала Бусофит, импрегнированного различными соединениями, улавливать радиоактивный метилиодид из паровоздушных потоков. По результатам сорбции  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  в одинаковых условиях установлено, что материал, содержащий комплексное соединение иодид-дiazобидциклооктан бария, является перспективным сорбентом для контроля радиоиода на атомных электростанциях (АЭС).

**Ключевые слова:** газоочистка, сорбция иода, сорбция иодистого метила, иод-131, сорбенты, сорбционно-фильтрующие мембраны.

---

The sorption capacity of the carbon fiber material Busofit impregnated with various compounds to trap radioactive methyl iodide from vapor-air streams was studied. According to the results of sorption  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  under identical conditions revealed that the material contains a complex compound of barium iodide-diazabicyclooctane is a perspective sorbent for the control of radioiodine in nuclear power plants.

**Keywords:** gas purification, sorption of iodine, sorption of methyl iodide, iodine-131, sorbents, filtering membranes.

---

## Введение

Контроль газоаэрозольных выбросов при эксплуатации АЭС, особенно выбросов радиоактивного иода, является в настоящее время актуальной проблемой. Очевидно, что для обеспечения эффективного контроля радиоиода в очищаемых газообразных радиоактивных отходах (ГРО) АЭС необходимо применение качественных аналитических фильтров, способных удалять из паровоздушных потоков наиболее проникающее соединение радиоиода — метилиодид. Для этих целей используют сорбционно-фильтрующие материалы (СФМ), такие как СФЛ-2И-50, основу которых составляют ультратонкие перхлорвиниловые волокна с напыленным углем марки ОУ-А, импрегнированным азотнокислым серебром [1]. Широкое применение в сорбционных процессах в настоящее время находят углеродволоконистые ткани, изготовленные из карбонизированной вискозной технической нити, обладающие развитой удельной поверхностью. Одним из таких материалов является

сорбент марки Бусофит, который по нашему мнению может являться альтернативой используемым сейчас СФМ для контроля радиоиода на АЭС.

Цель работы — исследование сорбционной способности углеродволоконистого материала Бусофит, содержащего различные импрегнанты, по отношению к радиоактивному иодистому метилу

## Методика эксперимента

Работа проведена на “Контрольно-исследовательском иодном стенде” РХТУ им. Д.И. Менделеева [2].

Импрегнирование углеткани проводили следующим образом: 1) готовили водные растворы нитрата серебра, триэтилендиамина (ТЭДА), иодистого бария и комплексного соединения иодид-дiazобидциклооктана бария (далее комплексное соединение или комплекс); 2) вырезали образцы ткани диаметром 45 мм и толщиной 0,5 мм; 3) равномерно наносили приготовленные растворы на поверхность Бусофита с

помощью пипетки; 4) ткань сушили при температуре 70 – 75 °С до постоянной массы.

Были приготовлены 3 партии образцов углеволоконистого материала с концентрацией импрегнантов в сорбенте 50, 100 и 200 мкмоль/г.

Готовые образцы в количестве 3-х фильтрующих сборок последовательно помещали в секционированный держатель, находящийся в суховоздушном термостате установки. Каждая сборка содержала четыре слоя Бусофита.

Сорбционные характеристики испытуемого материала определяли с помощью метилиодида, меченого изотопом иод-131. Перед испытанием помещали 2 мл радиоактивного метилиодида в испаритель установки. Метилиодид, меченый изотопом <sup>131</sup>I, получали путем изотопного обмена его с Na<sup>131</sup>I без носителя.

Барботажный увлажнитель установки заполняли дистиллированной водой. Затем с помощью жидкостного термостата, подключенного к увлажнителю, устанавливали температуру в его рубашке так, чтобы обеспечить заданную относительную влажность газа при требуемой скорости газового потока.

Чтобы исключить влияние теплоты адсорбции воды на сорбцию иодистого метила углеволокном, сорбент в течение 2-х часов предварительно приводили в контакт с газовым потоком с относительной влажностью 90,0 ± 1,5%. Открыв кран подачи паров радиоиода, направляли его в газовый поток и пропускали тестовую газовую смесь через сорбент. Подачу радиоиода осуществляли в течение 1 ч. Температура исследования составляла 30,0 ± 0,1 °С, относительная влажность — 90,0 ± 1,5%. Линейная скорость газового потока во всех экспериментах была 20 мм/с, что соответствует времени контакта со всей фильтрующей сборкой — 0,3 с.

Через каждый час сорбции образцы вынимали из держателя и измеряли их активность на гамма-рентгеновском спектрометре по энергетической линии 364 кэВ. Погрешность каждого измерения не превышала 5%.

Критерием оценки качества сорбента служил индекс сорбционной способности α, определяемый по уравнению [3]:

$$\ln \frac{A}{A - A_x} = \alpha \tau_k,$$

где  $A$  — суммарная активность радиоиода, введенная в сорбент;  $A_x$  — активность радиоиода на толщине слоя сорбента;  $x$  — текущая координата;  $x \leq L$ ,  $L$  — общая толщина слоя сорбента,  $\tau_k$  — время контакта. Очевидно, что  $\tau_k$  — отношение толщины слоя сорбента к линейной скорости газового потока  $\tau_k = L/U$ .

В настоящей работе индекс сорбционной способности α находили по графику зависимости

$\ln \frac{A}{A - A_x} = f(L)$  через тангенс угла наклона прямой.

## Результаты и обсуждение

На начальном этапе исследования было показано, что использовать неимпрегнированный Бусофит, а также импрегнированный нитратом серебра как средство контроля радиоиода в газовых выбросах АЭС нецелесообразно, так как эти сорбенты практически не улавливают  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  (рис. 1). К тому же, большая часть его уносится с поверхности материала после непродолжительной продувки газовым потоком (рис. 2).

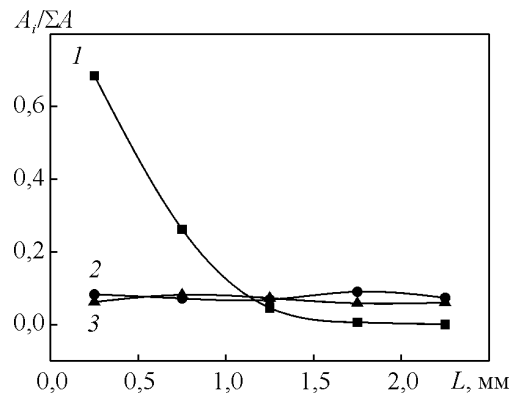


Рис. 1. Сорбция  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  на материале Бусофит при 30 °С и относительной влажности 90%. 1 — импрегнирован комплексным соединением (100 мкмоль/г); 2 — импрегнирован  $\text{AgNO}_3$  (100 мкмоль/г); 3 — не импрегнирован.

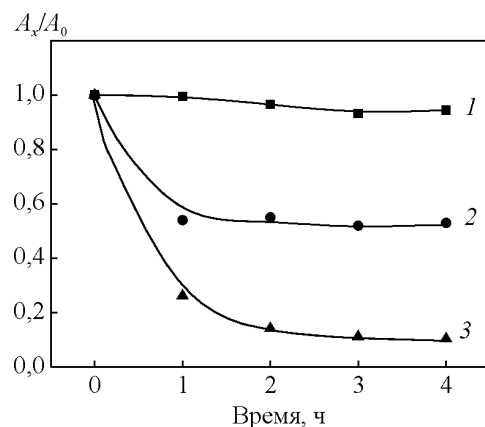


Рис. 2. Десорбция  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  с материала Бусофит при 30 °С и относительной влажности 90%. 1 — импрегнирован комплексным соединением (100 мкмоль/г); 2 — импрегнирован  $\text{AgNO}_3$  (100 мкмоль/г); 3 — не импрегнирован.

Таблица 1

Распределение концентрации  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  по слоям импрегнированного углеволокнистого материала

Толщина слоя, мм	Отношение активности $i$ -го слоя сорбента к общей активности радиоиода $A_i/A$		
	ТЭДА	$\text{BaI}_2$	комплекс
0,5	0,759	0,508	0,851
1,0	0,215	0,298	0,126
1,5	0,023	0,115	0,020
2,0	0,003	0,059	0,003
2,5	—	0,013	—
3,0	—	0,005	—
3,5	—	0,001	—

Далее была определена сорбционная способность материала, импрегнированного одинаковым количеством ТЭДА, иодида бария и иодид-диазобисциклооктана бария.

Послойное распределение радиоиода после первого часа сорбции радиоактивного метилиодида импрегнированными образцами Бусофита представлено в табл. 1.

Видно, что сорбционная способность материала, содержащего ТЭДА и комплексное соединение, выше, чем Бусофита с иодидом бария, так как фоновые значения активности  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  достигаются на более коротких слоях.

Экспериментальные данные дали основание для построения прямолинейных зависимостей

$$\ln \frac{A}{A - A_x} = f(L) \text{ и определения индекса сорбционной способности } \alpha.$$

Расчитанные значения  $\alpha$  по трем параллельным испытаниям показали, что образцы Бусофита, содержащие ТЭДА и иодид-диазобисциклооктан бария, обладают примерно одинаковой эффективностью удаления радиоактивного метилиодида из паровоздушного потока. Их сорбционная способность составила  $76 \pm 2$  и  $78 \pm 2 \text{ с}^{-1}$ , соответственно. В свою очередь, Бусофит, содержащий иодид бария, показал меньшую сорбционную способность ( $\alpha = 37 \pm 3 \text{ с}^{-1}$ ) по истечении одного часа подачи  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ .

Таблица 2

Индексы сорбционной способности импрегнированного Бусофита по истечении первого часа сорбции

Содержание импрегнанта, мкмоль/г	Индекс $\alpha, \text{ с}^{-1}$		
	ТЭДА	$\text{BaI}_2$	комплекс
50	$40 \pm 3$	$32 \pm 2$	$66 \pm 2$
100	$76 \pm 2$	$37 \pm 3$	$78 \pm 2$
200	$83 \pm 2$	$38 \pm 3$	$80 \pm 2$

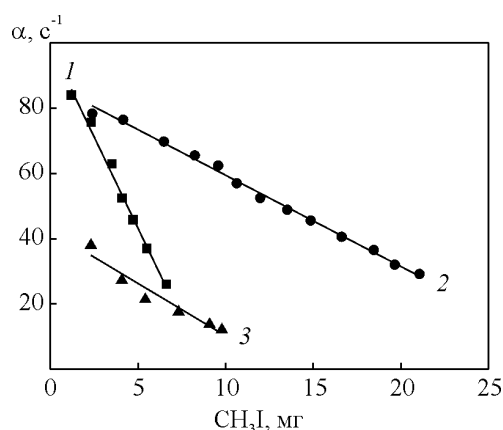


Рис. 3. Изменение сорбционной способности Бусофита с увеличением подачи радиоиода. 1 — 100 мкмоль/г ТЭДА, 2 — 100 мкмоль/г комплекс, 3 — 100 мкмоль/г  $\text{BaI}_2$

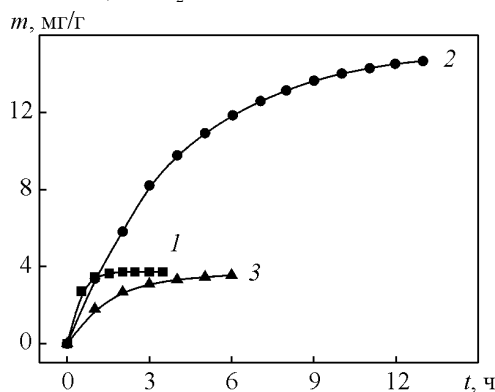


Рис. 4. Кинетика накопления метилиодида на импрегнированных сорбентах. 1 — 100 мкмоль/г ТЭДА, 2 — 100 мкмоль/г комплекс, 3 — 100 мкмоль/г  $\text{BaI}_2$

Сравнительные испытания сорбентов, проведенные в соответствии с описанной методикой, позволили рассчитать значения индекса  $\alpha$ , которые представлены в табл. 2.

Во всех случаях сорбент, содержащий иодид бария обладает меньшей способностью удалять  $\text{CH}_3^{131}\text{I}$  из газового потока.

Бусофит с содержанием 50 мкмоль/г ТЭДА улавливает радиоид хуже, чем сорбент с тем же количеством комплексного импрегнанта, однако с увеличением содержания ТЭДА и иодид-диазобисциклооктана бария сорбционная способность этих образцов примерно одинакова.

Далее была изучена зависимость сорбционной способности импрегнированного углеволокнистого материала от количества поданного радиоиода. Эта зависимость имеет линейный характер (рис. 3).

Во всех случаях наблюдается снижение сорбционной способности, связанное с уменьшением количества реакционноспособного импрегнанта в

сорбенте. При этом очевидно, что образцы, содержащие комплексное соединение, обладают лучшими сорбционными характеристиками.

Аналогичные зависимости были получены при испытании сорбентов с другим содержанием импрегнантов (50 и 200 мкмоль/г).

Различие в скорости изменения сорбционной способности объясняется механизмом взаимодействия радиоиода с импрегнантом. С ТЭДА имеет место химическое взаимодействие, а с ВаI<sub>2</sub> — изотопный обмен, скорость которого меньше.

Сорбенты, импрегнированные ТЭДА и ВаI<sub>2</sub>, достигают предела насыщения по метилиодиду гораздо раньше, чем Бусофит, импрегнированный комплексным соединением (рис. 4).

В случае комплексного импреганта (иодид-дiazобизциклооктаном бария) удаление радиоиода обусловлено, как процессами химического взаимодействия метилиодида с комплексом, так и изотопным обменом между молекулами метилиодида и комплекса и изотопным обменом внутри молекулы комплекса [4]. Соответственно наличие 3-х параллельных механизмов взаимодействия обуславливают большую сорбционную емкость сорбента.

## **Выводы**

Для контроля радиоиода в воздушных потоках может применяться углеродволокнистый материал Бусофит, импрегнированный комплексным соединением иодид-дiazобизциклооктан бария, наряду с

использующимися сейчас СФМ, содержащими дорогостоящий нитрат серебра. Большая сорбционная емкость, а также высокие значения индекса сорбционной способности  $\alpha$  позволяют сделать заключение, что аналитические фильтры, изготовленные на основе этого сорбента, будут надежно удалять радиоид из газового потока и обладать большим ресурсом эксплуатации.

*Работа частично выполнена в рамках реализации ФЦП “Кадры” (мероприятие 1.4)*

## **Литература**

1. Борисов Н.Б., Борисова Л.И., Старостина И.А., Петрянов И.В. Аналитическая лента СФЛ-2И-50 и фильтры АФАС-И для определения содержания радиоактивного иода в газовых средах. Гигиена и санитария, 1977, № 9, с. 64 – 66.
2. Обручиков А. В., Широков В. В., Растунов Л. Н. Создание контрольно-исследовательского иодного стенда. Успехи химии и химической технологии, 2008, т. XXII, № 8, с. 9 – 12.
3. Растунов Л.Н., Обручиков А.В., Зо Наинг Наинг. Сорбция радиоактивного иодистого метила на импрегнированном материале бусофит. Перспективные материалы, 2011, спец. вып. №10, с. 293 – 296.
4. Богущ И.П., Листратов В.И., Полуэктов П.П., Растунов Л.Н., Репкина З.М. Модульный фильтр-адсорбер для улавливания радиоиода на АЭС. Тезисы докладов Междунар. конф. “Воздух-2001”, С-Петербург, 2001, с. 67 – 74.

*Статья поступила в редакцию 07.07.2011 г.*

**Обручиков Александр Валерьевич** — Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева (г. Москва), главный специалист, ассистент кафедры Химии высоких энергий и радиоэкологии. Специалист в области обращения с газообразными радиоактивными отходами, исследования свойств новых сорбентов, применяемых для очистки воздуха рабочих помещений атомных электростанций. E-mail: alexobruch@mail.ru.

**Лебедев Сергей Михайлович** — Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева (г. Москва), аспирант. Специалист в области радиоэкологии и материалов современной энергетики. E-mail: ser6122603@yandex.ru.