

СОВМЕСТНОЕ УДАЛЕНИЕ N_2O И CH_3I ИЗ ВОЗДУШНОГО ПОТОКА ПРИ ЕГО ПРОПУСКАНИИ ЧЕРЕЗ Ag-СОДЕРЖАЩИЕ НЕОРГАНИЧЕСКИЕ КОМПОЗИТЫ

© 2021 г. С. А. Кулюхин*, М. П. Горбачева

*Институт физической химии и электрохимии им. А. Н. Фрумкина РАН,
119071, Москва, Ленинский пр., д. 31, корп. 4*

**e-mail: kulyukhin@ipc.rssi.ru*

Поступила в редакцию 28.08.2020, после доработки 21.12.2020, принята к публикации 28.12.2020

Исследованы процессы совместного удаления N_2O и CH_3I из воздушного потока при его прохождении через Ag-содержащие неорганические композиты с температурой от ~ 520 до ~ 630 К. Показано, что присутствие CH_3I в газовой фазе влияет на степень удаления N_2O из воздушного потока при его пропуске через Ag-содержащие композиты. С другой стороны, присутствие N_2O в газовой фазе увеличивает эффективность поглощения CH_3I на данных композитах более чем на 20–30% по сравнению с расчетной величиной. Установлено, что чем больше содержание $AgNO_3$ в составе композита, тем ниже степень удаления N_2O .

Ключевые слова: иодистый метил, гемииоксид азота, композиты, серебро, степень удаления

DOI: 10.31857/S0033831121060034

В настоящее время для обычных оксидных топлив реакторов на тепловых нейтронах существует целый ряд возможных стратегий организации ядерного топливного цикла (ЯТЦ). Многие из них включают переработку на основе Пурекс-процесса или другой технологии. Стратегия ЯТЦ для реакторов на быстрых нейтронах имеет смысл лишь в том случае, если предполагается рецикл топлива. Использование нитридных топлив в ядерных реакторах имеет ряд преимуществ по сравнению с обычно используемыми оксидными топливами. Однако при промышленном использовании нитридного топлива нельзя пренебречь наработкой более 14 кг ^{14}C в центральной зоне реактора при выгорании 20% тяжелых атомов (т.а.). В качестве альтернативы использованию азота естественного изотопного состава можно использовать топливо, обогащенное по ^{15}N , что позволяет снять проблемы с ^{14}C [1]. Однако высокие цены на ^{15}N потребуют высокоэффективного рецикла этого изотопа при переработке отработавшего ядерного топлива (ОЯТ).

При использовании нитридного плотного топлива должны быть разработаны специальные методы его предварительной обработки, переводящие его в формы, сочетающиеся с обычной схемой переработки облученного топлива.

Для смешанного уран-плутониевого нитридного топлива могут быть рассмотрены две схемы переработки в зависимости от того, будет или нет использоваться топливо, обогащенное по ^{15}N , и будет ли он улавливаться [2].

При использовании нитридного топлива, обогащенного по ^{15}N , необходимо его предварительное окисление. Выделяющийся в процессе волоксации ^{15}N должен быть отделен от отходящих газов и рециклирован в топливо. Чтобы этот процесс был достаточно эффективным, отходящие газы, сопровождающие процесс волоксации, должны быть отделены от газов аппарата-растворителя, в которых преобладают $^{14}NO_x$. Если это условие не будет выполнено, то изотопный обмен между $^{15}N_2$ и $^{14}NO_x$ приведет к трудностям при рециклировании ^{15}N [2].

Для нитридного топлива с небогащенным по ^{15}N азотом в качестве начальной ступени переработки предлагается его непосредственное растворение в азотной кислоте без предварительной волоксидации [2]. В процессе растворения летучие продукты деления, включая соединения радиоактивного иода, попадут в газовую атмосферу. Кроме того, при растворении нитридов образуются различные оксиды азота (N_2O , NO и NO_2) [3, 4]. В результате перед сбросом в окружающую среду потребуются очистка газовой фазы как от летучих радиоактивных соединений, так и от оксидов азота. Наиболее труднолокализуемыми газообразными соединениями являются N_2O среди оксидов азота и CH_3I среди летучих соединений радиоактивного иода [5]. В связи с этим проблема локализации N_2O и CH_3I актуальна и важна.

Использование различных жидких ловушек позволяет практически количественно очистить газовый поток от NO и NO_2 [6, 7]. В то же время N_2O («парниковый газ»), который является несолообразующим оксидом и практически не взаимодействует ни со щелочами, ни с кислотами, представляет главную проблему при локализации оксидов азота [8]. При очистке газовых потоков от N_2O в радиохимических производствах преимущественно обладают методы, основанные либо на высокотемпературном каталитическом разложении N_2O , либо на его сорбции с использованием различных сорбционных материалов [9–12]. В работе [13] описан композит $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}2\text{RuO}_2\text{-}400$, который позволяет осуществить практически полное разложение N_2O в воздушном потоке при температуре 738–753 К и времени контакта 7–15 с.

Для локализации CH_3I на АЭС и радиохимических производствах применяют неорганические сорбенты, содержащие в своем составе соединения серебра в количестве 8–12 мас% [14–19].

Несмотря на широкий диапазон исследований по сорбции CH_3I из газовой среды, в настоящее время в литературе отсутствуют данные о влиянии N_2O на сорбцию CH_3I , содержащегося в воздушном потоке. Также отсутствует информация о каталитическом разложении N_2O в присутствии летучих соединений радиоактивного иода, среди которых наибольшую трудность для локализации представляют органические соединения, в том числе CH_3I .

В связи с этим цель работы состояла в изучении возможности совместного удаления N_2O и CH_3I из воздушного потока при его пропускании через Ag-содержащие композиты.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для получения композитов в качестве матриц использовали гранулированный $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ с размерами гранул 3.0–8.0 мм (ТУ 2163-004-81279372-11) и гранулированный силикагель марки КСКГ (ГОСТ 3956-76) с размером гранул 13 мм.

Безводный AgNO_3 , а также кислоты, щелочи, аммиак и гидразин-гидрат, используемые в работе, были марки х.ч.

Неорганические сорбенты на основе $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ и SiO_2 , содержащие различные соединения серебра, синтезировали по методикам, представленным в работе [20]. Все Ag-содержащие композиты содержали 7 мас% Ag. В композитах, содержащих Ag и Ni, содержание Ag составляло 2 мас%.

Сорбенты Matrix-7AgAz содержат Ag в виде AgNO_3 , сорбент $\text{SiO}_2\text{-}7\text{Ag-Amk}$ – в виде Ag_2O , сорбенты Matrix-7AgГГ и Matrix-3.5AgГГ–3.5AgAz – в виде смеси AgNO_3 и Ag^0 . В аббревиатуре Az обозначает присутствие Ag в сорбенте в форме нитрата, Amk – сорбент, полученный из аммиачных растворов Ag, и ГГ – сорбент, полученный в результате обработки прекурсора гидразин-гидратом. Сорбенты Matrix-2Ag8Ni– NH_3 содержат Ni в виде NiO и Ag в виде AgNO_3 и Ag^0 . Во всех случаях в качестве Matrix подразумеваются $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ и SiO_2 . Содержание различных химических форм Ag в синтезированных сорбентах приведено в табл. 1 [20].

Процессы совместного удаления CH_3I и N_2O из воздушного потока с использованием синтезированных композитов исследовали на лабораторной установке, схема которой приведена на рис. 1.

Установка состоит из: ротаметра 1, гидрозатвора с глицерином 2, реакционной камеры с N_2O 3, реакционной камеры с CH_3I 4, реактора с исследуемым композитом, помещенным в шахтную печь 5, барботера с раствором 1.2 моль/л NaOH 6, колонки с SiO_2 7, накопительной емкости для сбора газообразных продуктов реакций с участием N_2O и CH_3I 8.

Эксперимент проводили следующим образом. В предварительно вакуумированную реакционную

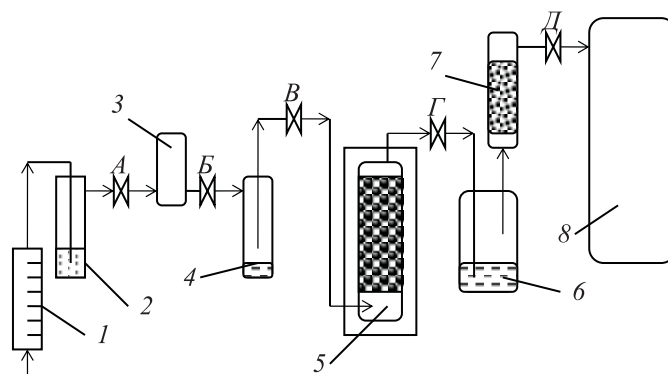


Рис. 1. Схема лабораторной установки для изучения локализации N₂O и CH₃I в воздушном потоке. 1 – ротаметр; 2 – гидрозатвор с глицерином; 3 – реакционная камера с N₂O; 4 – реакционная камера с CH₃I; 5 – реактор с исследуемым композитом, помещенным в шахтную печь; 6 – барботер с раствором 1.2 моль/л NaOH; 7 – колонка с SiO₂; 8 – накопительная емкость для сбора газообразных продуктов реакций с участием N₂O и CH₃I.

камеру 3 объемом 125 см³ вводили определенное количество N₂O. Камеру с закрытыми кранами А и В устанавливали в систему, при этом ввод с краном А подсоединяли к гидрозатвору с глицерином 2, а ввод с краном В – к реакционной камере для CH₃I 4. Реакционная камера 4 имела обогревательную оболочку, подсоединенную к термостату. В реакционную камеру 4 объемом 125 см³ вводили определенное количество жидкого CH₃I, и закрывали кран В на ее вводе. Камеру 4 устанавливали в систему между реакционной камерой 3 и реактором 5. В реактор 5 помещали 10 г исследуемого композитного материала и устанавливали реактор в шахтную печь. Реактор с исследуемым композитным материалом 5 подсоединяли к барботеру с раствором 1.2 моль/л NaOH 6, который далее был подсоединен к колонке с SiO₂ с комнатной температурой (293–298 К) 7. Силикагель предварительно прокачивали на воздухе при 453 К в течение 5 ч. Далее колонку с SiO₂ подсоединяли к накопительной емкости 8 объемом 1400 см³ для сбора газообразных продуктов с участием N₂O и CH₃I. Накопительную емкость предварительно вакуумировали с помощью форвакуумного насоса.

После монтажа всей лабораторной установки включали нагрев шахтной печи и устанавливали требуемую температуру композита. Одновременно включали термостат, соединенный с обогревательной оболочкой реакционной камеры 4, и после достижения в термостате температуры 343 К открывали кран В между реакционными камерами 3 и 4.

В результате происходило смешивание N₂O и газообразного CH₃I.

После нагрева композита до нужной температуры на установке открывали краны А, В, Г, Д и начинали отбор N₂O и CH₃I из реакционных камер в накопительную емкость 8. Процесс прекращался, когда давление в системе и накопительной емкости становилось равным атмосферному. После этого закрывали краны А и Д, отсоединяли накопительную емкость. Проводили отбор газовой фазы из накопительной емкости в кюветы для измерения ИК спектров. Газовые кюветы для ИК спектроскопии с окнами из КВг имели объем 125 см³ и толщину поглощающего слоя 100 мм. Помимо отбора проб из накопительной емкости, также после полного остывания камеры 4 и реактора 5 до комнатной температуры, проводили отбор проб газовой фазы в кюветы для ИК спектроскопии из газового пространства системы (реакционная камера с N₂O 3, реакционная камера с CH₃I 4, реактор с исследуемым композитом 5, газовые пространства барботера с раствором 1.2 моль/л NaOH 6 и колонки с SiO₂ 7, соединительные шланги). Перед измерением ИК спектров проб газовой фазы из накопительной емкости и системы проводили измерение фоновых ИК спектров используемых кювет.

ИК спектры измеряли на спектрометре Specord M 80. Перед измерением ИК спектров давление в газовых кюветах доводили до атмосферного с помощью газообразного азота. Количественную оценку содержания N₂O и CH₃I проводили по градуировочным кривым для полос $\nu = 2240$ и 2980 см⁻¹

Таблица 1. Данные о содержании химических форм Ag в синтезированных композитах [20]

Сорбент	Содержание Ag в химической форме, мас%		
	AgNO ₃	Ag ₂ O	Ag ⁰
Al ₂ O ₃ -7AgAz	7.0 ± 0.4	–	–
Al ₂ O ₃ -7AgГГ	2.1 ± 0.2	–	4.9 ± 0.5
Al ₂ O ₃ -3.5AgГГ-3.5AgAz	4.0 ± 0.3	–	3.0 ± 0.3
Al ₂ O ₃ -2Ag8Ni-NH ₃	1.0 ± 0.1	–	1.0 ± 0.1
SiO ₂ -7AgAz	7.0 ± 0.3	–	–
SiO ₂ -7Ag-Амк	–	3.0 ± 0.2	4.0 ± 0.4
SiO ₂ -7AgГГ	1.7 ± 0.1	–	5.3 ± 0.4
SiO ₂ -3.5AgГГ-3.5AgAz	4.2 ± 0.2	–	2.8 ± 0.3
SiO ₂ -2Ag8Ni-NH ₃	1.0 ± 0.1	–	1.0 ± 0.1

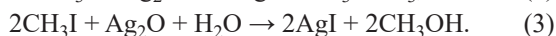
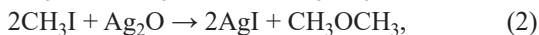
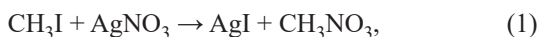
для N₂O и CH₃I соответственно [21, 22]. Точность измерения ±10%. Использовать полосы $\nu = 1300$ и 1264 см^{-1} для количественной оценки соответственно N₂O и CH₃I не представлялось возможным из-за перекрывания полос поглощения N₂O и CH₃I в данной области ИК спектра (рис. 2).

Скорость воздушного потока (*V*) в системе составляла 0.2–0.3 л/мин, время контакта газовой фазы с композитным материалом внутри реактора (*t*) находилось в диапазоне от ~2.5 до ~8.6 с. Температура материала внутри реактора изменялась от ~523 до ~630 К. Точность измерения температуры ±3°C.

Исходное количество N₂O находилось в интервале от ~1.25 до ~2.95 ммоль. Исходное количество CH₃I во всех экспериментах составляло ~11.1 ммоль.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Локализация CH₃I на Ag-содержащих сорбентах может протекать в соответствии со следующими реакциями:



Прямого взаимодействия CH₃I с Ag⁰ в составе композитов не происходит. Однако нанометровые частицы Ag⁰ могут выступать катализаторами разложения CH₃I с возможной генерацией промежуточных радикальных частиц (CH₃·, I·).

Радикалы I· могут вступать в реакции либо между собой с образованием I₂, либо с соединениями

Ag с образованием AgI. Действительно, в ряде экспериментов при локализации CH₃I в отсутствие N₂O на SiO₂-7AgГГ, SiO₂-3.5AgГГ-3.5AgAz, SiO₂-2Ag8Ni-NH₃, Al₂O₃-7AgГГ, Al₂O₃-3.5AgГГ-3.5AgAz и Al₂O₃-2Ag8Ni-NH₃ в газовой фазе присутствовали пары I₂ [20], что подтверждалось фиолетовым окрашиванием газовой фазы в накопительной емкости.

Следует отметить, что в качестве катализатора могут выступать также и другие компоненты исследованных композитов. Действительно, пары I₂ также наблюдались при взаимодействии CH₃I с γ -Al₂O₃, не содержащим соединения Ag и нагретым до 423 К, в то время как аналогичного эффекта с SiO₂ не наблюдалось [20].

Использование неорганических композитов, содержащих 5–12 мас% Ag, позволяет практически полностью (>99.999%) удалить CH₃I из воздушного потока при условии, что суммарное содержание AgNO₃ и Ag₂O в композитах, участвующих в реакциях (1)–(3), превышает количество CH₃I, подаваемое на композит [14–18]. Для более четкого выявления влияния N₂O на поглощение CH₃I, а также влияния CH₃I на каталитическое разложение N₂O в экспериментах по изучению совместного удаления CH₃I и N₂O в процессе пропускания воздушного потока через слой различных неорганических композитов использовали количества композитов, рассчитанные на 55–60%-ное поглощение CH₃I.

Для расчета концентрации CH₃I в газовой фазе после ее прохождения через Ag-содержащие сорбенты использовали полосу валентных колебаний метильной группы (2980 см^{-1}), которая также может

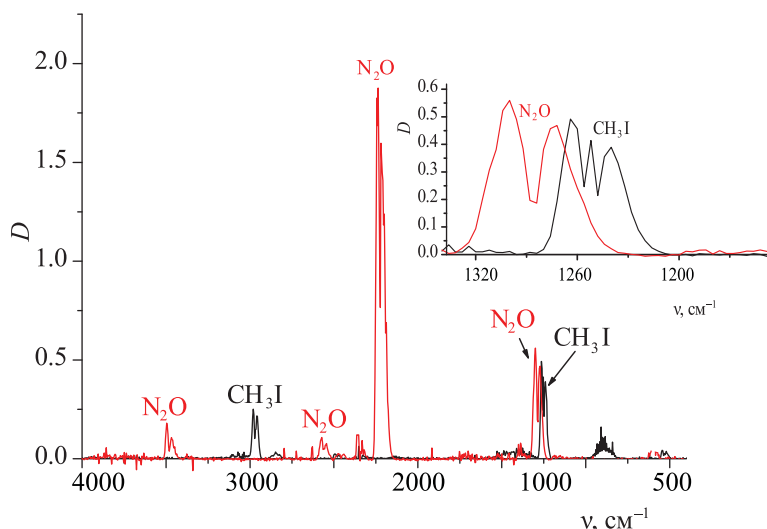


Рис. 2. ИК спектры смеси газообразных N₂O и CH₃I.

относиться к продуктам реакций (1)–(3), а именно CH₃NO₃, CH₃OCH₃ и CH₃OH.

Известно, что растворимость CH₃NO₃ и CH₃OCH₃ в 100 г воды составляет 3.6 г при 293 К [23] и 3700 мл при 291 К [24] соответственно. CH₃OH также очень хорошо растворяется в воде. Поэтому, учитывая высокую растворимость данных соединений в воде, можно предположить, что данные соединения будут полностью поглощаются в растворе 1.2 моль/л NaOH.

Кроме того, в процессе барботирования раствора 1.2 моль/л NaOH газовым потоком, содержащим CH₃NO₃, возможно протекание гидролиза с образованием хорошо растворимых соединений:



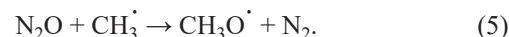
С учетом полученных результатов можно сделать вывод о том, что полоса валентных колебаний метильной группы (2980 см⁻¹) в ИК спектре газовой фазы из накопительной емкости относится только к CH₃I, и это позволяет использовать данную полосу в расчетах концентрации CH₃I в газовой фазе.

В табл. 2 приведены данные по совместному удалению CH₃I и N₂O в процессе пропускания воздушного потока через слой различных композитов на основе γ-Al₂O₃ и SiO₂, содержащих различные соединения серебра и нагретых до температуры ~523 и ~630 К.

В отличие от теоретических ожиданий степень удаления CH₃I для всех Ag-содержащих компози-

тов оказалась в диапазоне 81–87%. Поскольку газообразный CH₃I практически не поглощается в растворе NaOH и не сорбируется на SiO₂, можно заключить, что увеличение степени удаления CH₃I более чем на 20–30% по сравнению с расчетной величиной связано с влиянием N₂O, присутствующим в газовом потоке.

Из работы [26] известно, что N₂O может вступить в реакцию с радикалом CH₃·



Образующийся радикал CH₃O· может далее вступать в реакцию с CH₃I с образованием диметилового эфира CH₃OCH₃ и радикальной частицы I·



В результате реакций (5) и (6) в системе образуется либо AgI, либо I₂. Образующийся молекулярный иод поглощается при барботировании газового потока через раствор 1.2 моль/л NaOH, поэтому во всех экспериментах по совместному удалению CH₃I и N₂O из воздушного потока образования паров I₂ не наблюдалось.

Одновременное протекание процессов (1)–(3), (5) и (6) приводит к заметному увеличению степени удаления CH₃I в системе, состоящей из Ag-содержащих композитов и барботера с раствором NaOH.

Следует отметить, что увеличение температуры Ag-содержащего композита практически не сказыв-

Таблица 2. Данные по удалению N_2O и CH_3I из воздушного потока при его пропускании через Ag-содержащие композиты ($V_{\text{газа}} = 0.2-0.3$ л/мин, содержание влаги в воздухе 3–4 об%, $S_{\text{реактора}} = 2.85$ см²)^a

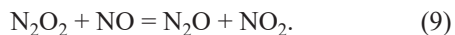
Номер опыта	Композит	$T_{\text{комп}}, K$	$h, \text{см}$	$t, \text{с}$	$m(CH_3I), \text{ммоль}$		$m(N_2O), \text{ммоль}$		$\alpha, \%$	
					исходное	конечное	исходное	конечное	CH_3I	N_2O
1	$Al_2O_3-7AgAz$	527	6.5	8.6	~11.0	~1.4	~2.6	~2.4	85–90	5–10
2	$Al_2O_3-3.5AgГГ-3.5AgAz$	523	6.5	5.7	~11.0	~2.1	~2.7	~2.6	80–85	4–5
3	$Al_2O_3-7AgГГ$	527	6.3	6.9	~11.0	~1.5	~2.9	~2.4	85–90	15–20
4	$Al_2O_3-2Ag8Ni-NH_3$	525	6.0	6.2	~11.0	~1.9	~2.6	~2.3	80–85	10–15
5	$Al_2O_3-2Ag8Ni-NH_3$	630	6.0	6.3	~11.0	~1.9	~3.0	~2.7	80–85	15–20
6	$SiO_2-7AgAz$	525	6.4	5.5	~11.0	~1.8	~2.5	~2.0	80–85	20–25
7	$SiO_2-3.5AgГГ-3.5AgAz$	525	5.5	5.7	~11.0	~1.5	~2.7	~1.9	85–90	30–35
8	$SiO_2-7AgГГ$	523	6.0	5.9	~11.0	~1.7	~2.6	~1.9	85–90	25–30
9	$SiO_2-7AgAmк$	521	5.7	5.7	~11.0	~2.0	~2.5	~1.6	80–85	35–40
10	$SiO_2-2Ag8Ni-NH_3$	527	5.3	5.0	~11.0	~1.6	~2.4	~2.1	85–90	10–15

^a h – высота слоя композита в реакторе, t – время контакта газовой фазы с композитом в реакторе, α – степень удаления CH_3I и N_2O .

вается на степени удаления CH_3I . Так, для композита $Al_2O_3-2Ag8Ni-NH_3$ увеличение его температуры с ~523 до ~630 К практически не сказывается на степени удаления CH_3I (увеличение степени удаления ~4.5%) (опыты 4 и 5 в табл. 2). Независимость степени удаления CH_3I как от типа композита, так и от температуры подтверждает вывод о ключевой роли реакций (5) и (6) в процессе локализации CH_3I .

Протекание реакций (5) и (6) должно приводить не только к заметному удалению CH_3I , но и к заметному разложению N_2O . Однако степень удаления N_2O относительно невысока и не превышает ~19 и ~36% для композитов на основе $\gamma-Al_2O_3$ и SiO_2 соответственно (табл. 2). Можно предположить, что в системе одновременно протекают процессы, связанные как с разложением N_2O , так и с его образованием.

Согласно работе [4], образование N_2O при термическом разложении нитратов d -элементов может быть представлено следующими реакциями:



Аналогичные реакции могут протекать при разложении $AgNO_3$ в составе композита. Именно из-за протекания реакций образования N_2O при термическом разложении $AgNO_3$ в составе композита нами

не обнаружено заметного снижения количества N_2O в воздушном потоке.

Действительно, анализ данных табл. 1 и 2 позволяет сделать вывод о том, что чем больше содержание $AgNO_3$ в составе композита, тем ниже степень удаления N_2O . Однако степень удаления N_2O в присутствии CH_3I выше, чем в его отсутствие (табл. 3).

При оценке степени удаления N_2O необходимо принять во внимание тот факт, что в процессе барботирования ~11.0% N_2O поглощается в растворе 1.2 моль/л NaOH из воздушного потока с температурой ~298 К [27]. В этих же условиях не происходит поглощения газообразного CH_3I в растворе 1.2 моль/л NaOH, а также поглощения N_2O и CH_3I на колонке с SiO_2 . Однако в настоящее время отсутствуют данные о поглощении N_2O в растворе 1.2 моль/л NaOH из воздушного потока с температурой ~520 К и более.

Анализ данных табл. 3 показывает, что практически все Ag-содержащие композиты имеют низкую каталитическую активность в процессах разложения N_2O . Кроме того, можно также заключить, что практически не происходит поглощения N_2O в растворе 1.2 моль/л NaOH из воздушного потока с температурой ~520 К и более, т.е. практически отсутствует взаимодействие горячего потока воздуха, содержащего N_2O , с водным раствором NaOH. В результате степень удаления N_2O из воздушного

Таблица 3. Данные по удалению N₂O из воздушного потока при его пропускании через Ag-содержащие композиты ($V_{\text{газа}} = 0.2\text{--}0.3$ л/мин, содержание влаги в воздухе = 3–4 об%, $S_{\text{реактора}} = 3.44$ см²)^a

Номер опыта	Композит	$T_{\text{комп}}, \text{K}$	$h, \text{см}$	$t, \text{с}$	$m(\text{N}_2\text{O})_{\text{исх}}, \text{ммоль}$	$\alpha(\text{N}_2\text{O}), \%$
1	Al ₂ O ₃ –7AgAz	525	5.4	4.0	1.3	1–2
2	Al ₂ O ₃ –3.5AgГГ–3.5AgAz	529	6.3	4.2	1.3	5–10
3*	Al ₂ O ₃ –3.5AgГГ–3.5AgAz	524	5.5	5.2	1.4	< 0.001
4	Al ₂ O ₃ –7AgГГ	533	6.4	3.1	1.3	5–10
5*	Al ₂ O ₃ –7AgГГ	525	5.5	3.7	1.4	< 1
6	Al ₂ O ₃ –2Ag8Ni–NH ₃	527	6.0	5.2	1.3	1–2
7*	Al ₂ O ₃ –2Ag8Ni–NH ₃	527	4.8	3.4	1.3	< 0.001
8	SiO ₂ –7AgAz	536	4.6	2.3	1.3	2–3
9	SiO ₂ –3.5AgГГ–3.5AgAz	537	4.5	4.3	1.3	3–4
10	SiO ₂ –7AgГГ	530	4.5	4.0	1.3	< 1
11	SiO ₂ –7AgАмк	537	4.6	4.1	1.3	1–2
12	SiO ₂ –2Ag8Ni–NH ₃	526	4.7	5.5	1.3	4–5

^a h – высота слоя композита в реакторе, t – время контакта газовой фазы с композитом в реакторе, α – степень удаления N₂O. Звездочкой отмечены опыты без барботера с 1.2 моль/л NaOH.

потока при его пропускании через Ag-содержащие композиты с $T \sim 520$ К и более не превышает ~10%.

В заключение следует отметить, что присутствие CH₃I в газовой фазе влияет на степень удаления N₂O из воздушного потока при его пропускании через Ag-содержащие композиты, так же как и присутствие N₂O в газовой фазе увеличивает эффективность поглощения CH₃I на данных композитах. Из этого можно заключить, что в системе газоочистки блоки по удалению N₂O должны быть установлены после блоков с Ag-содержащими композитами, предназначенных для удаления CH₃I.

Кроме того, использование в системе газоочистки барботеров с растворами щелочи позволит провести очистку газовых потоков от продуктов взаимодействия CH₃I с Ag-содержащими сорбентами, а именно от CH₃NO₃, CH₃OCH₃ и CH₃OH.

ФОНДОВАЯ ПОДДЕРЖКА

Исследование выполнено при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (№ государственной регистрации АААА-А18-118021990023-6).

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Росатом задумался о повышении экологической безопасности топлива для «АЭС будущего» // Электронный ресурс: <https://1prime.ru/energy/20200205/830893475.html>. Дата посещения: 20.10.2020.
2. Переработка нитридного топлива на основе PUREX-процесса // Электронный ресурс: <https://poznayka.org/s5958t2.html>. Дата посещения: 20.10.2020.
3. Kulyukhin S.A., Shadrin A.Yu., Voskresenskaya Yu.A., Bessonov A.A., Ustinov O.A. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2015. Vol. 304, N 1. P. 425.
4. Устинов О.А., Кулюхин С.А., Шадрин А.Ю., Воскресенская Ю.А., Бессонов А.А. // Атом. энергия. 2014. Т. 117, № 6. С. 329.
5. Iodine Pathways and Off-Gas Stream Characteristics for Aqueous Reprocessing Plants – A Literature Survey and Assessment: Report INL/EXT-13-30119. 2013. 39 p.
6. Устинов О.А., Шадрин А.Ю., Баташов М.В., Литвиннюк Л.В., Никулин С.Л. // Атом. энергия. 2018. Т. 124, № 2. С. 86.
7. Устинов О.А., Якунин С.А. // Атом. энергия. 2016. Т. 120, № 2. С. 112.
8. Рябков Д.В., Зильберман Б.Я., Мишина Н.Е., Андреева Е.В., Водкайло А.Г., Шадрин А.Ю., Костромин К.В. Патент РФ № 2596816. Заяв. 30.06.2015. Опубл. 10.09.2016 // Б.И. 106. № 25.
9. Konsolakis M. // ACS Catal. 2015. Vol. 5, N 11. P. 6397.

10. *Cornelissen G., Rutherford D.W., Arp H.P.H., Dörsch P., Kelly Ch.N., Rostad C.E.* // Environ. Sci. Technol. 2013. Vol. 47, N 14. P. 7704.
11. *Kaczmarczyk J., Zasada F., Janas J., Indyka P., Piskorz W., Kotarba A., Sojka Z.* // ACS Catal. 2016. Vol. 6, N 2. P. 1235.
12. *Ivanova Yu.A., Sutormina E.F., Isupova I.A., Vovk E.I.* // Kinet. Catal. 2017. Vol. 58, N. 6. P. 793.
13. *Кулюхин С.А., Румер И.А., Горбачева М.П., Бессонов А.А.* // Радиохимия. 2020. Т. 62, № 2. С. 130.
14. *Кулюхин С.А.* // Успехи химии. 2012. Т. 81, № 10. С. 960.
15. State of the Art Report on Iodine Chemistry: Report NEA/CSNI. 2007. N R1. 60 p.
16. Insights into the Control of the Release of Iodine, Cesium, Strontium and Others Fission Products in the Containment by Severe Accident Management: Report NEA/CSNI. 2000. N R9. P. 43–75.
17. *Кулюхин С.А., Мизина Л.В., Коновалова Н.А., Румер И.А., Занина Е.В.* // Радиохимия. 2014. Т. 5, № 4. С. 353.
18. *Кулюхин С.А., Мизина Л.В., Коновалова Н.А., Румер И.А., Занина Е.В.* // Радиохимия. 2015. Т. 57, № 3. С. 227.
19. *Истомин И.А., Степанов С.В., Пашковский Р.В.* // Вопр. радиац. безопасности. 2019. № 4. С. 39.
20. *Кулюхин С.А., Горбачева М.П., Румер И.А.* // Радиохимия. 2021. Т. 63. № 1. С. 59
21. База данных ИК спектров IR-Spektrensammlung der ANSYCO GmbH // Электронный ресурс: <http://www.ansyco.de>. Дата посещения: 20.10.2020 г.
22. База данных NIST Standard Reference Database Number 69 // Электронный ресурс: <http://webbook.nist.gov/chemistry/>. Дата посещения: 20.10.2020.
23. Свойства вещества: метилнитрат // Электронный ресурс: <http://chemister.ru/Database/properties.php?dbid=1&id=6112>. Дата посещения: 20.10.2020.
24. Диметиловый эфир // Электронный ресурс: https://ru.wikipedia.org/wiki/Диметиловый_эфир. Дата посещения: 20.10.2020.
25. *Wingen L.M., Sumner A.L., Syomin D., Ramazan K.A., Finlayson-Pitts B.J.* // Mater. 5th Conf. on Atmospheric Chemistry: Gases, Aerosols, and Clouds, 2003. Электронный ресурс: https://ams.confex.com/ams/annual2003/techprogram/paper_51985.htm. Дата посещения: 20.10.2020.
26. *Deng F., Yang F., Zhang P., Pan Y., Zhang Y., Huang Z.* // Energy Fuels. 2016. Vol. 30, N 2. P. 1415.
27. *Gorbacheva M.P., Krasavina E.P., Mizina L.V., Rumer I.A., Krapukhin V.B., Kulemin V.V., Lavrikov V.A., Kulyukhin S.A.* // Theor. Found. Chem. Eng. 2019. Vol. 53, N 4. P. 638.