آنالیز ترمودینامیکی فرآیند رفع آلودگی پلاسمایی رادیوایزوتوپ Cs^{۱۳۷} از گرافیت تابش‌دیده

INC29-1368

محمد نیکوصفت*، اردشیر باقری[۱]، حمیدرضا شکور[۱]، زهرا شهبازی‌راد، نبی جوادی

۱- گروه فیزیک هسته‌ای، دانشکده و پژوهشکده علوم‌پایه، دانشگاه جامع امام حسین (ع)، تهران

۲- دانشکده مهندسی هسته‌ای، دانشگاه شهید بهشتی، تهران

۳- گروه شیمی، دانشکده و پژوهشکده علوم‌پایه، دانشگاه جامع امام حسین (ع)، تهران

چکیده:

رادیوایزوتوپ Cs^{۱۳۷} ازجمله آلودگی‌های هسته‌ای چالش‌برانگیز است. در حین عملکرد راکتورهای هسته‌ای گرافیت - سوخت (HTGR)، گرافیت که از آن به‌عنوان کند کننده‌ی نوترونی استفاده می‌شود، تحت تابش قرار گرفته و دارای آلودگی‌های متنوعی (از قبیل Cs^{۱۳۷}، Co^{۶۰} و Sr^{۹۰}) می‌شود و به دلیل ملاحظات صنعتی و زیست‌محیطی، رفع آلودگی گرافیت تابش دیده بسیار حائز اهمیت است. در این پژوهش، رفع آلودگی Cs^{۱۳۷} گیر افتاده در منافذ گرافیت موجود در راکتورهای هسته‌ای گرافیت - سوخت (HTGR) مورد آنالیز قرار گرفت. روش پیشنهادی رفع آلودگی از سطوح گرافیت تابش دیده، روش حرارتی پلاسما-اسپاترینگ با گاز تغذیه‌ی آرگون است که از آن برای کاهش مخاطرات ضایعات گرافیت پرتوزا استفاده شد و در این راستا، برای تشریح فرآیند رفع آلودگی حرارتی گرافیت تابش دیده‌ای که به دلیل بروز نقص و پیچش ناشی از اصابت تابش به آن، مستعد انتشار انرژی Wigner است، آنالیز ترمودینامیکی با استفاده از کد TERRA انجام شد. نتایج نشان می‌دهد که افت آلودگی پرتویی ضایعات گرافیت تابش دیده و پارامترهای مختلف فرآیند رفع آلودگی آن، به آزادسازی انرژی Wigner وابسته است.

کلیدواژه‌ها: رفع آلودگی پلاسمایی، ضایعات گرافیت تابش دیده، رادیوایزوتوپ Cs^{۱۳۷}، انرژی Wigner، کد TERRA

Thermodynamic analysis of plasma decontamination process of ^{137}Cs radioisotope from irradiated graphite

Mohammad Nikoosefat*[1], Ardeshir Bagheri[1], Hamid Reza Shakur[1], Zahra Shahbazirad[2], Nabi Javadi[3]

1- Nuclear Physics Group, Faculty of Basic Science, Comprehensive University of Imam Hossein, Tehran, Iran.

2- Faculty of Nuclear Engineering, University of Shahid Beheshti, Tehran, Iran

3- Chemistry Group, Faculty of Basic Science, Comprehensive University of Imam Hossein,Tehran, Iran.

Abstract:

^{137}Cs radioisotope is one of the most challenging nuclear contaminations. During the operation of graphite-fuel HTGR (High-Temperature Gas-cooled Reactor) nuclear reactors, Graphite used as a neutron moderator, is irradiated and has a variety of contaminants (such as ^{137}Cs, ^{60}Co and ^{90}Sr) and due to industrial and environmental considerations, decontamination of irradiated graphite is very important. In this study, the decontamination of ^{137}Cs trapped in graphite pores of graphite-fuel (HTGR) nuclear reactors has been analyzed. The proposed method for decontamination of irradiated graphite surfaces is the thermal plasma-sputtering method with Argon gas, which are used to reduce the risk of radioactive graphite waste and in this regard, the thermodynamic analysis was performed using the TERRA code to describe the process of decontamination of irradiated graphite, which is prone to realase Wigner energy due to defects and torsion caused by radiation. The results show that the decrease in radiation pollution of irradiated graphite waste and various parameters of its decontamination process depend on the release of Wigner energy.

Keywords: Plasma decontamination; Irradiated graphite waste; ^{137}Cs radioisotope, Wigner Energy, TERRA code.

۱. مقدمه

به همان اندازه که راه‌اندازی نیروگاه‌های هسته‌ای و سایت‌های هسته‌ای جدید اهمیت دارد، از کار اندازی[۱] و اسقاط تجهیزات هسته‌ای قدیمی و فرسوده نیز دارای اهمیت است. پس از سپری شدن عمر مفید تأسیسات هسته‌ای، ضروری است که اقداماتی انجام شود تا این تأسیسات از حالت بهره‌برداری خارج شوند و درنهایت، محل این تأسیسات بدون محدودیت مورد استفاده‌ی جدید قرار گیرد [۱، ۲]. در سال ۲۰۰۸، آژانس بین‌المللی انرژی اتمی گزارشی منتشر کرد که در بخشی از آن، آمده است که رفع آلودگی خشک پلاسمایی، در از کار اندازی تجهیزات هسته‌ای بسیار مؤثر است[۳].

۱-۱) نقش گرافیت در راکتورهای هسته‌ای HTGR[۲]:

راکتور هسته‌ای HTGR، یک راکتور هسته‌ای نسل چهارم است که از کند کننده‌ی نوترونی گرافیت، چرخه‌ی سوخت اورانیوم و خنک‌کننده‌ی هلیوم استفاده می‌کند. در طی عملکرد راکتور هسته‌ای HTGR، گرافیت تحت تابش قرار گرفته و آلودگی‌های هسته‌ای مختلفی در داخل منافذ آن به دام می‌افتد؛ به همین دلیل پس از طی مدتی، گرافیت خاصیت اصلی خود را از دست داده و نیاز به پاک‌سازی و یا تعویض دارد. علاوه بر این، پس از سپری شدن عمر مفید راکتور HTGRو در طی فرآیند اسقاط آن، به جهت رعایت ملاحظات پرتویی و زیست‌محیطی، گرافیت تابش دیده[۳]، در ابتدا باید رفع آلودگی شده و سپس اسقاط شود[۴و۵]. همچنین در برخی از تأسیسات هسته‌ای ایالات‌متحده و روسیه حوادثی رخ داده است که در آن، آلودگی پرتویی موجود در گرافیت، مشکلاتی را به وجود آورده است و این امر نشان می‌دهد که یافتن راه‌حلی برای این مشکل، امری اجتناب‌ناپذیر است[۶]. در سال ۲۰۲۰، محققان چینی در رابطه با پاک‌سازی سطوح گرافیت با استفاده از پلاسما پژوهشی انجام دادند که در آن، فاکتورهای مربوط به توانایی پلاسما در رفع آلودگی عوامل پرتوزا از سطوح گرافیت مورد بررسی قرار گرفت و در آن اذعان شده است که روش پلاسمایی بسیار مؤثر، کم‌هزینه و امیدوارکننده است[۷]. پس از اسقاط کانال‌های گرافیت – اورانیوم در راکتورهای هسته‌ای HTGR، جمع‌آوری و مدیریت گرافیت تابش دیده‌ی انباشت شده در قلب راکتور خاموش شده، یک مشکل و معضل اساسی است. زباله‌های پرتوزای گرافیت (GRW[۴]) از سایر انواع زباله‌های پرتوزا کاملاً متمایز هستند، بنابراین اقدامات ویژه‌ای برای امحا و مدیریت آن‌ها مورد نیاز است؛ بدین صورت که اولاً، در حین عملکرد راکتور، گرافیت قابل تجدید و تعویض نیست (به‌استثنای راکتورهایی که از گرافیت‌های تجدید پذیر[۵] استفاده می‌کنند) و بنابراین گرافیت آن‌ها در معرض تابش شدید نوترون قرار می‌گیرد[۸]؛ دوماً، راکتورهایی که از گرافیت استفاده می‌کنند باید دارای یک ساختار منحصربه‌فرد باشند؛ چراکه تغییرات تابشی - القایی در شبکه‌ی گرافیت، منجر به ایجاد برخی تغییرات در خصوصیات فیزیکی و مکانیکی گرافیت می‌شود[۹]؛ و سوماً، پس از مدت‌زمان زیادی از عملکرد راکتور، گرافیت خاصیت‌های اصلی خود را از دست می‌دهد به‌طوری‌که دیگر قابل استفاده نیست. همه‌ی این مسائل، انگیزه‌ای برای یافتن و بهره‌گیری از بهترین روش‌ها و ابزارها به‌منظور پردازش گرافیت تابش دیده با هدف کاهش حجم پسماند پرتوزا و کاهش هزینه‌ی امحای نهایی پسماند می‌باشد. در مرجع[۱۰] نتایج مطالعه‌ی آلودگی‌های خاصی[۶] در راکتورهای گرافیت-اورانیوم ارائه شده است. این آلودگی‌های پرتوزا عبارت‌اند از رادیوایزوتوپ‌های فعال ^{3}H، ^{14}C، ^{55}Fe، ^{60}Co و غیره؛ و شکافت هسته‌هایی از قبیل ^{90}Sr، ^{106}Ru، ^{125}Sb، ^{133}Ba، ^{137}Cs، ^{154}Eu، ^{155}Eu و عناصر فرا اورانیومی ^{241}Am، ^{243}Am، ^{244}Cm و غیره. دراین‌بین، فعال‌ترین رادیوایزوتوپ‌ها عبارت‌اند از ^{137}Cs، ^{60}Co، ^{90}Sr، ^{36}Cl ^{3}H [۱۱و۱۲]. هزینه‌ی امحای گرافیت تابش دیده بسیار وابسته به کلاس آلودگی آن (سطح بالا، سطح متوسط و سطح پایین) است. طبقه‌بندی زباله‌های پرتوزا توسط پرتوزایی کلی رادیونوکلئیدهای موجود در آن تعیین می‌شود که هرچه کلاس پرتوزایی آن بالاتر باشد، امحای نهایی پسماند نیازمند تمهیدات بیشتر و صرف هزینه‌ی بیشتر نیز خواهد بود و بنابراین به‌عنوان یکی از نتایج فرآیند رفع آلودگی، کاهش کلاس پرتوزایی گرافیت تابش دیده، از

---

[1] Decommissioning
[2] High-Temperature Gas-cooled Reactor
[3] Irradiated Nuclear Graphite (I-Graphite)
[4] Graphite Radioactive Waste
[5] Graphite Sleeves
[6] Bushing Contamination

لحاظ زیست‌محیطی و اقتصادی بسیار مقرون‌به‌صرفه است[۱۳]. در سال ۲۰۱۶، پروژه بین‌المللی GRAPA[1] با مشارکت کشورهای مختلف توسط IAEA[2] انجام شد که محتوای آن در مورد رویکردهای پیش رو و نوین برای پردازش گرافیت تابش دیده است[۱۴].

اصلی‌ترین رویکردهای مطالعاتی پیش رو در مورد گرافیت استفاده شده در صنایع هسته‌ای به ترتیب عبارت‌اند از: بیان خصوصیات گرافیت تابش دیده (ترکیبات رادیونوکلئیدی، شبیه‌سازی فرآیندهای پرتوزایی گرافیت)، اندازه‌گیری رادیونوکلئیدها (بررسی امکان استفاده از روش‌های همبستگی ایزوتوپی، تعیین پرتوزایی ویژه‌ی گرافیت تابش دیده)، پردازش گرافیت (احتراق، پردازش با پلاسما، پرس ایزوستاتیک داغ، گرمایش ماکروویو، بسته‌بندی ماتریسی و رفع آلودگی شیمیایی)، تعیین نرخ پاک‌سازی رادیونوکلئیدها، بررسی روند آزادسازی انرژی ویگنر، اصلاح و بهبود تکنیک‌های شناخته شده‌ی تجربی و درنهایت، بسته‌بندی، ذخیره و دفع گرافیت (ارزیابی امکان خرد کردن بلوک‌های گرافیت یا امحای آن‌ها بدون تکه‌تکه کردن، توسعه‌ی ظروف مخصوص برای بسته‌بندی ضایعات گرافیت، دفع دائمی یا ذخیره‌ی موقتی گرافیت)[۱۵ و ۱۶]. دانش مدرن، روش‌های متنوعی را برای پردازش زباله‌های پرتوزای گرافیت (GRW) ارائه می‌دهد: شیشه‌ای کردن[3][۱۷]، آنِدش[4] در الکترولیت غنی از اکسیژن[۱۸]، عملیات ترموشیمیایی[۱۹] و احتراق و تجزیه در محیط اکسید کننده‌ی حرارتی[۲۰]. بسیاری از روش‌های ذکرشده، حجم زیادی از زباله‌های پرتوزای گرافیت (GRW) و آمیزه‌ای از ترکیبات پرتوزا را ایجاد می‌نمایند و بنابراین مدیریت و جمع‌آوری این پسماندها نیازمند استفاده از تجهیزات بیشتر و تکمیلی (متراکم کننده‌ی[5] حبابی، نظیف کننده[6] و غیره) است[۱۱و۱۳] دراین‌بین، کارایی روش‌های حرارتی پردازش گرافیت تابش دیده در گازهای نجیب فشار اتمسفری در مراجع[۲۴-۲۱] ارائه شده است و در آن‌ها اشاره شده که روش پلاسمایی برای رفع آلودگی سزیم-۱۳۷ از سطوح گرافیت بسیار مؤثر است.

ناپولیو[7] و همکاران[۲۵] در پژوهشی تلاش کردند تا حالت‌های شیمیایی محصولات شکافت و فعال‌سازی نوترونی در گرافیت تابش دیده را تخمین بزنند؛ بااین‌حال، در مورد گرافیت هنوز مکانیسم تشکیل پیوندهای شیمیایی بین رادیونوکلئیدهای مختلف به‌طور کامل توسط محققان بررسی نشده است. همچنین نشان داده شده است که در حین فعالیت راکتور، رادیونوکلئیدهای سزیم، کبالت و استرانسیوم به شکل فلزی هستند و با یکدیگر و نیز با مولکول‌های گرافیت، اتصال مولکولی ندارند و در منافذ گرافیت به دام افتاده‌اند و همین عدم اتصال مولکولی، انگیزه و مبنای فیزیکی مناسبی برای محققان است تا فرآیند رفع آلودگی را به روش پلاسما-اسپاترینگ[8] مورد بررسی قرار دهند؛ زیرا مولکول‌های آلودگی با مولکول‌های بستر گرافیتی، پیوند و رسوب شیمیایی ندارند و بنابراین نیازی نیست که برای رفع آلودگی، از روش پلاسما-شیمیایی استفاده نماییم[۲۶،۲۷]. پردازش پلاسمایی یکی از روش‌های امیدبخش برای رفع آلودگی گرافیت تابش دیده در صنعت هسته‌ای است و لذا شبیه‌سازی و بررسی ریاضیاتی این فرآیند، به ما این امکان را می‌دهد تا علاوه بر تحلیل دقیق عملیات رفع آلودگی، میزان مخاطرات پرتویی احتمالی در طی اقدامات تجربی حقیقی را به حداقل برسانیم و درنتیجه، روند رفع آلودگی بهبود یافته و بهینه خواهد شد[۲۸].

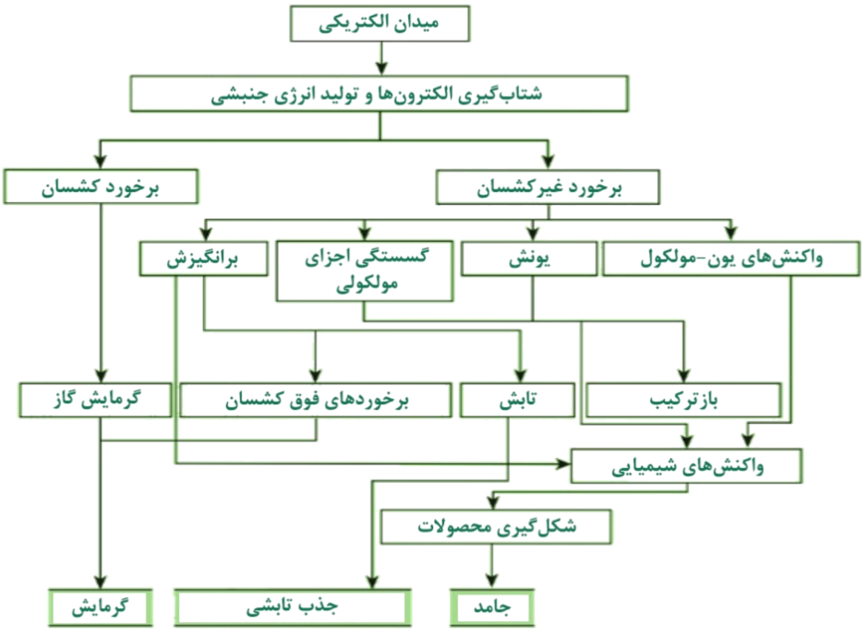
۲-۱) اصول رفع آلودگی از سطوح به روش پلاسما:

همان‌طور که در شکل ۱ مشاهده می‌شود، رفع آلودگی سطوح خارجی اجسام با استفاده از پلاسما در حالت کلی بدین‌صورت است که پس از شناسایی منطقه آلوده شده، با توجه به جنس سطح، نوع و شدت آلودگی و وسعت پخش شدن آن، از یک مولد پلاسمایی بهینه شده (که بتواند متناسب با آلودگی، پلاسمایی تولید کند که به بهترین شکل با مولکول‌های آلاینده درگیر شود و آن‌ها را از سطح جدا نماید) به جهت تاباندن پلاسما به سطح استفاده می‌شود. پس از انجام فعل‌وانفعالات فیزیکی و شیمیایی موردنظر و تولید گونه‌های فرار و به عبارتی جداسازی آلودگی از سطح (رفع

---

[1] Irradiated Graphite Processing Approaches
[2] International Atomic Energy Agency
[3] Vitrification
[4] Anodizing
[5] Condenser
[6] Scrubber
[7] Napoleau
[8] Sputtering

آلودگی)، محصولات تولید شده توسط واحد مکنده، جمع‌آوری شده و در یک محفظه امن به جهت استفاده در فعالیت‌های بعدی نگهداری می‌شود. درکل، با استفاده از مولدهای پلاسمایی، فرآیند رفع آلودگی مرطوب به فرآیند رفع آلودگی خشک تغییر می‌یابد؛ فرآیندی که تمرکز بسیاری روی آن بوده و در صنعت از اهمیت ویژه‌ای برخوردار است. شایان‌ذکر است که پلاسمای غیرحرارتی فشار اتمسفری، توسط دمای الکترونی بالا و دمای پایین سایر اجرای آن مشخص می‌شود[۲۹].



شکل ۱. فلوچارت رفع آلودگی با استفاده از پلاسما، از اعمال میدان الکتریکی به گاز (در ابتدا) تا جامد سازی و دفن نهایی آلودگی (در انتها)[۳۰].

۳-۱)روش پلاسما- اسپاترینگ در رفع آلودگی از سطوح:

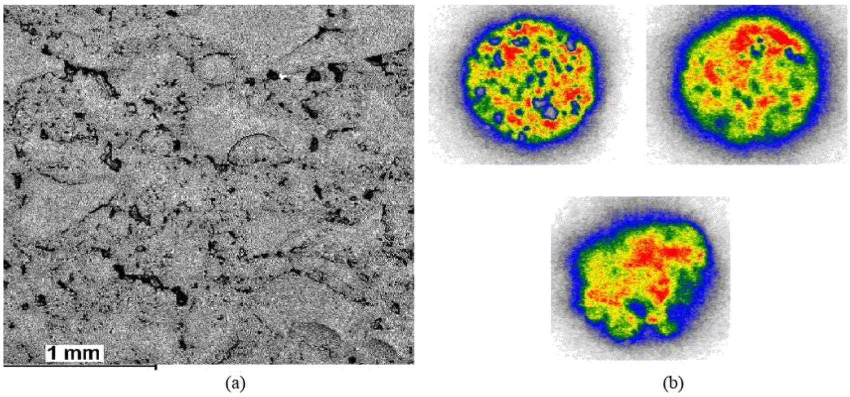
یکی از مزایای مهم پلاسما در پردازش سطح، نقش عمده آن در به حداقل رساندن اثرات نامطلوب فعالیت‌های صنعتی بر محیطزیست است. بسیاری از پدیده‌های فیزیکی و شیمیایی حتی در ساده‌ترین حالت‌های لایه‌برداری با پلاسما نقش دارند. یکی از مکانیسم‌های لایه‌برداری با استفاده از پلاسما، روش لایه‌برداری به روش اسپاترینگ (لکه‌دار کردن) است. در روش لکه‌دار کردن، یون‌های مثبت موجود در سراسر غلاف پلاسمایی[۱] که به علت فرار ذاتی به‌طرف مرزهای پلاسما شتاب می‌گیرند، با انرژی جنبشی بالا به بستر آلودگی اصابت می‌کنند و مقداری از انرژی آن‌ها به اتم‌های سطح آلودگی منتقل می‌شود که منجر به تبخیر آلودگی خواهد شد. این فرآیند از مکانیسم‌های دیگر متمایز است زیرا سازوکار آن مکانیکی[۲] (و نه شیمیایی) است، یعنی تنها با اعمال نیرو و انتقال جرم و انرژی به مولکول‌های سطح، شرایط فرار آن‌ها مهیا می‌شود [۳۱]. در این پژوهش، رفع آلودگی ^{137}Cs از گرافیت تابش دیده با استفاده از روش پلاسما-اسپاترینگ مورد بررسی و تحلیل قرار می‌گیرد که در آن، فرآیندهای ترمودینامیکی انتقال گرما و جرم در طی اندرکنش و تأثیر پلاسما بر سطح گرافیت تابش دیده، تجزیه‌وتحلیل می‌شود.

۲. روش کار

۲-۱) انتخاب نمونه‌ی گرافیت تابش دیده‌ی مرجع:

[1] Plasma Sheath
[2] Mechanical Damage

در مرجع[۱۳]، یک نمونه‌ی گرافیتی[1] از راکتور هسته‌ای گرافیت – اورانیوم سورسک ناحیه تامسک کشور روسیه[2] مورد آنالیز تجربی قرار گرفته است. این نمونه‌ی گرافیتی به مدت ۹ سال در قلب راکتور تحت تابش قرار گرفته و با استفاده از روش اشباع مایع[3]، تخلخل[4] کل این گرافیت تابش دیده در حدود ۲۵-۲۳ درصد به دست آمده است و در آن، اکتیویته‌ی ویژه‌ی[5] ^{137}Cs، ^{60}Co و ^{90}Sr به ترتیب برابر با ۲۴ Bq/gr، ۱۵ Bq/gr و ۳,۳ Bq/gr می‌باشد. سطوح نمونه‌های گرافیت با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM[6]) موردمطالعه قرار گرفته است. همچنین از میکروسکوپ انتقالی JEM-2100 و میکروسکوپ روبشی Jeol JSM-6480LV به‌منظور حصول اطلاعات در مورد ناهمگنی شیمیایی، نقص‌ها و ساختار شبکه‌ای نمونه‌های گرافیت استفاده شده است. تصاویر به‌دست‌آمده در شکل ۲ ارائه شده است [۱۳]. این نمونه‌ی گرافیتی که در سال ۲۰۱۹ توسط محققان کشور روسیه مورد بررسی تجربی قرار گرفته است، به‌عنوان نمونه‌ی مرجع به آنالیز ترمودینامیکی در این پژوهش مورد استفاده قرار می‌گیرد.



شکل ۲. الف- تصاویر SEM از گرافیت پرتوزای صیقل داده شده؛ ب- تصاویر اتورادیوگرافی از گرافیت پرتوزا که در آن قرمز، آبی و سفید به ترتیب نشان‌دهنده‌ی اکتیویته‌ی زیاد، متوسط و کم هستند[۱۳].

در شکل ۲-الف، تصویر SEM گرافیت تابش دیده ارائه شده است که در آن، رنگ خاکستری نشان‌دهنده‌ی گرافیت تابش دیده، رنگ مشکی نشان‌دهنده‌ی منافذ و رنگ سفید نشان‌دهنده‌ی ناخالصی‌های جامد غیر کربنی است. نقاط سفید، مؤید حضور محصولات شکافت و محصولات حاصل از فعال‌سازی نوترونی در سطح گرافیت است. البته آلاینده‌های پرتوزا می‌توانند در درون منافذ گرافیت قرار گرفته و در تصویر SEM نمایان نشوند. سپس به‌منظور دسترسی به تصاویر واضح‌تری از آلودگی پرتوزا، تصویربرداری اتورادیوگرافی دیجیتال از سطح گرافیت تابش دیده، انجام شده که در شکل ۲-ب ارائه شده است. تکنیک ذکر شده، به محققان این قابلیت را می‌دهد که توزیع فضایی منابع تابشی α، β و γ را با وضوح

[1] Sampling from Graphite Stack
[2] Uranium-Ggraphite Reactor in Seversk, Tomsk Region, Russia
[3] Liquid-Saturation Method
[4] Porosity
[5] Specific Activity
[6] Scanning Electron Microscope

و دقت ۵۰-۴۰ میکرون به دست آورند. در شکل ۲-ب، نقاط قرمز، آبی و سفید به ترتیب نشان‌دهنده‌ی اکتیویته زیاد، متوسط و کم است. نتایج مطالعات اتورادیوگرافی نشان می‌دهد که تمام نمونه‌های گرافیت تابش دیده (مستقل از اکتیویته‌ی آن‌ها) به‌شدت دارای توزیع فضایی ناهمگنی از رادیونوکلئیدها هستند. دلایل این پدیده بدین صورت توضیح داده می‌شود که اولاً راکتورهای هسته‌ای مختلف دارای تاریخچه‌های خدماتی و عملکردی متفاوتی هستند و دوماً در برخی موارد، رادیونوکلئیدهای مختلف غیرکربنی بر روی سطوح گرافیت تمرکز بیشتری دارند؛ اما در اغلب موارد، خصوصیات مشاهده شده از توزیع فضایی رادیونوکلئیدها این حقیقت را تأیید می‌کند که قسمت بیشتری از رادیونوکلئیدهای غیرکربنی در درون فضاهای متخلخل گرافیت قرار گرفته‌اند. همچنین مشاهده شده است که تقریباً تمام رادیونوکلئیدهای موجود در سطوح، با روش‌های حرارتی قابل پاک شدن هستند؛ اما در مورد رادیونوکلئیدهای گیر افتاده در منافذ نمونه‌های گرافیت، درصد رفع آلودگی تا حدودی کمتر از سطوح است. البته ذکر این نکته ضروری است که در مورد امحای نهایی زباله‌های پرتوزای گرافیت، رفع کامل و دقیقاً صددرصدی آلودگی‌های آن‌ها الزاماً مورد نیاز نیست و هدف اصلی فعالیت‌های رفع آلودگی، کاهش حداکثری میزان رادیونوکلئیدهای موجود در ضایعات گرافیت است (کاهش نرخ پرتوزایی)[۱۳،۳۲].

دلایل متعددی برای ایجاد آلودگی عمقی در گرافیت راکتورهای HTGR وجود دارد: انتشارهای خورنده[1]، تشکیل لایه‌های اکسیدی و غیره. این نوع آلودگی به دلیل نفوذ محصولات شکافت به درون منافذ گرافیت (در حین فعالیت طبیعی آن‌ها در قلب راکتور) یا به دلیل از بین رفتن روکش میله‌های سوخت، ایجاد می‌شود. در ضمن، در درون سلول‌های قلب راکتور، به خاطر تابش نوترونی و برخوردهایی که انجام می‌شود، نرخ و ضریب پخش آلودگی افزایش می‌یابد. رادیونوکلئیدها، ناخالصی‌هایی هستند که می‌توانند به عمق گرافیت نفوذ کرده و در منافذ آن پخش شوند و نیز می‌دانیم که یکی از چالش‌های تکنولوژی، رفع آلودگی از مواد متخلخل است. فرآیند رفع آلودگی نیازمند پاک‌سازی تقریباً کامل مواد آلاینده از تمامی منافذ گرافیت متخلخل است و بدین منظور، می‌توان از پلاسمای تخلیه‌ی قوسی و پلاسمای فشار اتمسفری برای پردازش گرافیت تابش دیده استفاده نمود. به‌منظور کاهش فعالیت ویژه‌ی گرافیت تابش دیده و کاهش مخاطرات پرتویی آن، توصیه می‌شود عملیات پردازش حرارتی آن در محیط گازهای بی‌اثر انجام شود. هنگامی‌که یک جریان گازی پلاسما، با سطح گرافیت تماس برقرار می‌کند، گرافیت گرم می‌شود و وقتی‌که سطح، به نقطه‌ی جوش آلاینده‌های پرتوزا برسد، ذوب و سپس تبخیر یا تصعید رادیونوکلئیدها تحت شرایط ترمودینامیکی خاصی امکان‌پذیر است. در اغلب یافته‌های تجربی سایر محققان، نتایج تجزیه‌وتحلیل تصاویر SEM نشان می‌دهد که گرافیت، دارای ساختار متخلخل یکپارچه است و اغلب آلاینده‌های پرتوزای غیرکربنی در داخل منافذ آن قرار می‌گیرند.

۲-۲) فرآیند آنالیز ترمودینامیکی:

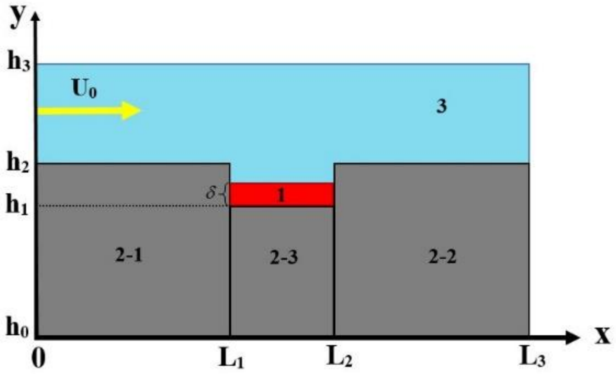
در این پژوهش به‌منظور آنالیز ترمودینامیکی فرآیند رفع آلودگی گرافیت، هندسه‌ی مسئله را به‌گونه‌ای در نظر می‌گیریم که رادیونوکلئید ^{137}Cs به شکل یک لایه‌ی نازک در روی سطح یکی از منافذ گرافیت قرار گرفته باشد. همچنین تصور ما بر این است که در طی فرآیند مدل‌سازی ریاضیاتی، آلاینده‌های پرتویی ^{137}Cs، ^{60}Co و ^{90}Sr با یکدیگر مخلوط نمی‌شوند تا علاوه بر ساده‌تر شدن فرم معادلات دیفرانسیل، به حالت حقیقی مسئله نیز نزدیک‌تر باشیم[۱۱ و ۱۳]. در مراجع[۸، ۳۳-۳۶] تلاش‌هایی برای مدل‌سازی ریاضیاتی فرآیند پردازش حرارتی گرافیت تابش دیده ارائه شده و در تعدادی از آن‌ها، انتشار انرژی ذخیره شده‌ی ویگنر نیز در نظر گرفته شده است. در هندسه‌ی پیشنهادی ما برای تحلیل مسئله‌ی موردنظر در این پژوهش، فرض بر این است که یک جریان پلاسمای فشار اتمسفری (با گاز تغذیه آرگون) در امتداد نمونه‌ی گرافیتی که دارای سطح متخلخل است حرکت می‌کند (شکل ۳).

[1] Corrosion

شکل ۳. هندسه‌ی پیشنهادی ما برای تحلیل مسئله‌ی موردنظر در این پژوهش ؛ ۱- لایه‌ی آلودگی پرتوزای ^{137}Cs ، ۲- گرافیت (که به سه قسمت تقسیم شده است)، ۳- ناحیه‌ی پلاسمایی.

۳. نتایج به‌دست آمده

۳-۱) تحلیل ترمودینامیکی:

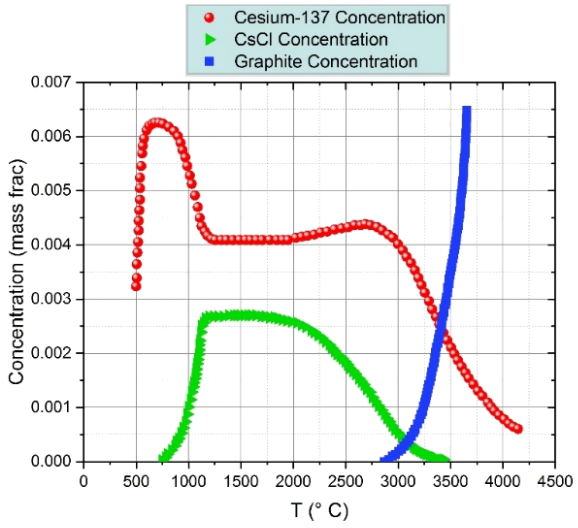


فرآیند رفع آلودگی پلاسمایی گرافیت تابش دیده، مؤید تأثیر جریان پلاسما بر سطح گرافیت تحت پردازش است که منجر به تصعید آلودگی‌های پرتویی به دام افتاده در گرافیت می‌شود. بدیهی است که برای کاهش انتشار GRW ثانویه در طی عملیات رفع آلودگی پلاسمایی گرافیت، از گازهای تغذیه‌ی بی‌اثر آرگون به‌عنوان حامل‌های گرما استفاده کنیم. به دلیل این‌که گرافیت دارای رادیونوکلیدهای مختلف است، پس از تابش پلاسما به آن، امکان تولید ترکیبات شیمیایی متنوعی در محیط گرافیت وجود دارد. محصولات پرتوزای حاصل از واکنش‌های شیمیایی، دارای خصوصیات شیمیایی و فیزیکی مختلفی هستند. تثبیت و عدم تحرک این محصولات جانبی به مجموعه‌ای از ابزارها و روش‌ها نیاز دارد. در این مورد، هنگامی‌که گرافیت تابش دیده تحت اثر جریان پلاسمای گازهای نجیب قرار می‌گیرد، می‌توانیم از ترکیبات شیمیایی شکل گرفته برآورد نسبتاً خوبی داشته باشیم[۱۱، ۱۳]. بدین منظور، در این پژوهش از بسته‌ی نرم‌افزاری TERRA برای مدل‌سازی و تحلیل ترمودینامیکی واکنش‌ها استفاده شد که قابلیت‌های ورژن اصلی این بسته‌ی نرم‌افزاری در مراجع[۳۷-۴۲] ذکر شده است. برای نزدیکی بیشتر به آنالیزهای حقیقی تجربی که توسط سایر محققان انجام شده است[۱۱، ۱۳، ۲۳، ۲۸، ۳۵] در محاسبات فرض کردیم که میزان کربن (گرافیت) بسیار بیشتر از مقدار رادیونوکلئیدهای فعال است؛ بدین‌صورت که در سلول واحد[1]، ذرات را شامل آمیزه‌ای از ۹۶ درصد کربن، ۳ درصد ^{137}Cs و ۱ درصد ^{36}Cl در نظر گرفتیم که در ادامه، سلول واحد توسط جریان گاز آرگون (در فشار اتمسفر و محدوده دمایی تا حداکثر ۳۰۰۰ درجه سانتی‌گراد) بمباران شد و مدت‌زمان این فرآیند، ۵ دقیقه (زمان پیش‌فرض) در نظر گرفته شد. همچنین با توجه به شعاع اتمی، جرم مولی و چگالی ^{137}Cs که به ترتیب عبارت‌اند از ۲۵۶ pm، ۱۳۲٫۹ g/mol و ۱٫۸۷ gr/cm^3 و نیز با توجه به این‌که حداکثر مساحت سطح باز در منافذ گرافیت برابر با ۱ mm^2 است و با توجه به بررسی تحقیقات سایر پژوهشگران، به جهت نزدیک بودن

[1] Unit Cell

به حالت‌های حقیقی، مقدار ^{137}Cs یک‌بار ۱۲ µgr و بار دیگر برابر با ۶۰µgr در نظر گرفته شد. نتایج محاسبات در شکل (۴) رسم شده است و داده‌ها شامل آرگون (گاز تغذیه‌ی پلاسما) نیست. محتمل‌ترین اشکال مواد شیمیایی برای رادیونوکلئیدهای موجود در گرافیت پرتودیده، کلریدها و هیدریدها هستند و این امر به دلیل وجود آلاینده‌های کلر (^{36}Cl) و تریتیوم (^{3}H) است[۱۱].

نتایج نشان می‌دهد که در محدوده‌ی دمایی ۵۰۰ تا ۲۰۰۰ درجه‌ی سانتی‌گراد، ساختارهای شامل ^{137}Cs به‌صورت کلرید هستند ($SrCl_2$،$SrCl$ و $CsCl$). شکل ۴ نشان می‌دهد که می‌توان از طریق تغییر دمای جرم متوسط پلاسما، تبخیر انتخابی (تصعید) رادیونوکلیدها که ناشی از اندرکنش جریان پلاسما با گرافیت تابش دیده است را ساماندهی و مدیریت نمود (این کار باعث کاهش اکتیویته‌ی GRW می‌شود). به‌عنوان‌مثال، در محدوده‌ی دمایی از ۵۰۰ تا ۳۰۰۰ درجه سانتی‌گراد و در فشار تقریباً یک اتمسفر، مشاهده می‌شود که تبخیر ^{137}Cs اتفاق می‌افتد. نتایج نشان می‌دهد وقتی‌که دمای جریان پلاسمای تابیده شده به کربن (گرافیت) در حدود ۳۰۰۰ درجه سانتی‌گراد باشد، کربن شروع به تبخیر می‌کند؛ بنابراین، فرآیند پردازش و تصفیه‌ی گرافیت با استفاده از تابش پلاسما، از طریق تغییر در دمای جریان پلاسما امکان حذف و تصعید انتخابی رادیونوکلئیدها از سطح گرافیت را برای محققان فراهم می‌نماید.



شکل ۴. تغییرات غلظت ^{137}Cs، CsCl و گرافیت برحسب دما در طی فرآیند تصفیه و خالص‌سازی گرافیت تابش دیده‌ای که تحت اندرکنش با پلاسمای فشار اتمسفری (دارای گاز تغذیه‌ی آرگون) قرار گرفته است؛ به‌دست‌آمده از کد TERRA.

نمودارهای رسم شده در شکل ۴ نشان می‌دهد که در فرآیند رفع آلودگی پلاسمایی گرافیت تابش دیده و در محدوده‌ی وسیعی از دما، رادیونوکلئید^{137}Cs دارای غلظت جرم بالایی است و بنابراین آلودگی بسیار مهمی می‌باشد و این موضوع دلیل دیگری است برای این‌که در این پژوهش از بین همه‌ی رادیونوکلئیدهای آلاینده‌ی گرافیت، محاسبات را برای^{137}Cs انجام دهیم. نتیجه‌ی مهم دیگری که از شکل ۴ به دست می‌آید این است که تبخیر گرافیت تقریباً از دمای ۳۰۰۰ درجه سانتی‌گراد شروع می‌شود و بنابراین درصورتی‌که عدم ایجاد آسیب به ساختار گرافیت مدنظر باشد، دمای جریان پلاسمای مورد استفاده، نباید از ۳۰۰۰ درجه سانتی‌گراد تجاوز نماید. در شکل ۴، کسر جرمی یعنی جرم تبخیر شده تقسیم بر جرم اولیه (مقدار ماده‌ی تبخیر شده تقسیم بر مقدار ماده‌ی اولیه).

۲-۳) مدل‌سازی ترمودینامیکی فرآیند رفع آلودگی پلاسمایی گرافیت تابش دیده:

با توجه به شکل ۳، در هندسه‌ی در نظر گرفته شده برای انجام تحلیل محاسباتی، سرعت جریان پلاسما در ورودی محدوده‌ی محاسباتی مورد نظر (با ارتفاع $|h_3 - h_2|$ بر روی سطح گرافیت) برابر با u_0 است. همچنین فرض بر این است که ابعاد عرضی و طولی کل سلول محاسباتی مورد نظر ما، بسیار بیشتر از ضخامت آلودگی پرتوزای ^{137}Cs (δ_{Cs}) است. سطح گرافیت به دلیل تماس با جریان پلاسما و انتقال گرما، گرم می‌شود. برای شبیه‌سازی فرآیندهای انتقال گرما و جرم ^{137}Cs موجود در منافذ گرافیت، معادلات دیفرانسیل انتقال حرارت آن‌ها که شامل معادلات ۱ تا ۴ هستند را در مختصات دکارتی حل می‌کنیم. در اینجا جهت مثبت محور x، در امتداد بردار سرعت u_0 (برای جریان پلاسما) فرض می‌شود:

$$c_1\rho_1\frac{\partial T_1}{\partial t} = \lambda_1\left(\frac{\partial^2 T_1}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_1}{\partial y^2}\right), h_1 < y < h_1 + \delta, L_1 < x < L_2 \quad (۱)$$

$$c_2\rho_2\frac{\partial T_2}{\partial t} = \lambda_2\left(\frac{\partial^2 T_2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_2}{\partial y^2}\right) + Q_{Wig}, \quad (۲)$$

$$0 < x < L_1, h_0 < y < h_2; L_1 < x < L_2, h_0 < y < h_1; L_2 < x < L_3, h_0 < y < h_2$$

$$c_3\rho_3\frac{\partial T_3}{\partial t} = \lambda_3\left(\frac{\partial^2 T_3}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_3}{\partial y^2}\right) - c_3\rho_3 u\left(\frac{\partial T_3}{\partial x} + \frac{\partial T_3}{\partial y}\right), \quad (۳)$$

$$L_1 < x < L_2, h_1 + \delta < y < h_2; 0 < x < L_3, h_2 < y < h_3$$

$$u = u_0\left(\frac{T_3}{298}\right) \quad (۴)$$

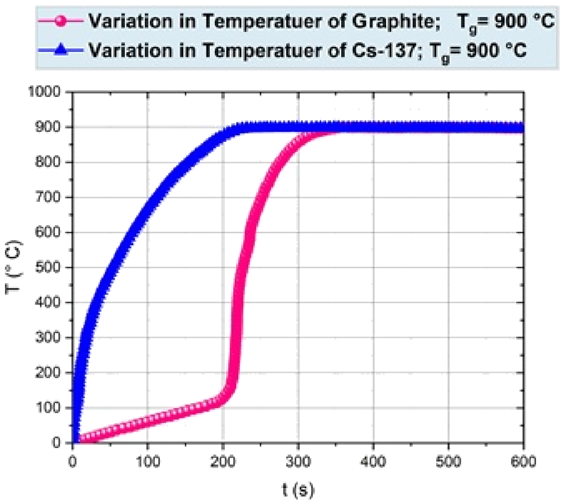
که در آن c_1، ρ_1 و λ_1 به ترتیب عبارت‌اند از ظرفیت گرمایی، چگالی و هدایت گرمایی برای آلودگی رادیواکتیو ^{137}Cs؛ c_2، ρ_2 و λ_2 به ترتیب عبارت‌اند از ظرفیت گرمایی، چگالی و هدایت گرمایی برای گرافیت تابش دیده؛ Q_{Wig} عبارت است از چگالی توان گرمای آزاد شده در اثر تغییرات دمایی نقص‌های گرافیت (آزاد شدن انرژی ذخیره شده‌ی Wigner)؛ c_3، ρ_3 و λ_3 به ترتیب عبارت‌اند از ظرفیت گرمایی، چگالی و هدایت گرمایی برای جریان پلاسما؛ h_0 ارتفاع اولیه‌ی لایه‌ی گرافیت غیرفعال (برابر با صفر)؛ h_1 ارتفاع منفذ گرافیت از مبدأ؛ h_2 ارتفاع سطح فوقانی لایه‌ی گرافیت غیرفعال از مبدأ؛ h_3 ارتفاع مرز جریان پلاسما با محیط؛ L_1 و L_2 مختصات ابتدایی و انتهایی طول لایه‌ی آلودگی پرتوزای ^{137}Cs؛ L_3 طول نمونه‌ی گرافیت؛ T_1، T_2 و T_3 به ترتیب عبارت‌اند از دمای آلودگی پرتوزای ^{137}Cs، دمای گرافیت پرتودیده و دمای حامل‌های گازی پلاسما (در زمان t). سمت راست معادله‌ی (۲) حاوی Q_{Wig} است که نشان‌دهنده‌ی آزاد شدن انرژی ذخیره شده (انرژی Wigner) می‌باشد و در حین پردازش گرافیت تابش دیده، این پارامتر بر موازنه‌ی حرارتی کل سیستم اثرگذار است. همچنین اطلاعات تکمیلی مربوط به انتشار انرژی ویگنر از گرافیت UGR[1] در مرجع[۸] آمده است. محاسبات نشان می‌دهد که درنتیجه‌ی آزاد شدن انرژی ویگنر، دمای گرافیت تابش دیده‌ی تحت گرمایش بی‌دررو، می‌تواند از ۶۰۰ تا ۶۵۰ درجه سانتی‌گراد افزایش یابد[۸].

فرض بر این است که در خلال فرآیند تصعید ناشی از عملکرد جریان پلاسما، آلودگی پرتوزای ^{137}Cs درون منافذ گرافیت تابش دیده، وارد فاز گازی می‌شود. در این مورد، هیچ اندرکنشی بین رادیونوکلئیدهای مختلف در فاز گازی وجود ندارد و این بدین مفهوم است که فرآیند انتشار آلودگی‌ها در جریان گاز را می‌توان به‌عنوان فرآیندهای مستقلی در نظر گرفت که بر یکدیگر تأثیر نمی‌گذارند. همچنین فرآیند انتقال جرم به شرایط ترمودینامیکی و ضرایب نفوذ بستگی دارد که مقادیر آن در[۴۵، ۴۶] آمده است. همچنین پارامترهای ترمودینامیکی آلودگی پرتوزای ^{137}Cs در مرجع[۳۷] ذکر شده است. ازآنجایی‌که تصعید ^{137}Cs پرتوزا منجر به پخش آن در جریان پلاسما می‌شود، حل معادلات فوق، نیازمند تعیین

[1] Uranium-Graphite Reactors

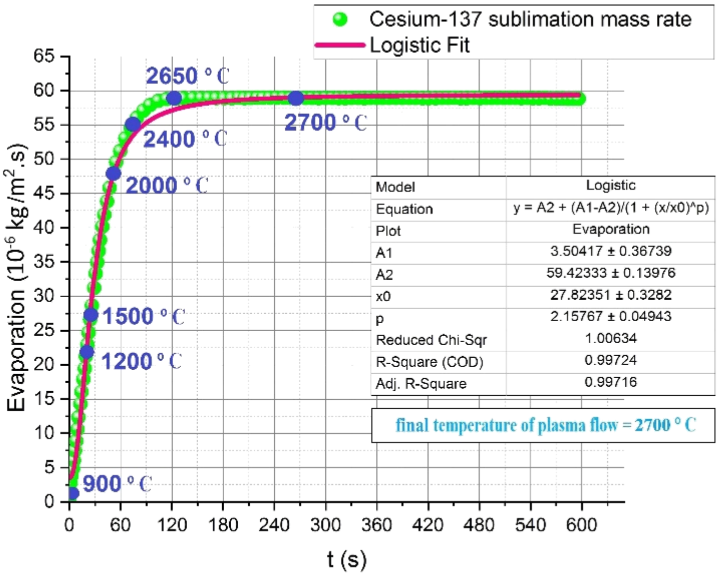
پارامترهای مشخص این فرآیند است و ازآنجایی‌که در این مورد، محاسبه‌ی دقیق پارامترهای پخش دشوار است، مقادیر پارامترهای پخش ^{137}Cs در گازهای آرگون را از مرجع[۳۸] اخذ می‌نماییم. فرض می‌کنیم که در زمان اولیه، دمای کل سیستمی که هنوز تحت تابش پلاسما قرار نگرفته است، یکنواخت و برابر با T_0 باشد ($T_g > T_0$). معادلات ۱ تا ۴ تحت شرایط مرزی مشخص و با استفاده از نرم‌افزار Maple 2020 حل شدند.

در لحظه‌ی تماس جریان پلاسما با سطح گرافیت، گرافیت در تمام طول سلول محاسباتی مورد نظر گرم می‌شود و به‌طورکلی، ازآنجایی‌که ظرفیت گرمایی آلاینده‌های پرتوزای گیر افتاده در منافذ گرافیت، تقریباً نزدیک به یکدیگر است، گرمایش آلودگی‌های پرتوزای موجود در منافذ گرافیت، به‌صورت نسبتاً یکسان انجام می‌شود. فرآیند گرم شدن، امکان تصفیه و رفع آلاینده‌های پرتوزا را از سطح گرافیت تابش دیده و از طریق تغییر مُد جریان پلاسما در محدوده‌ی وسیع دمایی فراهم می‌کند[۳۹]. تغییرات دمای گرافیت برحسب زمان، در ۹۰۰ درجه سانتی‌گراد مورد بررسی قرار گرفت؛ نتایج نشان می‌دهد که در ۲۰۰ ثانیه‌ی اول، تغییرات دمای گرافیت به‌صورت خطی و در طی ۱۰۰ ثانیه بعدی، تغییرات دمای گرافیت به‌صورت تند و نمایی می‌باشد؛ علت این پدیده، این است که در طی ۲۰۰ ثانیه‌ی اول، قسمت عمده‌ای از گرمای داده شده به گرافیت منجر به تغییر ساختار درونی آن و جبران نقص‌های شبکه‌ای می‌شود که درنتیجه‌ی گرم شدن نقص‌های موجود در شبکه‌ی گرافیت، آزاد شدن انرژی ویگنر اتفاق می‌افتد. درنهایت و پس از ۳۰۰ ثانیه از شروع فرآیند، تغییرات دمای گرافیت به حالت اشباع می‌رسد و مهم‌ترین علتش این است که گرمای گرافیت تابش دیده، به آلودگی‌های پرتوزا و جریان گاز پلاسما منتقل می‌شود. در این حالت، افزایش ناگهانی دما، تأثیر بیشتری در نرخ گرم شدن آلودگی‌های رادیواکتیو می‌گذارد و در بین همه‌ی آلاینده‌های پرتوزا، رادیونوکلئید ^{137}Cs به علت ضریب بالای رسانش حرارتی (۳۲,۲۱۰ J/mol.K)، بیشتر از سایر آلودگی‌ها از افزایش ناگهانی دما تأثیرپذیر است[۳۵]؛ بنابراین، در ۲۰۰ ثانیه پس از اندرکنش جریان گاز نجیب با سطح ^{137}Cs، دمای ^{137}Cs در آستانه‌ی اشباع شدن قرار می‌گیرد و به علت افزایش قابلیت تصعید آلاینده‌های پرتوزا و افزایش امکان تخریب ساختار منافذ گرافیت و درنتیجه خروج بهتر آلاینده‌های پرتوزا از منافذ آن، پردازش پلاسمایی گرافیت تابش دیده، در دماهای بالاتر (تا جایی که گرافیت تصعید نشود؛ یعنی ۳۰۰۰ درجه سانتی‌گراد) توصیه می‌شود. نتیجه محاسبات در شکل (۵) ارائه شده است.



شکل ۵. تغییرات دما برحسب زمان در سطح گرافیت و ^{137}Cs در شرایطی که $T_g = 900°C$ و گاز تغذیه‌ی پلاسما، آرگون است. شکستی که در t=200 s برای نمودار گرافیت رخ می‌دهد، ناشی از آزاد شدن انرژی ویگنر می‌باشد.

با توجه به شکل (۵)، انتشار انرژی ویگنر به‌طور هم‌زمان هم بر گرم شدن گرافیت و هم بر گرم شدن ^{137}Cs اثرگذار است، اما ازآنجایی‌که ظرفیت گرمایی کربن برابر با ۸,۵۱ J/mol.K است و نسبت به ظرفیت گرمایی ^{137}Cs (۳۲,۲۱۰ J/mol.K)، تقریباً چهار برابر کمتر می‌باشد، کربن نسبت به ^{137}Cs به انرژی ویگنر حساس‌تر است و بنابراین نمودار تغییرات دمای آن نسبت به نمودار تغییرات دمای ^{137}Cs، شیب تندتری خواهد داشت و این مصداقی است از این تعبیر فیزیکی که در شرایط ترمودینامیکی یکسان، ماده‌ای که ظرفیت گرمایی کمتری دارد نسبت به ماده‌ای که ظرفیت گرمایی بیشتری دارد، شیب تغییرات دمایی تندتری خواهد داشت؛ اما در مورد ^{137}Cs، با این‌که گرمای ویگنر بر روی افزایش دمای آن اثرگذار است، ولی با توجه به ظرفیت گرمایی زیاد ^{137}Cs، مقدار گرمای ویگنر به حدی نیست که در نمودار افزایش دمای ^{137}Cs اثرات گرمای ویگنر مشاهده شود و درنهایت، کل سیستم در ۳۰۰ ثانیه پس از شروع عملیات پردازش حرارتی، به حالت تعادل ترمودینامیکی می‌رسد.



ANOVA

		DF	Sum of Squares	Mean Square	F Value	Prob>F
Evaporation	Regression	4	266502.59072	66625.64768	66205.58579	0
	Residual	98	98.62179	1.00634		
	Uncorrected Total	102	266601.21251			
	Corrected Total	101	35765.15713			

پر مفهوم‌ترین پارامتری که بیانگر بازدهی فرآیند پردازش سطح گرافیت تابش دیده است، نرخ ورود جرم آلودگی پرتوزای i به فاز گازی است (M_i)[۱۲]. شکل (۶) نشان‌دهنده‌ی تغییرات T و M_i برای رادیونوکلئید ^{137}Cs در محدوده‌ی دمایی تا ۲۷۰۰ درجه سانتی‌گراد است. وقتی‌که جریان گازی پلاسما با سطوح منافذ گرافیت تابش دیده، اندرکنش انجام می‌دهد، به علت بروز تغییرات دمایی در سطوح، در نرخ تبخیر ^{137}C تغییراتی رخ می‌دهد. محاسبات نشان می‌دهد که سرعت انتقال جرم، تحت شرایط مرزی که برای پردازش گرافیت انتخاب کرده‌ایم، در محدوده‌ی $10^{-6} kg/(m^2.s) *$ (۲,۵-۶۰) تغییر می‌کند. نکته‌ی مهم قابل‌انتظار، این است که در پردازش پلاسمایی سطوح گرافیت تابش دیده، ترکیبات رادیونوکلئیدی که کمترین گرمای تصعید را داشته باشند، سریع‌تر تبخیر و حذف شوند.

شکل ۶. تغییرات دما و تغییرات نرخ جرم تصعید ^{137}Cs در جریان پلاسمای گاز نجیب (دارای گاز تغذیه‌ی آرگون) برحسب زمان و در شرایطی که دمای پلاسما در مدت‌زمان ۲۷۰ ثانیه و با آهنگ یکنواخت، از ۹۰۰ درجه سانتی‌گراد تا دمای نهایی ۲۷۰۰ درجه سانتی‌گراد افزایش می‌یابد.

در شکل ۶، دیمانسیون محور عمودی (تغییرات نرخ جرم تصعید ^{137}Cs) بر حسب ۱۰$^{-۶}$ $gr/(mm)^2.s$ است که برای بیان بهتر مفهوم فیزیکی، بر حسب معادل آن که ۱۰$^{-۶}$ $kg/m^2.s$ می‌باشد، نمایش داده شده است. به‌طورکلی، از روش رفع آلودگی اسپاترینگ، زمانی استفاده می‌کنیم که از دیدگاه مهندسی، دمای تصعید آلودگی پرتوزای مورد نظر، قابل دسترس باشد. برای مثال، رادیونوکلئید ^{60}Co ، دمای تصعیدش ۲۸۷۰ درجه سانتی‌گراد است و تصعید آن با استفاده از روش پلاسما امکان‌پذیر است ولی به انرژی بیشتری نیاز دارد. همچنین در مورد امکان حذف انتخابی آلودگی‌ها، این مورد برای آلودگی‌هایی انجام‌شدنی است که نیمه‌عمرهای خیلی بلند داشته باشند؛ زیرا امکان دارد که مدت زمان زیادی نیاز باشد تا به بیشینه‌ی نرخ تصعید آلودگی برسیم. برای مثال، رادیونوکلئید ^{60}Co ، نیمه‌عمر ۵٫۲۷ سال دارد و امکان حذف انتخابی آن با تغییر دادن پارامترهای پلاسما، قابل دسترس است. ذکر این نکته ضروری است که در روش پلاسمایی رفع آلودگی، مدت زمان رسیدن به بیشترین نرخ تصعید آلودگی، باید کمتر از نیمه‌عمر آلودگی مورد نظر باشد و این موضوع باید موردتوجه ویژه قرار گیرد[۳۵].

۴. نتیجه‌گیری

پردازش پلاسمایی یکی از روش‌های امیدبخش برای رفع آلودگی گرافیت تابش دیده در صنعت هسته‌ای است و لذا شبیه‌سازی و بررسی ریاضیاتی این فرآیند، به ما این امکان را می‌دهد تا علاوه بر تحلیل دقیق عملیات رفع آلودگی، میزان مخاطرات پرتویی احتمالی در طی اقدامات تجربی حقیقی را به حداقل برسانیم. در این پژوهش، رفع آلودگی ^{137}Cs از سطوح گرافیت تابش دیده، با استفاده از روش حرارتی پلاسما-اسپاترینگ با گاز تغذیه‌ی آرگون مورد بررسی قرار گرفت و فرآیندهای انتقال گرما و جرم در طی اندرکنش و تأثیر پلاسما بر سطح گرافیت تابش دیده، بررسی شد. دلایل استفاده از گازهای تغذیه‌ی بی‌اثر آرگون به‌عنوان حامل‌های جرم و گرما در حجم پلاسما عبارت‌اند از: کاهش فعالیت ویژه‌ی گرافیت تابش دیده و کاهش مخاطرات پرتویی آن (کاهش انتشار GRW ثانویه) در طی عملیات رفع آلودگی پلاسمایی.

این تحقیق مزایای استفاده از گاز سبک آرگون به‌عنوان گاز تغذیه‌ی پلاسما در فرآیند رفع آلودگی پلاسمایی را نشان می‌دهد.

در فرآیند رفع آلودگی پلاسمایی گرافیت تابش دیده و در محدوده‌ی وسیعی از دما، رادیونوکلئید ^{137}Cs در مقایسه با سایر رادیونوکلئیدها و مواد، دارای غلظت جرم بالایی است و بنابراین آلودگی بسیار مهمی می‌باشد. همچنین وقتی‌که از آرگون به‌عنوان گاز تغذیه پلاسما استفاده شود، تبخیر گرافیت تقریباً از دمای ۳۰۰۰ درجه سانتی‌گراد شروع می‌شود و بنابراین درصورتی‌که عدم ایجاد آسیب به ساختار گرافیت مدنظر باشد، دمای جریان پلاسمای مورد استفاده، نباید از ۳۰۰۰ درجه سانتی‌گراد تجاوز نماید. می‌توان از طریق تغییر دمای جرم متوسط پلاسما، تبخیر انتخابی (تصعید) رادیونوکلیدها که ناشی از اندرکنش جریان پلاسما با گرافیت تابش دیده است را ساماندهی و مدیریت نمود و نتایج نشان می‌دهد که این کار باعث کاهش اکتیویته‌ی GRW می‌شود.

در حین پردازش پلاسمایی گرافیت تابش دیده، گرمای ناشی از تغییرات دمایی نقص‌های گرافیت، آزاد می‌شود (آزاد شدن انرژی ذخیره شده‌ی Wigner) و این گرما، پارامتری است که بر موازنه‌ی حرارتی کل سیستم اثرگذار است. به‌عبارتی‌دیگر، قسمت عمده‌ای از گرمای داده شده به گرافیت منجر به تغییر ساختار درونی آن و جبران نقص‌های شبکه‌ای می‌شود که در نتیجه‌ی گرم شدن نقص‌های موجود در شبکه‌ی گرافیت، آزاد شدن انرژی ویگنر اتفاق می‌افتد. انتشار انرژی ویگنر به‌طور هم‌زمان هم بر گرم شدن گرافیت و هم بر گرم شدن ^{137}Cs اثرگذار است، اما ازآنجایی‌که ظرفیت گرمایی کربن نسبت به ظرفیت گرمایی ^{137}Cs تقریباً چهار برابر کمتر است، کربن نسبت به ^{137}Cs به انرژی ویگنر حساس‌تر است و بنابراین نمودار تغییرات دمای آن نسبت به نمودار تغییرات دمای ^{137}Cs، شیب تندتری خواهد داشت. در مورد ^{137}Cs، با اینکه گرمای ویگنر بر روی افزایش دمای آن اثرگذار است، ولی با توجه به ظرفیت گرمایی ^{137}Cs، مقدار گرمای ویگنر به حدی نیست که در نمودار افزایش دمای ^{137}Cs اثرات گرمای ویگنر مشاهده شود. همچنین نشان داده شد که انتشار انرژی ویگنر، بر نرخ پاک‌سازی و حذف ^{137}Cs اثرگذار است.

از نتایج این پژوهش می‌توان برای پاک‌سازی انواع مختلفی از مواد متخلخل تابش دیده‌ی مورد استفاده در سایر سیستم‌های هسته‌ای نیز استفاده نمود. با توجه به نتایج به‌دست‌آمده در مورد ویژگی‌های پلاسمای مورد نیاز برای رفع آلودگی ^{137}Cs از گرافیت تابش دیده، می‌توان بر مبنای همین خصوصیات به طراحی و ساخت مولدهای پلاسمایی مفید در این زمینه اقدام نمود.

۵. مراجع

[1] Laraia, M. (Ed.). (2012). *Nuclear decommissioning: Planning, execution and international experience*. Elsevier.
[2] IAEA Authors. (2001). *"Methods for the Minimization of Radioactive Waste from Decontamination and Decommissioning of Nuclear Facilities"*. Vienna, Austria.
[3] IAEA Authors. (2008). *"innovative and adaptive technologies in decommissioning of nuclear facilities: Final report of a coordinated research project 2004-2008"*. Vienna, Austria.
[4] Kuijper, J. C., Raepsaet, X., De Haas, J. B. M., Von Lensa, W., Ohlig, U., Ruetten, H. J., ... & Seiler, R. (2006). HTGR reactor physics and fuel cycle studies. *Nuclear engineering and design*, 236(5-6), 615-634.
[5] Sato, H., & Yan, X. L. (2019). Study of an HTGR and renewable energy hybrid system for grid stability. *Nuclear Engineering and Design*, 343, 178-186.
[6] Onishi, Y. (2014). Fukushima and Chernobyl Nuclear Accidents' Environmental Assessments and US Hanford Site's Waste Management. *Procedia IUTAM*, 10, 372-381.
[7] 司明强, 张晶晶, 任金秋, & 陆春海. (2020). Thermal plasma decontamination of graphite surface. *Nuclear Techniques*, *43*(4), 85-89.
[8] Bespala, E. V., Pavliuk, A. O., & Kotlyarevskiy, S. G. (2015, September). Analysis of Wigner energy release process in graphite stack of shut-down uranium-graphite reactor. In IOP Conference Series: *Materials Science and Engineering* (Vol. 93, No. 1, p. 012065). IOP Publishing.

[9] Virgil'ev, Y. S., Kalyagina, I. P., & Makarchenko, V. G. (1974). Effect of degree of perfection of structure of graphite on the changes of its dimensions during neutron irradiation. *Soviet Atomic Energy*, 36(4), 388-390.
[10] Bushuev, A. V., Aleeva, T. B., Petrova, E. V., Zubarev, V. N., Nikolaev, A. G., Semenov, V. G., ... & Dmitriev, A. M. (2003). Possibility of salvaging spent graphite sleeves from the reactors of the siberian chemical combine by incineration. *Atomic Energy*, 94(2), 91-98.
[11] Bespala, E. V., Novoselov, I. Y., Pavlyuk, A. O., & Kotlyarevskiy, S. G. (2018). Study of evaporating the irradiated graphite in equilibrium low-temperature plasma. *Thermophysics and Aeromechanics*, 25(1), 109-117.
[12] Pavliuk, A. O., Kotlyarevskiy, S. G., Bespala, E. V., Zakharova, E. V., Ermolaev, V. M., & Volkova, A. G. (2018). Experience of on-site disposal of production uranium-graphite nuclear reactor. *Journal of environmental radioactivity*, 184, 22-31.
[13] Bespala, E., Pavliuk, A., Kotlyarevskiy, S., Novoselov, I., & Bespala, Y. (2019, April). Modeling of processing of irradiated graphite contained fission and neutron-activation products by noble gas flow. In *AIP Conference Proceedings* (Vol. 2101, No. 1, p. 020004). AIP Publishing LLC.
[14] Wickham, A., Steinmetz, H. J., O'Sullivan, P., & Ojovan, M. I. (2017). Updating irradiated graphite disposal: Project ‘GRAPA’and the international decommissioning network. *Journal of environmental radioactivity*, 171, 34-40.
[15] Vaudey, C. E., Toulhoat, N., Moncoffre, N., & Bérerd, N. (2010). Chlorine speciation in nuclear graphite: consequences on temperature release and on leaching.
[16] LaBrier, D., & Dunzik-Gougar, M. L. (2014). Characterization of 14C in neutron irradiated NBG-25 nuclear graphite. *Journal of nuclear materials*, 448(1-3), 113-120.
[17] Lee, W. E., Ojovan, M. I., Stennett, M. C., & Hyatt, N. C. (2006). Immobilisation of radioactive waste in glasses, glass composite materials and ceramics. *Advances in Applied Ceramics*, 105(1), 3-12.
[18] M.G. Golovachev and V.G. Lisovskikh. (2010). Aspects of environmentally friendly technology for graphite radioactive waste processing. *Problemy Radioecologii i Pogranichnyh Discyplin*, 14, P. 314−326.
[19] Ojovan, M. I., Lee, W. E., Sobolev, I. A., Dmitriev, S. A., Karlina, O. K., Klimov, V. L., ... & Semenov, C. N. (2004). Thermochemical processing using powder metal fuels of radioactive and hazardous waste. Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part E: *Journal of Process Mechanical Engineering*, 218(4), 261-269.
[20] A.A. Romenkov, A.A. Tuktarov, O.A. Karlina, A.Y. Yurchenko. (2013). Method for processing of irradiated graphite from reactors. Patent RU 2546981, IPC511 G21F9/00 (2006.01), assignee OAO “NIKIET”, No. 2013146306/07; filed on 16.10.2013; publ. 10.04.2015, Bulletin No. 10. 9 p.
[21] Theodosiou, A., Jones, A. N., Burton, D., Powell, M., Rogers, M., & Livesey, V. B. (2018). The complete oxidation of nuclear graphite waste via thermal treatment: An alternative to geological disposal. *Journal of Nuclear Materials*, 507, 208-217.
[22] Vulpius, D., Baginski, K., Kraus, B., & Thomauske, B. (2013). Thermal treatment of neutron-irradiated nuclear graphite. *Nuclear engineering and design*, 265, 294-309.
[23] Dunzik-Gougar, M. L., & Smith, T. E. (2014). Removal of carbon-14 from irradiated graphite. *Journal of Nuclear Materials*, 451(1-3), 328-335.
[24] Fachinger, J., von Lensa, W., & Podruhzina, T. (2008). Decontamination of nuclear graphite. *Nuclear Engineering and Design*, 238(11), 3086-3091.
[25] Napoleau, P. A. M., & Rudak, E. A. (1998). Rapid method for estimating the mass and activity of nuclides in a RBMK core. *Atomic Energy*, 85(3), 642-648.
[26] Pavliuk, A. O., Kotlyarevskiy, S. G., Bespala, E. V., Zakharova, E. V., Ermolaev, V. M., & Volkova, A. G. (2018). Experience of on-site disposal of production uranium-graphite nuclear reactor. *Journal of environmental radioactivity*, 184, 22-31.
[27] Theodosiou, A., Jones, A. N., Burton, D., Powell, M., Rogers, M., & Livesey, V. B. (2018). The complete oxidation of nuclear graphite waste via thermal treatment: An alternative to geological disposal. *Journal of Nuclear Materials*, 507, 208-217.

[28] Bespala, E., Novoselov, I., & Ushakov, I. (2016). Heat transfer during evaporation of cesium from graphite surface in an argon environment. In *MATEC Web of Conferences* (Vol. 72, p. 01011). EDP Sciences.
[29] Flamm, D. L., & Manos, D. M. (Eds.). (1989). *Plasma Etching: An Introduction*. Academic Press.
[30] Friedrich, J. (2012). *The plasma chemistry of polymer surfaces: advanced techniques for surface design*. John Wiley & Sons.
[31] Auciello, O., Gras-Martí, A., Valles-Abarca, J. A., & Flamm, D. L. (Eds.). (2012). *Plasma-surface interactions and processing of materials* (Vol. 176). Springer Science & Business Media.
[32] A.V. Bushuev, A.F. Kozhin, E.V. Petrov, V.N. Zubarev, T.E. Aleeva and N.A. Girke. (2015). Radioactive reactor graphite. *NIYaU MIPhI*, Moscow.
[33] Kane, J. J., Karthik, C., Ubic, R., Windes, W. E., & Butt, D. P. (2013). An oxygen transfer model for high purity graphite oxidation. *Carbon*, 59, 49-64.
[34] Barbin, N. M., Shavaleev, M. R., Terentyev, D. I., & Alekseev, S. G. (2015). Computer simulation of thermodynamic processes with involvement of actinoids heating radioactive graphite in the nitrogen atmosphere. *Applied Physics*, 6, 42-7.
[35] Bespala, E. V., Myshkin, V. F., Pavlyuk, A. O., & Novoselov, I. Y. (2017). Heat and mass transfer in cesium evaporation from graphite surface in argon. *Atomic Energy*, 122(6), 400-405.
[36] Pavliuk, A. O., Zagumennov, V. S., Kotlyarevskiy, S. G., & Bespala, E. V. (2018). Thermodynamic simulation of equilibrium composition of reaction products at dehydration of a technological channel in a uranium-graphite reactor. *Thermal Engineering*, 65(1), 51-56.
[37] Young, D. A. (1975). *Phase diagrams of the elements* (No. UCRL--51902). California Univ.
[38] K.M. Arefiev, V.M. Borishcansky, L.A. Vorontsova et al. (2007). Diffusion Coefficients for Alcaline Metal Vapors in Inert Gases. *GUP NPO Radon*, Moscow.
[39] E.V. Bespala, A.O. Pavlyuk, and S.G. Kotlyarevskii. (2015). Influence of high-temperature fluid dynamics on efficiency of processing of nuclear graphite, *Alternativnaya Energetika i Ekologia*, 23, 19–25.