

метичное топливо составляет существенную долю среди ОТВС. Например, негерметичные твэлы реактора АМ составляют 20% от общего числа, поэтому возникает проблема обращения с такими твэлами.

Одно из решений данной проблемы состоит в том, чтобы залить межтрубное пространство ОТВС в пенале твердеющим материалом, который мог бы надежно зафиксировать ОТВС и предотвратить механическое разрушение стальных труб в течение 50-и лет. Такой материал называется фиксатором топлива, а сам процесс подготовки топлива для дальнейшего обращения называется кондиционированием. Материал, кроме того, должен выполнять функции защитного барьера – быть водостойким и предотвращать химическое выщелачивание радионуклидов.

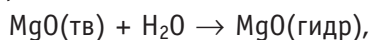
Фиксатор топлива (материал-герметизатор) также должен иметь хорошую текучесть, чтобы обеспечивать качественную заливку межтрубного пространства без образования воздушных областей. Отвердевший материал (компаунд) должен иметь высокую механическую прочность. Вязкость материала-герметизатора должна быть на уровне 100 сСт, а механическая прочность – 10 МПа. Учитывая, что фиксируемые трубы могут иметь высоту до 13-ти метров, время жизни материала-герметизатора должно быть не менее одного часа. Высокие текучесть и механическая прочность, а также длительное время жизни исходного материала являются необходимыми требованиями, предъявляемыми к материалу-герметизатору. Одним из материалов, используемых в качестве материала-герметизатора, может быть магнийалюмофосфатная композиция, приготовляемая на основе алюмофосфатного связующего [1–6]. Ранее этот материал использовался для обращения с радиоактивными отходами [1, 7].

Цель работы состоит в том, чтобы на основе экспериментальных данных по физико-химическим свойствам магнийалюмофосфатной композиции показать применимость этого материала-герметизатора для кондиционирования негерметичного отработанного ядерного топлива.

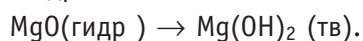
МЕХАНИЗМ ОБРАЗОВАНИЯ МАТЕРИАЛА-ГЕРМЕТИЗАТОРА

Материал-герметизатор на основе магнийалюмофосфатной композиции получают путем смешивания алюмофосфатного связующего с оксидами металлов в виде порошка, в результате чего образуется дисперсная система с химическим взаимодействием между связующим (дисперсионной средой) и порошком (дисперсной фазой). На начальном этапе основной реакцией является растворение порошка, которое на примере оксида магния $MgO(тв)$ происходит в результате следующих элементарных реакций.

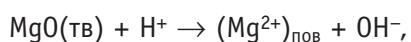
1. Поверхность оксида гидрализуется $MgO(гидр)$ с образованием пленки гидроокиси $Mg(OH)_2(тв)$. При взаимодействии порошка со связующим сначала происходит поверхностная гидратация оксида



а затем образуется пленка гидроокиси



2. Реакция с протоном



За реакцией растворения следует выделение новой фазы – гидрата. Как и для многих неорганических соединений в данном случае в результате химических реакций образуются коллоидные частицы, сорбирующие на своей поверхности как нейтральные, так и заряженные частицы среды. Происходит диспергирование

молекулярной среды и образование новой фазы [2, 3].

В результате образования гидратов исходный раствор становится пересыщенным в силу того, что растворение протекает быстрее, чем образование и выделение гидрата. В пересыщенном растворе протекает слипание частиц и образование твердой фазы [2]. Процесс твердения завершается кристаллизацией частиц, что обеспечивает материалу высокую механическую прочность.

Таким образом, магнийфосфатная композиция является самотвердеющим материалом, которая со временем образует прочный компаунд. Используя различные рецептуры можно регулировать текучесть, время отверждения, механическую прочность и другие свойства материала-герметизатора.

ФИЗИКО-МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА МАТЕРИАЛА-ГЕРМЕТИЗАТОРА

Для получения исходного состава материала-герметизатора использовали алюмофосфатное связующее, которое готовили при растворении $\text{Al}(\text{OH})_3$ в 65-процентном растворе ортофосфорной кислоты при температуре 100°C в реакционном сосуде с обратным холодильником. Весовое соотношение P_2O_5 : Al_2O_3 равно 3–4, а pH раствора – 1,5–1,8.

Порошок оксида магния с дисперсностью не более 50 мкм и алюмофосфатное связующее брали в соотношении 1,6:1 и размешивали до получения однородной массы, которая является исходным материалом-герметизатором. Экспериментально было установлено, что данный материал обладает текучестью (жизнеспособностью) в течение одного-двух часов. Вязкость исходного материала-герметизатора определялась с помощью вискозиметра ВЗ-246 и составляла 150–200 сСт.

В результате протекания физико-химических реакций (растворение, гидратация, перенос протона и др.) происходит разогрев материала. Температура разогрева определялась с помощью термодпары. Кинетика разогрева приведена на рис. 1. Максимальная температура разогрева составляла 55°C .

После отверждения материал-герметизатор имел плотность 1,5–1,8 г/см³. Испытания на механическую прочность на сжатие проводили с помощью лабораторного пресса. Экспериментальные данные приведены в табл. 1.

Монолит также испытывался на устойчивость к термическим циклам после замораживания и оттаивания в интервале температур от -12°C до $+40^\circ\text{C}$. После 30-ти циклов не было обнаружено трещин. В таблице также приведены экспериментальные данные по пористости, гигроскопичности и водопоглощению материала.

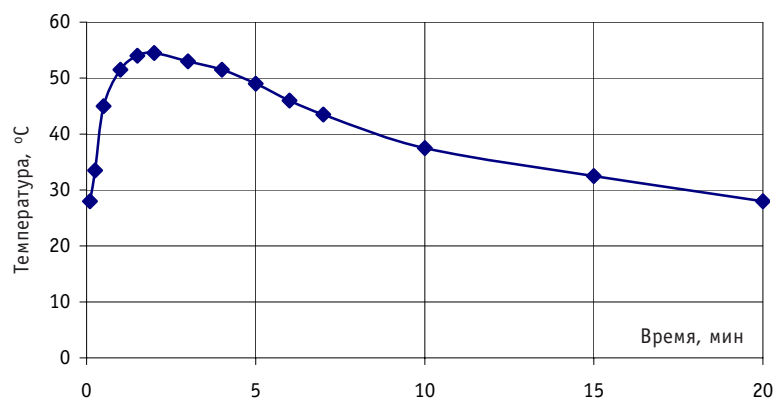


Рис. 1. Разогрев материала-герметизатора в процессе твердения

Таблица 1

Основные характеристики материала-герметизатора

Показатель	Значение
Технологические	
Жизнеспособность, ч	1 – 2
Вязкость, сСт	150 – 200
Температура разогрева в процессе применения, °С	55
Технические	
Плотность, г/см ³	1,5 – 1,8
Механическая прочность на сжатие, через пять часов, МПа, не менее	1
Прочность на сжатие, через 24 ч, МПа, не менее	2
Прочность на сжатие через восемь суток (полное отверждение), МПа, не менее	70
Усадка, %, не более	1
Устойчивость к термическим циклам после замораживания и оттаивания (–12 – +40°С), количество циклов	30
Пористость, масс. %	9
Гигроскопическая влажность, масс. %	6
Водопоглощение, масс. %	5

Пористость образца П определяли по формуле

$$П = (m_2 - m_1)/(m_2 - m_3),$$

где m_1 – масса высушенного образца; m_2 – масса образца, насыщенного водой; m_3 – масса образца в воде.

Гигроскопическую влажность Г определяли следующим образом:

$$Г = (m_1 - m_2)/m_1 \cdot 100\%,$$

где m_1 и m_2 – соответственно массы образца до сушки и после сушки при $t \sim 105$ – 110°C до постоянного веса.

Водопоглощение В определяли по формуле

$$В = (m_2 - m_1)/m_2 \cdot 100 \%,$$

где m_1 – масса высушенного образца при температуре 105 – 110°C до постоянного веса; m_2 – масса образца, насыщенного водой.

Химическая стойкость материала-герметизатора в среде воды. Испытываемые образцы из затвердевшего материала-герметизатора помещали в дистиллированную воду и выщелачивали их при комнатной температуре. Образцы, в основном, состоят из атомов магния и алюминия, поэтому анализ воды на содержание этих компонентов проводили с помощью атомно-эмиссионного спектрографа. Скорость выщелачивания компонентов монолита определяли по формуле

$$R = m_1/[(m_2/m) \cdot S \cdot t],$$

где m_1 – масса компонента в растворе; m_2 – масса компонента в образце; m – масса образца; S – площадь поверхности образца; t – время.

Экспериментальные данные представлены на рис. 2. Через три месяца уровень выщелачивания компонентов монолита, образующегося при затвердении материала, в воду был не более $8,3 \cdot 10^{-7}$ г/(см²·сут), что свидетельствует о водоустойчивости материала-герметизатора по отношению к растворению в воде.

Выщелачивание радионуклидов. Для испытаний монолита на выщелачивание радионуклидов изготавливались образцы в виде цилиндров из затвердевшего материала-герметизатора, содержащие радионуклиды ^{90}Sr и ^{137}Cs . Образцы помеща-

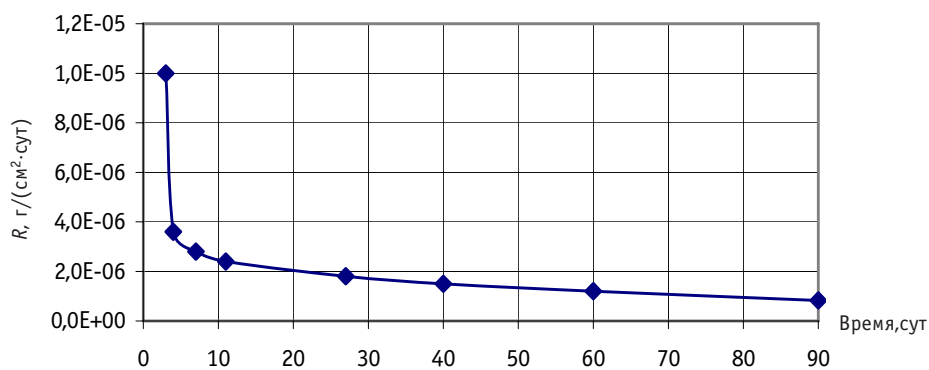


Рис. 2. Выщелачивание основных компонентов материала-герметизатора (магний, алюминий) в воду

ли в дистиллированную воду. Анализ проб воды проводили с помощью радиоспектрометра «Бета 1С». Скорость выщелачивания радионуклидов определяли по формуле

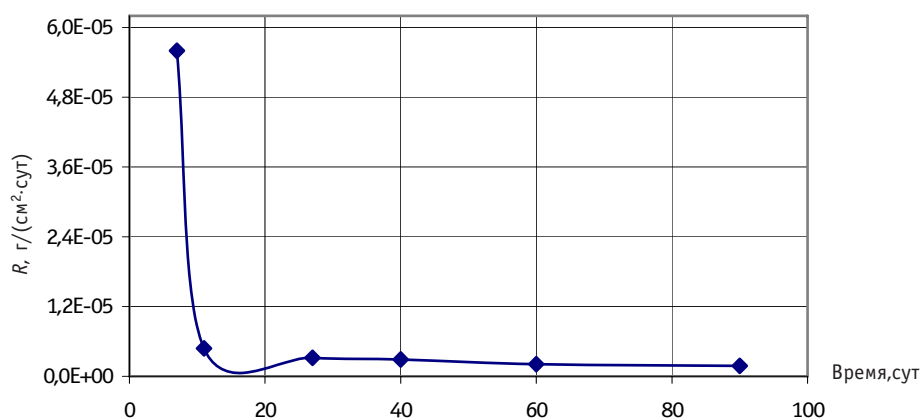


Рис. 3. Скорость выщелачивания Sr-90 из структуры материала-герметизатора в воду

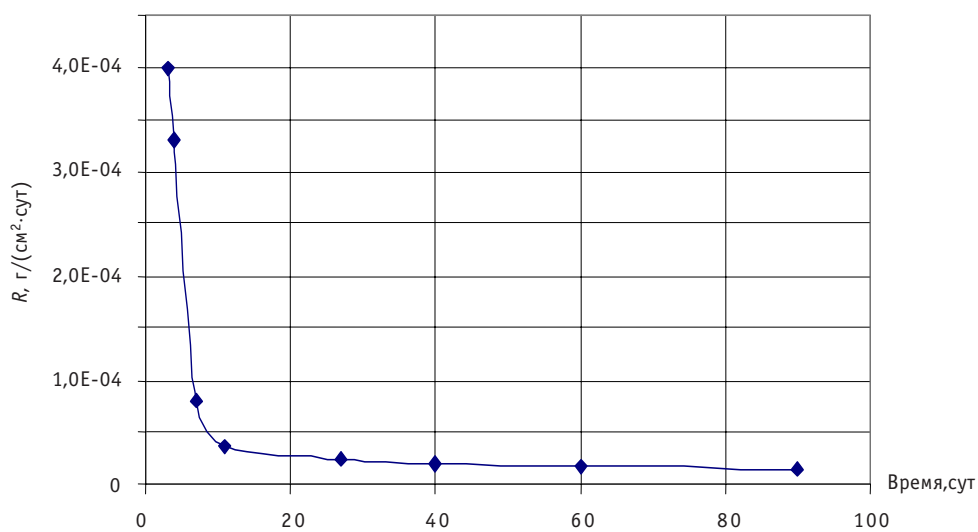


Рис. 4. Скорость выщелачивания Cs-137 из структуры материала-герметизатора в воду

$$V = A_p / [(A_0 / m) \cdot S \cdot t],$$

где A_p – активность радионуклида в воде; A_0 – исходная активность радионуклида в образце. Экспериментальные данные представлены на рис. 3–4.

Скорость выщелачивания ^{90}Sr через три месяца была не более $1,8 \cdot 10^{-6}$ г/(см²·сут). Это величина сопоставима со скоростью выщелачивания основных компонентов ($8,3 \cdot 10^{-7}$ г/(см²·сут)), образующих структуру монолита. Следовательно, радионуклид ^{90}Sr достаточно прочно фиксируется в структуре монолита.

Скорость выщелачивания ^{137}Cs через три месяца была не более $1,5 \cdot 10^{-5}$ г/(см²·сут), что на порядок больше чем для ^{90}Sr . Таким образом, отвердевший материал-герметизатор надежно изолирует радионуклиды ^{90}Sr и ^{137}Cs от проникновения их в окружающую среду.

В дальнейших исследованиях нами будут выполнены эксперименты по влиянию добавок в виде оксидов металлов на физико-химические свойства материала-герметизатора и получены данные по выщелачиванию урана.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Экспериментальное исследование магнийалюмофосфатного компаунда показало, что данный материал-герметизатор применим для обращения не только с РАО, но и с негерметичным ядерным топливом.

Исходный жидкий материал-герметизатор имеет высокую текучесть, которая сохраняется не менее часа. Это позволяет надежно осуществить заливку межтрубного пространства ОТВС с негерметичными твэлами. При отверждении материала образуется компаунд, химически стойкий к воде и прочно удерживающий радионуклиды стронция и цезия в своей структуре.

Работа выполнена в рамках проекта РФФИ 09-03-01099-а.

Литература

1. Коварская Е.Н. и др. Низкотемпературная фосфатная керамика для иммобилизации низкоактивных отходов/Тез. докл. Международной конф. «Радиоактивные отходы. Хранение, транспортировка, переработка. Влияние на человека и окружающую среду» (Санкт-Петербург, 14-18.10.1996).
2. Сычев М.М. Неорганические клеи. – Л.: Химия, 1974. – 157 с.
3. Копейкин В.А., Петрова А.П., Рашковин И.Л. Материалы на основе металлофосфатов. – М.: Химия, 1976.
4. Шидловская О.В., Румянцев П.Ф., Ермилов В.И. О применении магнийфосфатного цемента // Цемент. – 1989. – № 11. – С. 18-19.
5. Захаров И.А., Крылова З.Ф., Лапин Е.А. Вяжущие материалы в ракетно-космической технике // Цемент. – 1996. – № 6. – С. 42-45.
6. Махова Г.П., Старков О.В., Сухонос В.Я., Шелякова И.Б. Консервант на основе алюмофосфатной связки и способ его приготовления. Патент на изобретение № 2271588 от 12.04.2004.
7. Патент US 5880045 A (Brookhaven Science Associates) 09.03.1999.

Поступила в редакцию 2.04.2010

УДК 621.039.54

Conditioning of not Tight Spent Nuclear Fuel with use of Magnum-Phosphate Compound \V.J. Suhonosov, A.N. Nikolaev, S.A. Nikolaev, I.E. Somov, O.V. Suhoverhova, V.A. Chernov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2010. – 6 pages, 4 illustrations. – References, 7 titles.

For conditioning of not tight spent nuclear fuel it is offered to use magnum-phosphate substantiation. It is experimentally shown that the initial material has high fluidity which remains within not less hour. It will allow to carry out reliably pouring of intertrumpet space of not tight spent nuclear fuel. At hardening of materials it is formed compound with density of 1,5–1,8/cm³. The material possesses functions of a protective barrier: it is not dissolved in the water; entered radionuclides strontium and cesium are strongly fixed in material structure.

УДК 621.039.5: 681.587.72

Updating of Set Neutron Silicon Doping using IRT-T \T.H. Badretdinov, A.G. Goryunov, V.A. Varlachev; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2010. – 5 pages, 2 illustrations. – References, 7 titles.

Updated electric drive of the automated complex of neutron silicon doping using research nuclear reactor IRT-T of Tomsk Polytechnic University is introduced. Gearless complete low-speed electric drive provides the necessary reliability and extended trouble free operation service life, ease of control, management and maintenance, meets the modern requirements of ergonomics. It is a mass product and has acceptable price. The laboratory tests were carried out. Recommended for use.

НАШИ АВТОРЫ

Амосов П.В. – к.т.н., с.н.с. Горного института КНЦ РАН, доцент кафедры теплофизики Кольского филиала Петрозаводского государственного университета. E-mail: vosoma@goi.kolasc.net.ru.

Амосов С.В. – ведущий инженер лаборатории стендовых исследований топлива ядерных реакторов ОАО «ГНЦ НИИАР».

Анисонян В.Р. – в 2005 г. окончил Государственный инженерный университет Армении (бывший Ереванский политехнический институт) по специальности «Эксплуатация АЭС». В 2009 г. окончил очную аспирантуру ИАТЭ. В настоящее время работает в ЭНИМЦ «Моделирующие системы». Область научных интересов – расчеты с использованием CFD-кода OpenFOAM в рамках проекта специализированного медицинского реактора MAPC.

Анишев Е.Ю. – к.т.н., главный специалист ОАО «ОКБМ Африкантов». Тел. (831) 246-96-41.

Баранов Ю.Д. – начальник лаборатории ГНЦ РФ-Физико-энергетического института им. А.И. Лейпунского (ГНЦ РФ-ФЭИ). Тел. (48439)9-82-66.

Башкиров Н.И. – заведующий лабораторией контроля радиоактивного загрязнения окружающей среды ГУ «Томский ЦГМС». Тел. (3822)53-21-29.

Валетова Н.К. – старший научный сотрудник ГУ НПО «Тайфун». Тел. (48439)7-18-05.

Витушкина Н.М. – к.ф.-м.н., старший научный сотрудник ГНЦ РФ-ФЭИ. E-mail: vita_nm@mail.ru.

Глебов А.П. – к.т.н., ведущий научный сотрудник ГНЦ РФ-ФЭИ. Тел. (48439)9-88-69.

Горбунов В.С. – к.т.н., ведущий инженер-конструктор ОАО «ОКБМ Африкантов». Тел. (831) 246-94-40.

Грицюк С.В. – аспирант Обнинского института атомной энергетики НИЯУ МИФИ (ИАТЭ НИЯУ МИФИ). Закончил факультет кибернетики ИАТЭ в 2007 г., участник нескольких международных проектов по созданию систем поддержки принятия решений. Область научных интересов – распределенные системы, многокритериальный анализ решений, разработка и применение систем поддержки принятия решений, Java-технологии.

Диденко В.И. – заведующий лабораторией ИТ ИАТЭ НИЯУ МИФИ. Закончил факультет кибернетики ИАТЭ в 1998 г. Участник нескольких международных проектов по разработке систем поддержки принятия решений и анализу рисков. Область научных интересов – распределенные системы, разработка и применение ГИС поддержки принятия решений, анализ рисков, Java-технологии.

Дунаев Г.Е. – научный сотрудник ГУ НПО «Тайфун».

Зайцев А.А. – к.т.н., начальник лаборатории ГНЦ РФ-ФЭИ. E-mail: aluk@ippe.ru.

Кабанов А.И. – помощник главного инженера ГУ НПО «Тайфун» по радиационной безопасности. Тел. (48439)7-17-32.

Казанцев А.А. – к.т.н., доцент ИАТЭ НИЯУ МИФИ, зав. лабораторией теплофизического моделирования в ЭНИМЦ «Моделирующие системы». В 1981 г. окончил Обнинский филиал Московского инженерно-физического института. Область научных интересов – разработка моделей основного технологического оборудования, моделирование двухфазных потоков для тренажеров АЭС, расчеты с использованием CFD-кода OpenFOAM.