

СОВМЕСТНОЕ УДАЛЕНИЕ N₂O И CH₃I 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 N₂O и CH₃I из воздушного потока при его прохождении через Ag-содержащие неорганические композиты с температурой от ~520 до ~630 К. Показано, что присутствие CH₃I в газовой фазе влияет на степень удаления N₂O из воздушного потока при его прохождении через Ag-содержащие композиты. С другой стороны, присутствие N₂O в газовой фазе увеличивает эффективность поглощения CH₃I на данных композитах более чем на 20–30% по сравнению с расчетной величиной. Установлено, что чем больше содержание AgNO₃ в составе композита, тем ниже степень удаления N₂O.

Ключевые слова: иодистый метил, гемиоксид 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 ¹⁴C в центральной зоне реактора при выгорании 20% тяжелых атомов (т.а.). В качестве альтернативы использованию азота естественного изотопного состава можно использовать топливо, обогащенное по ¹⁵N, что позволяет снять проблемы с ¹⁴C [1]. Однако высокие цены на ¹⁵N 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 ¹⁵N, и будет ли он улавливаться [2].

При использовании нитридного топлива, обогащенного по ¹⁵N, необходимо его предварительное окисление. Выделяющийся в процессе волоксидации ¹⁵N должен быть отделен от отходящих газов и рециклизирован в топливо. Чтобы этот процесс был достаточно эффективным, отходящие газы, сопровождающие процесс волоксидации, должны быть отделены от газов аппарата-растворителя, в которых преобладают ¹⁴NO_x. Если это условие не будет выполнено, то изотопный обмен между ¹⁵N₂ и ¹⁴NO_x приведет к трудностям при рециклировании ¹⁵N [2].

Для нитридного топлива с необогащенным 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 потребуется 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 несолеобразующим 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 преимуществом 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 $\text{SiO}_2\text{-7Ag-Aмк}$ – 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-NH₃ 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

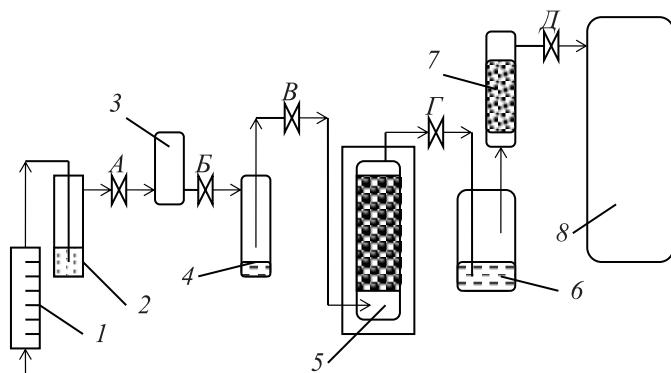


Рис. 1. Схема лабораторной установки для изучения локализации N_2O и CH_3I в воздушном потоке. 1 – ротаметр; 2 – гидрозатвор с глицерином; 3 – реакционная камера с N_2O ; 4 – реакционная камера с CH_3I ; 5 – реактор с исследуемым композитом, помещенным в шахтную печь; 6 – барботер с раствором 1.2 моль/л $NaOH$; 7 – колонка с SiO_2 ; 8 – накопительная емкость для сбора газообразных продуктов реакций с участием N_2O и CH_3I .

камеру 3 объемом 125 см³ вводили определенное количество N_2O . Камеру с закрытыми кранами *A* и *B* устанавливали в систему, при этом ввод с краном *A* подсоединяли к гидрозатвору с глицерином 2, а ввод с краном *B* – к реакционной камере для CH_3I 4. Реакционная камера 4 имела обогревательную оболочку, подсоединенную к терmostату. В реакционную камеру 4 объемом 125 см³ вводили определенное количество жидкого CH_3I , и закрывали кран *B* 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 SiO_2 с комнатной температурой (293–298 К) 7. Силикагель предварительно прокаливали на воздухе при 453 К в течение 5 ч. Далее колонку с SiO_2 подсоединяли к накопительной емкости 8 объемом 1400 см³ для сбора газообразных продуктов с участием N_2O и CH_3I . Накопительную емкость предварительно вакуумировали с помощью форвакуумного насоса.

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

В результате происходило смешивание N_2O и газообразного CH_3I .

После нагрева композита до нужной температуры на установке открывали краны *A*, *B*, *Г*, *Д* и начинали отбор N_2O и CH_3I из реакционных камер в накопительную емкость 8. Процесс прекращался, когда давление в системе и накопительной емкости становилось равным атмосферному. После этого закрывали краны *A* 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 KBr 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 N_2O 3, реакционная камера с CH_3I 4, реактор с исследуемым композитом 5, газовые пространства барботера с раствором 1.2 моль/л $NaOH$ 6 и колонки с SiO_2 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 N_2O и CH_3I 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 –7AgAз | 7.0 ± 0.4 | — | — |
| Al ₂ O ₃ –7AgГГ | 2.1 ± 0.2 | — | 4.9 ± 0.5 |
| Al ₂ O ₃ –3.5AgГГ–3.5AgAз | 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 –7AgAз | 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–3.5AgAз | 4.2 ± 0.2 | — | 2.8 ± 0.3 |
| SiO ₂ –2Ag8Ni–NH ₃ | 1.0 ± 0.1 | — | 1.0 ± 0.1 |

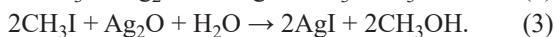
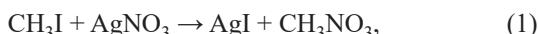
для N₂O и CH₃I соответственно [21, 22]. Точность измерения ±10%. Использовать полосы $\nu = 1300$ и 1264 см⁻¹ для количественной оценки соответственно N₂O и CH₃I не представлялось возможным из-за перекрывания полос поглощения N₂O и CH₃I в данной области ИК спектра (рис. 2).

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 radicalных частиц (CH₃[.], I[·]).

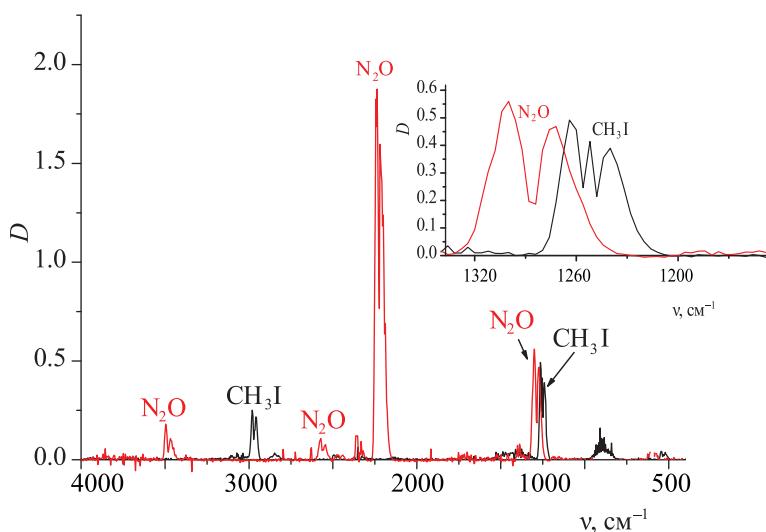
Радикалы I[·] могут вступать в реакции либо между собой с образованием I₂, либо с соединениями

Ag с образованием AgI. Действительно, в ряде экспериментов при локализации CH₃I в отсутствии N₂O на SiO₂–7AgГГ, SiO₂–3.5AgГГ–3.5AgAз, SiO₂–2Ag8Ni–NH₃, Al₂O₃–7AgГГ, Al₂O₃–3.5AgГГ–3.5AgAз 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 N_2O и CH_3I .

относиться к продуктам реакций (1)–(3), а именно CH_3NO_3 , CH_3OCH_3 и CH_3OH .

Известно, что растворимость CH_3NO_3 и CH_3OCH_3 в 100 г воды составляет 3.6 г при 293 К [23] и 3700 мл при 291 К [24] соответственно. CH_3OH также очень хорошо растворяется в воде. Поэтому, учитывая высокую растворимость данных соединений в воде, можно предположить, что данные соединения будут полностью поглощаться в растворе 1.2 моль/л NaOH.

Кроме того, в процессе барботирования раствора 1.2 моль/л NaOH газовым потоком, содержащим CH_3NO_3 , возможно протекание гидролиза с образованием хорошо растворимых соединений:



С учетом полученных результатов можно сделать вывод о том, что полоса валентных колебаний метильной группы (2980 cm^{-1}) в ИК спектре газовой фазы из накопительной емкости относится только к CH_3I , и это позволяет использовать данную полосу в расчетах концентрации CH_3I в газовой фазе.

В табл. 2 приведены данные по совместному удалению CH_3I и N_2O в процессе пропускания воздушного потока через слой различных композитов на основе $\gamma-Al_2O_3$ и SiO_2 , содержащих различные соединения серебра и нагретых до температуры ~ 523 и ~ 630 К.

В отличие от теоретических ожиданий степень удаления CH_3I для всех Ag-содержащих компози-

тов оказалась в диапазоне 81–87%. Поскольку газообразный CH_3I практически не поглощается в растворе NaOH и не сорбируется на SiO_2 , можно заключить, что увеличение степени удаления CH_3I более чем на 20–30% по сравнению с расчетной величиной связано с влиянием N_2O , присутствующим в газовом потоке.

Из работы [26] известно, что N_2O может вступать в реакцию с радикалом CH_3



Образующийся радикал CH_3O^\cdot может далее вступать в реакцию с CH_3I с образованием диметилового эфира CH_3OCH_3 и радикальной частицы I^\cdot



В результате реакций (5) и (6) в системе образуется либо AgI , либо I_2 . Образующийся молекулярный иод поглощается при барботировании газового потока через раствор 1.2 моль/л NaOH, поэтому во всех экспериментах по совместному удалению CH_3I и N_2O из воздушного потока образования паров I_2 не наблюдалось.

Одновременное протекание процессов (1)–(3), (5) и (6) приводит к заметному увеличению степени удаления CH_3I в системе, состоящей из Ag-содержащих композитов и барботера с раствором NaOH.

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

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

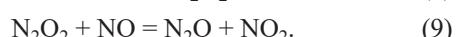
| Номер опыта | Композит | $T_{\text{комп}}, \text{ К}$ | $h, \text{ см}$ | $t, \text{ с}$ | $m(\text{CH}_3\text{I}), \text{ ммоль}$ | | $m(\text{N}_2\text{O}), \text{ ммоль}$ | | $\alpha, \%$ | |
|-------------|--|------------------------------|-----------------|----------------|---|----------|--|----------|-----------------------|----------------------|
| | | | | | исходное | конечное | исходное | конечное | CH_3I | N_2O |
| 1 | $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--}7\text{AgAз}$ | 527 | 6.5 | 8.6 | ~11.0 | ~1.4 | ~2.6 | ~2.4 | 85–90 | 5–10 |
| 2 | $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--}3.5\text{AgГГ--}3.5\text{AgAз}$ | 523 | 6.5 | 5.7 | ~11.0 | ~2.1 | ~2.7 | ~2.6 | 80–85 | 4–5 |
| 3 | $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--}7\text{AgГГ}$ | 527 | 6.3 | 6.9 | ~11.0 | ~1.5 | ~2.9 | ~2.4 | 85–90 | 15–20 |
| 4 | $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--}2\text{Ag8Ni--NH}_3$ | 525 | 6.0 | 6.2 | ~11.0 | ~1.9 | ~2.6 | ~2.3 | 80–85 | 10–15 |
| 5 | $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--}2\text{Ag8Ni--NH}_3$ | 630 | 6.0 | 6.3 | ~11.0 | ~1.9 | ~3.0 | ~2.7 | 80–85 | 15–20 |
| 6 | $\text{SiO}_2\text{--}7\text{AgAз}$ | 525 | 6.4 | 5.5 | ~11.0 | ~1.8 | ~2.5 | ~2.0 | 80–85 | 20–25 |
| 7 | $\text{SiO}_2\text{--}3.5\text{AgГГ--}3.5\text{AgAз}$ | 525 | 5.5 | 5.7 | ~11.0 | ~1.5 | ~2.7 | ~1.9 | 85–90 | 30–35 |
| 8 | $\text{SiO}_2\text{--}7\text{AgГГ}$ | 523 | 6.0 | 5.9 | ~11.0 | ~1.7 | ~2.6 | ~1.9 | 85–90 | 25–30 |
| 9 | $\text{SiO}_2\text{--}7\text{AgAmк}$ | 521 | 5.7 | 5.7 | ~11.0 | ~2.0 | ~2.5 | ~1.6 | 80–85 | 35–40 |
| 10 | $\text{SiO}_2\text{--}2\text{Ag8Ni--NH}_3$ | 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 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{--}2\text{Ag8Ni--NH}_3$ 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 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 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 ($V_{\text{газа}} = 0.2\text{--}0.3 \text{ л/мин}$, содержание влаги в воздухе = 3–4 об%, $S_{\text{реактора}} = 3.44 \text{ см}^2$)^a

| Номер опыта | Композит | $T_{\text{комп}}, \text{К}$ | $h, \text{см}$ | $t, \text{с}$ | $m(\text{N}_2\text{O})_{\text{исх}}, \text{ммоль}$ | $\alpha(\text{N}_2\text{O}), \%$ |
|-------------|--|-----------------------------|----------------|---------------|--|----------------------------------|
| 1 | Al ₂ O ₃ –7AgAз | 525 | 5.4 | 4.0 | 1.3 | 1–2 |
| 2 | Al ₂ O ₃ –3.5AgГГ–3.5AgAз | 529 | 6.3 | 4.2 | 1.3 | 5–10 |
| 3* | Al ₂ O ₃ –3.5AgГГ–3.5AgAз | 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 –7AgAз | 536 | 4.6 | 2.3 | 1.3 | 2–3 |
| 9 | SiO ₂ –3.5AgГГ–3.5AgAз | 537 | 4.5 | 4.3 | 1.3 | 3–4 |
| 10 | SiO ₂ –7AgГГ | 530 | 4.5 | 4.0 | 1.3 | < 1 |
| 11 | SiO ₂ –7AgAмк | 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 $T \sim 520 \text{ К}$ 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, предназначенными 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 (№ госрегистрации 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://poznyak.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., Куюхин 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 р.
6. Устинов О.А., Шадрин А.Ю., Баташов М.В., Литвинюк 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. Кульюхин С.А., Румер И.А., Горбачева М.П., Бессонов А.А. // Радиохимия. 2020. Т. 62, № 2. С. 130.
14. Кульюхин 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. Кульюхин С.А., Мизина Л.В., Коновалова Н.А., Румер И.А., Занина Е.В. // Радиохимия. 2014. Т. 5, № 4. С. 353.
18. Кульюхин 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., Пацковский Р.В. // Вопр. радиац. безопасности. 2019. № 4. С. 39.
20. Кульюхин 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.