

УДК 621.039.342.001.53,541.128.5

## ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ПРОВЕДЕНИЯ ИЗОТОПНОГО ОБМЕНА В ДИОКСИДЕ УГЛЕРОДА В КАСКАДЕ ГАЗОВЫХ ЦЕНТРИФУГ

Г.М. Скорынин, А.А. Орлов\*, В.В. Сенченко

ОАО ПО «Электрохимический завод», г. Зеленогорск

\*Томский политехнический университет

E-mail: orlov@phtd.tpu.edu.ru

Проведено исследование применения реакций изотопного обмена при получении высокообогащенных изотопов углерода в каскаде газовых центрифуг, работающих на диоксиде углерода, и испытание опытного реактора изотопного обмена с никелевым катализатором. Показана принципиальная возможность применения реакций и реактора изотопного обмена для получения высокообогащенных изотопов углерода в каскаде газовых центрифуг.

### Ключевые слова:

Каскад, изотопный обмен, диоксид углерода, реактор изотопного обмена, катализатор.

### Введение

При разделении изотопов кинетическими методами, например центрифугированием, иногда приходится использовать рабочие вещества, представляющие собой химические соединения нескольких полиизотопных элементов. В этом случае данное соединение можно рассматривать как некую смесь различных массовых компонент, являющихся в свою очередь совокупностью молекул равных по массе, но различных по изотопному составу (изобарные молекулы). В результате этого целевой изотоп может одновременно находиться в нескольких компонентах различных по массе, а молекулы одной массовой компоненты могут содержать несколько различных изотопов одного элемента. В этом случае говорят об изотопном перекрытии.

Изотопные перекрытия создают значительные трудности при разделении изотопов методами, в которых основной разделительный эффект обусловлен разностью молекулярных масс, ограничивая максимальное обогащение целевым изотопом в разделительных каскадах некоторой предельной величиной. Поэтому с помощью одного метода невозможно получить изотопный продукт высокого обогащения (выше 90 %).

Это ограничение можно преодолеть несколькими способами [1], одним из которых является использование всей совокупности реакций изотопного обмена, проводимых непосредственно в разделительном каскаде, в результате которых рабочее вещество в обеих фракциях каскада будет стремиться перейти в равновесное состояние, утраченное в каскаде в процессе разделения вследствие изотопного перекрытия. При этом в тяжелой фракции каскада легкие изотопы будут переходить из более тяжелых в более легкие массовые компоненты, а тяжелые, в свою очередь, из более легких — в более тяжелые. Ранее эту проблему пробовали решить, используя лазерный метод разделения. Обогащение в данном случае не превышало 30 %.

Целью работы являлось исследование возможности проведения реакций изотопного обмена в

диоксиде углерода непосредственно в каскаде газовых центрифуг и получения высокообогащенного изотопа  $^{13}\text{C}$ .

### Методика эксперимента

Проведение изотопного обмена в каскадах газовых центрифуг связано с целым рядом конструктивных и параметрических ограничений:

- реакция изотопного обмена должна быть гомолекулярной, протекать в одной фазе в специальном устройстве — реакторе изотопного обмена (далее реакторе);
- скорость протекания реакции должна быть достаточно высокой при низком давлении, соизмеримом с давлением в каскадных коммуникациях, и при сравнительно низкой температуре (повышение температуры газа отрицательно влияет на прочность ротора газовых центрифуг) для чего необходимо использование эффективного катализатора;
- конструкция реактора должна обеспечивать отсутствие выноса мелких частиц катализатора во внутренние полости каскада;
- реактор должен иметь компактные размеры, так как компоновка ступеней каскада не допускает установку в схему дополнительных устройств большого размера.

В соответствии с вышеперечисленными требованиями для проведения исследований был изготовлен опытный реактор изотопного обмена (рис. 1), представляющий собой цилиндрический сосуд — 1 объемом ~10 л, имеющий фланцевые соединения — 2 для засыпки катализатора — 3 и два вентиля — 4 для подачи и отвода рабочего газа. Во внутренней полости реактора перед входным и выходным патрубками помещалась мелкая металлическая сетка-фильтр — 5, отделяющая их от объема с катализатором. В местах вакуумных уплотнений использовали прокладки из фторопласта — 4.

В качестве рабочего вещества был выбран диоксид углерода ( $\text{CO}_2$ ), полученный в тяжелой фрак-

ции каскада центрифуг и имеющий неравновесный состав.

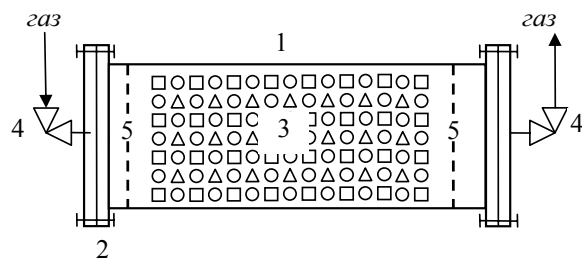


Рис. 1. Реактор изотопного обмена

Проведение реакции изотопного обмена при повышенной температуре обеспечивалось использованием подключаемого через лабораторный автотрансформатор (ЛАТР) внешнего ленточного нагревателя, намотанного по наружной поверхности реактора.

В качестве катализатора использовался измельченный материал никелевых фильтров газодиффузионного производства. Выбор данного материала обусловлен его высокой удельной поверхностью, которая была предварительно определена методом низкотемпературной абсорбции и составила  $\sim 3 \cdot 10^5 \text{ м}^2/\text{кг}$ , а также на основе имеющейся в литературе информации [2, 3] о высокой каталитической активности оксида никеля в отношении реакции изотопного обмена в молекулах  $\text{CO}_2$ .

Для исследования возможности и условий проведения реакции изотопного обмена в каскаде использовалась установка (рис. 2), в составе которой испытывался вышеуказанный реактор.

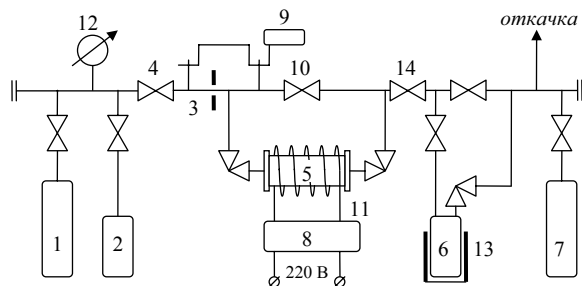


Рис. 2. Установка для исследования эффективности реактора изотопного обмена: 1) баллон с неравновесным  $\text{CO}_2$ ; 2) емкость; 3) расходомерная шайба; 4) регулировочный вентиль; 5) реактор изотопного обмена; 6) емкость конденсации; 7) баллон для сбора  $\text{CO}_2$ ; 8) ЛАТР; 9) оптический манометр; 10) байпасный вентиль; 11) ленточный нагреватель; 12) манометр; 13) сосуд Дьюара; 14) регулировочный вентиль

Емкость – 2 заполнялась из баллона – 1 неравновесным  $\text{CO}_2$  до давления  $\sim 100 \text{ гПа}$ , контролируемого с помощью манометра – 12. С помощью масс-спектрометра МИ-1201 производился анализ молекулярного состава  $\text{CO}_2$  и изотопного состава углерода и кислорода в емкости – 2. После этого  $\text{CO}_2$  подавался с определенным расходом, соответствующим межступенному потоку в каскаде в реактор изотопного обмена – 5 и собирался в емкости конденсации – 6, помещенной в сосуд Дьюара – 13

с жидким азотом. Необходимый расход газа задавался положением регулирующего вентиля – 4 и контролировался оптическим манометром – 9 по давлению перед тарированной расходомерной шайбой – 3. Давление в реакторе определялось положением регулировочного вентиля – 14. Для изменения температурного режима процесса реактор подогревался снаружи с помощью ленточного нагревателя – 11. Напряжение для его питания подавалось через ЛАТР. Для возможности передвижения газа, минуя реактор, был предусмотрен байпасный вентиль – 10. Время эксперимента определялось выбранным расходом газа. По окончании процесса производился масс-спектрометрический анализ молекулярного состава  $\text{CO}_2$  в емкости конденсации. Газ из емкости конденсации собирался в баллон – 7. По результатам масс-спектрометрических анализов рассчитывалась эффективность работы реактора по формуле:

$$I = \sqrt{\frac{\sum_i (C_{\text{HP}}^i - C_{\text{РИО}}^i)^2}{\sum_i (C_{\text{HP}}^i - C_{\text{P}}^i)^2}} \times 100\%,$$

где  $i$  – количество массовых компонент;  $C_{\text{HP}}^i$ ,  $C_{\text{РИО}}^i$  – измеренные концентрации массовых компонент исходного неравновесного  $\text{CO}_2$  и  $\text{CO}_2$  после реактора изотопного обмена;  $C_{\text{P}}^i$  – расчетные равновесные концентрации массовых компонент  $\text{CO}_2$ .

Полному изотопному обмену соответствует значение эффективности, равное 100 %. Расчет равновесных концентраций массовых компонент  $\text{CO}_2$  проводился по изотопному составу кислорода и углерода решением комбинаторной задачи по методике [1].

### Экспериментальные результаты

Эффективность работы реактора изотопного обмена исследована в диапазоне расходов  $(2,5 \dots 14) \cdot 10^{-6} \text{ кг/с}$  при давлении  $\sim 300 \text{ Па}$  и температуре 296 К. Была произведена также оценка влияния повышения рабочей температуры реактора до 353 К и увеличение на  $\sim 50 \%$  плотности засыпки катализатора на скорость реакции изотопного обмена. Данные представлены на рис. 3 в виде полиномиальной зависимости эффективности изотопного обмена от расхода  $\text{CO}_2$  через реактор.

По результатам проведенного исследования можно заключить, что при увеличении расхода газа через реактор с  $2,5 \cdot 10^{-6}$  до  $14 \cdot 10^{-6} \text{ кг/с}$  эффективность его работы снизилась примерно на 44 %.

Увеличение плотности засыпки катализатора привело к повышению эффективности работы реактора в среднем на  $\sim 15 \%$ . Наиболее значительное увеличение данной величины во всем исследуемом диапазоне расходов наблюдалось при увеличении рабочей температуры реактора изотопного обмена.

### Обсуждение результатов

Исследования показали принципиальную возможность использования реакций изотопного об-

мена в диоксиде углерода для получения высокообогащенных (более 99 %) изотопов углерода в центробежном каскаде.

В результате проведенных исследований испытан опытный реактор изотопного обмена и отработана методика проведения исследований. Исследованы различные режимы работы реактора изотопного обмена (температурный, по расходу газа и плотности засыпки катализатора). На основе данных исследований разработан новый способ получения высокообогащенного изотопа  $^{13}\text{C}$  в каскаде газовых центрифуг с использованием реактора изотопного обмена [4].

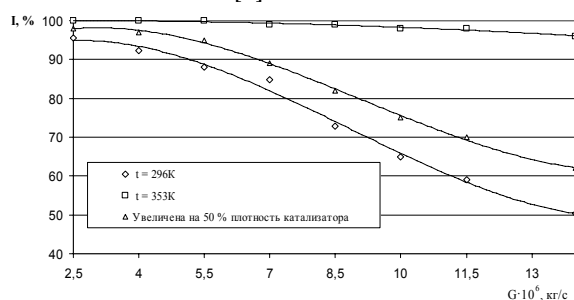


Рис. 3. Зависимость эффективности реактора изотопного обмена от расхода  $\text{CO}_2$

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Сазыкин А.А. Некоторые проблемы разделения полиизотопных смесей кинетическими методами // Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул. Сб. докл. 3-ей Всеросс. научной конф. — 05.10–09.10.1998, г. Звенигород. — Звенигород, 1998. — С. 103–110.
2. Боресков Г.К. Гетерогенный катализ. — М.: Наука, 1986. — 304 с.
3. Боресков Г.К. Катализ. Вопросы теории и практики. Избранные труды / Под ред. К.И. Замираева, Г.И. Панова. — Новосибирск: Наука, 1987. — 536 с.

По описанной методике можно исследовать изотопный обмен в других рабочих веществах, использующихся для получения различных изотопов на каскадах газовых центрифуг. При этом необходимо будет подобрать соответствующие катализаторы, обладающие достаточной активностью по отношению к реакциям изотопного обмена в молекулах данных веществ, и оценить эффективность работы реактора изотопного обмена с данными катализаторами в центрифужных каскадах.

#### Выводы

1. Показана принципиальная возможность проведения изотопного обмена в диоксиде углерода в процессе получения высокообогащенного изотопа  $^{13}\text{C}$  центробежным способом.
2. Исследованы различные режимы работы реактора изотопного обмена.
3. Реактор изотопного обмена испытан в составе каскада газовых центрифуг. Показано, что его использование позволяет получить изотоп  $^{13}\text{C}$  с обогащением выше 99 %.
4. На основании проведенных исследований разработан новый метод разделения изотопов  $^{13}\text{C}$ , признанный изобретением.

4. Пат. 2236895 РФ. МПК<sup>7</sup> B01D 59/20. Центробежный способ получения высокообогащенного изотопа  $^{13}\text{C}$  и устройство для проведения реакций изотопного обмена в каскаде газовых центрифуг / И.И. Пульников, А.В. Рябухин, В.В. Сенченко, Г.А. Шарин, А.А. Палиенко. Заявлено 10.04.2002; Опубл. 27.10.2003; Бюл. № 30 — 3 с.

Поступила 28.03.2008 г.