

Изоляция радиоактивных отходов с использованием горячего изостатического прессования

Приведены основные положения физико-технического обоснования и применения горячего изостатического прессования (ГИП) для решения проблемы надежной консолидации радиоактивных отходов атомной энергетики. Рассмотрены различные технологические схемы для реализации процесса ГИП, который предлагается использовать как для иммобилизации радиоактивных отходов в защитные матрицы, так и капсулирования отработанного ядерного топлива в защитные контейнеры. Представлены основные результаты научно-технологических разработок и исследований в этом направлении.

Ключевые слова: иммобилизация радиоактивных отходов, капсулирование отработанного ядерного топлива, горячее изостатическое прессование, защитные керамические формы.

С. Ю. Саенко

Ізоляція радіоактивних відходів з використанням гарячого ізостатичного пресування

Відображено основні положення фізико-технічного обґрунтування і застосування гарячого ізостатичного пресування (ГІП) для вирішення проблеми надійної консолідації радіоактивних відходів атомної енергетики. Розглянуто різні технологічні схеми для реалізації процесу ГІП, який пропонується використовувати як для іммобілізації радіоактивних відходів у захисні матриці, так і капсулювання відпрацьованого ядерного палива у захисні контейнери. Представлено основні результати науково-технологічних розробок і досліджень у цьому напрямку.

Ключові слова: іммобілізація радіоактивних відходів, капсулювання відпрацьованого ядерного палива, гаряче ізостатичне пресування, захисні керамічні форми.

© С. Ю. Саенко, 2015

Потенциал атомной энергетики может быть реализован только при условии безопасности всех этапов топливного цикла. С экологической точки зрения данный тип производства электроэнергии имеет неустранимый недостаток — наработку радиоактивных отходов (РАО) в виде эксплуатационных РАО и отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Этот недостаток может быть скомпенсирован надежной локализацией РАО, что предоставляет ядерной энергетике существенное преимущество по сравнению с тепловой [1].

Исследования и разработки по проблеме обращения с РАО проводятся в Украине с 1980-х годов [2, 3]. Примерно в это же время началось интенсивное развитие перспективной отрасли науки и техники — порошковой металлургии и, в частности, разработка и создание немаetalлических материалов (керамик разного рода), изготавливаемых чаще всего путем высокотемпературного компактирования порошков. Как показали модельно-расчетные и экспериментальные исследования, по многим характеристикам такие материалы могут с успехом использоваться при решении проблемы иммобилизации РАО [4, 5]. Среди основных технологий консолидации дисперсного материала с целью получения плотных изделий с заданными свойствами наиболее перспективным оказался метод горячего изостатического прессования (ГИП).

Целью настоящей работы является краткий обзор сфер применения, основных параметров и некоторых результатов использования метода горячего изостатического прессования. Особое внимание уделено применению метода ГИП для иммобилизации РАО, в частности созданию защитных матриц и контейнеров с радиоактивными материалами из специально разработанной радиационно- и коррозионностойкой керамики.

Анализ литературных данных и постановка проблемы. Горячее изостатическое прессование — обработка заготовок комбинированным воздействием высокого давления и высокой температуры в газовой среде с целью уплотнения материала, поэтому процесс ГИП часто называют газостатическим прессованием или газостатированием.

Основным элементом оборудования для реализации процесса ГИП является специальный сосуд высокого давления — газостат. Символично, что идея создания газостата впервые в 1956 году была предложена в Баттельском мемориальном институте (США) для использования именно в атомной области — для обработки топливных элементов ядерного реактора [6]. Этот газостат имел, по сравнению с современными сосудами, весьма скромные параметры: внутренний диаметр контейнера — 49 мм, высота — 533 мм; максимальное давление рабочей среды (гелия) составляло 35 МПа, температура — до 800 °С.

С тех пор газостаты прошли большой путь от уникального лабораторного оборудования до современных промышленных установок. При этом требования к современному оборудованию включают не только обеспечение возможности обработки заготовок при заданных параметрах рабочей среды, но и достаточную производительность и экономичность процесса.

Для обеспечения работы газостата необходимы система создания давления, системы нагрева и охлаждения, системы управления и контроля. К основным параметрам, характеризующим газостат, относятся максимально допустимые значения рабочего давления и температуры рабочей среды, а также размеры внутривспешного (рабочего) пространства. Для разных производственных и исследовательских задач газостатическое оборудование имеет конструктивно различное решение. Ведущими мировыми

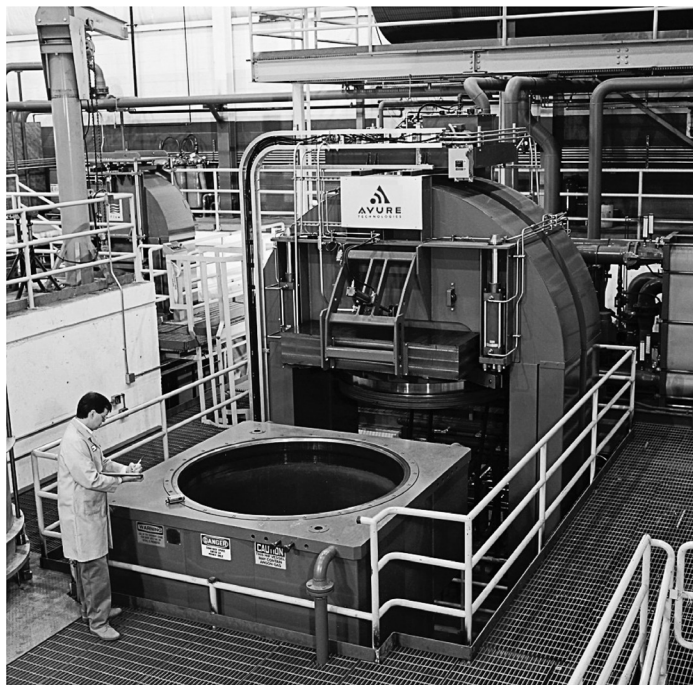


Рис. 1. Промышленный газостат фирмы ASEA (Швеция)

производителями газостатов являются Швеция, США, Россия, Бельгия и Япония. Рабочее пространство некоторых газостатов составляет до 1250 мм в диаметре и до 2500 мм в высоту; максимальные рабочее давление — до 200 МПа, а температура — до 1400 °С. Такие газостаты позволяют ежедневно обрабатывать тонны металлических, керамических и керметных материалов (рис. 1).

Несмотря на большие возможности крупных промышленных установок, нельзя не учитывать роль лабораторных исследовательских газостатов, предназначенных в основном для отработки ГИП-технологий.

В ННЦ ХФТИ работы, направленные на создание газостатического оборудования и разработку технологий на основе метода ГИП, ведутся с 1986 года. В рамках совместных исследований со специалистами Радиевого института (Санкт-Петербург) по разработке технологии иммобилизации ВАО в защитные матрицы на основе композиции Synroc была спроектирована и изготовлена установка газостатического прессования ГАУС-4/125035 (максимальное рабочее давление 400 МПа, температура до 1250 °С, диаметр и высота рабочей зоны 35 мм и 150 мм, соответственно, рис. 2).

Основу газостатических установок составляют газостат и газовый компрессор. Корпус газостата представляет собой двухслойный цилиндр, внутри которого расположена электропечь сопротивления и который герметизируется резьбовыми торцевыми затворами. Отличительной особенностью данных установок является применение разработанного в ННЦ ХФТИ компрессора типа КРИТ [7, 8], действие которого основано на последовательном охлаждении и отогреве рабочего газа (аргона), благодаря чему он имеет ряд преимуществ перед традиционными механическими компрессорами.

Метод ГИП был использован при отработке технологии изготовления керметных стержней для разрабатываемых твэлов водо-водяного ядерного реактора [9]. Горячее изостатическое прессование сборки заготовок, имитирующих

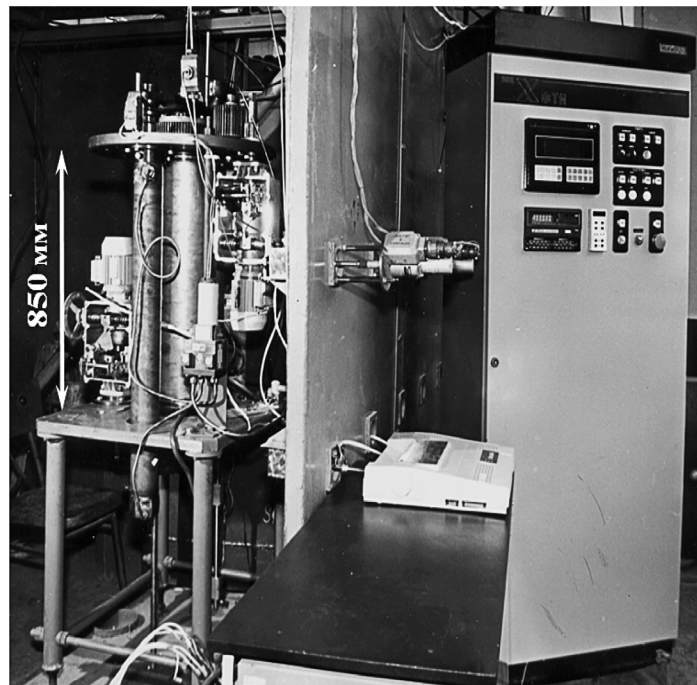


Рис. 2. Внешний вид лабораторной ГИП-установки ГАУС-4/1250-35

топливные стержни, в жидком стекле осуществляли при температуре около 1000 °С и давлении 800 МПа в течение 20 с. На рис. 3 представлен фрагмент спрессованной и выдавленной из стакана сборки керметных стержней.

Кроме порошковой металлургии, горячее изостатическое прессование с успехом используется в таких отраслях народного хозяйства, как самолетостроение, машиностроение и химическая промышленность. Например, в самолетостроении при изготовлении рабочих лопаток газотурбинных двигателей, для которых применяются полученные методом литья современные жаропрочные сплавы, технология ГИП позволяет устранить усадочную пористость и оптимизировать микроструктуру. Экспериментально

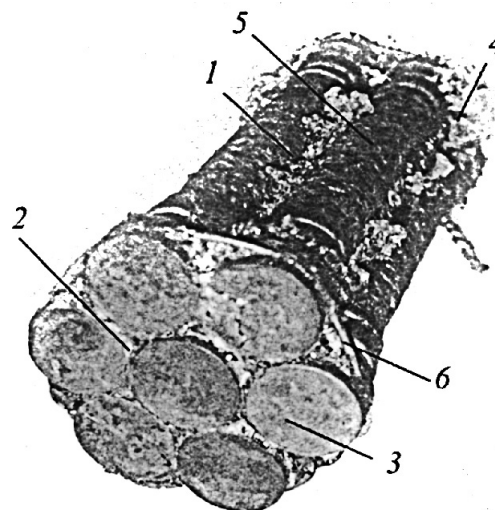


Рис. 3. Внешний вид сборки заготовок после ГИП-обработки и выдавливания из стакана: 1, 2 — зазор между заготовками (2 мм) и торцевыми поверхностями заглушек (1 мм), заполненный стеклом; 3 — заглушка заготовки; 4 — стекло; 5 — заготовки; 6 — проволока

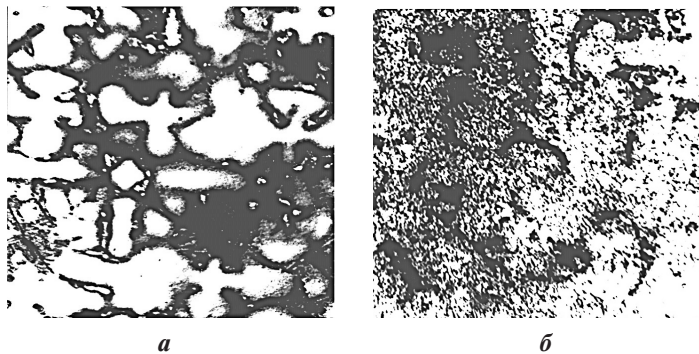


Рис. 4. Микроструктура монокристаллов сплава ЖС32-ВИ: а — в литом состоянии; б — после ГИП обработки, $\times 200$

показано [10], что после ГИП-обработки на установке ГАУС-4 образцов из монокристаллического жаропрочного никелевого сплава ЖС32-ВИ достигнуто полное устранение литейной пористости, а также растворение неравновесной $(\gamma+\gamma')$ -эвтектики до содержания 0,4 % (в литом образце выделения эвтектики составляли до 2 %), рис.4.

По своим прочностным свойствам, достаточной коррозионной стойкости и низкой себестоимости титановые сплавы γ -TiAl представляют альтернативу жаропрочным никелевым сплавам. Результаты проведенных в ННЦ ХФТИ исследований влияния газостатической обработки на структуру и свойства отливок из γ -TiAl сплавов (давление аргона 220 МПа, температура около 1300 °С, выдержка 5 ч) показали перспективность использования метода ГИП для получения титановых сплавов с оптимизированными пластическими характеристиками [11]. Многие результаты исследований, выполняемых на лабораторных газостатических установках в различных странах, внедряются в соответствующие отрасли промышленности при использовании крупногабаритного газостатического оборудования. Традиционно, промышленные газостаты позволяют проводить ГИП-обработку изделий при температуре до 1350 °С и давлении до 200 МПа. В Украине газостатическая обработка деталей авиастроения в промышленных масштабах в настоящее время проводится на ПАО «МоторСич» с использованием шведского газостата «Quintus» (QIN 0,9 \times 1,5) [12]. В ядерной отрасли технология ГИП может быть применена для решения проблемы надежной изоляции радиоактивных отходов АЭС. Исследования по использованию метода горячего изостатического прессования в этой области развиваются по двум основным направлениям: капсулирование ОЯТ в специальные контейнеры и иммобилизация ВАО в керамические матрицы.

Среди всех радиоактивных отходов АЭС наиболее опасны высокоактивные отходы и, непосредственно, отработанное ядерное топливо. Относительно обращения с ОЯТ и, в частности, с ВАО, возникающими при его переработке, в настоящее время большинство стран, в том числе Украина, придерживаются концепции «отложенного решения»: предусматривается длительное контролируемое хранение ОЯТ (более 50 лет) в стабильных защитных упаковках для последующей переработки или геологического захоронения [13]. Единственным на сегодняшний день методом промышленного масштаба подготовки ВАО к длительному хранению или захоронению является остекловывание [14]. Однако действие высокой температуры, обусловленной радиоактивным распадом иммобилизованных отходов, может вызвать кристаллизацию стекла, что ухудшает защитные качества монолитного защитного

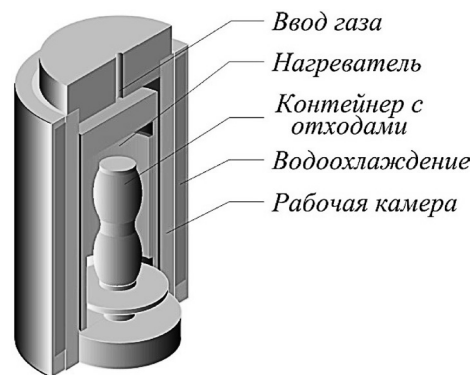


Рис. 5. Элементы камеры ГИП

блока. Поэтому наряду с остекловыванием разрабатывают и другие методы иммобилизации отходов, например метод керамизации. В отличие от гомогенного распределения радионуклидов в стекле, в кристаллических матрицах они занимают определенные места в решетке. При правильном подборе матричной композиции керамические матрицы обладают повышенной прочностью удержания радионуклидов по сравнению с метастабильным стеклом.

Перспективной керамической матрицей для иммобилизации ВАО является композиция Synroc (synthetic rock) — титанатная минералоподобная керамика, разработанная австралийскими учеными и состоящая из холландита $BaAl_2Ti_6O_{16}$, цирконолита $CaZrTi_2O_7$, перовскита $CaTiO_3$ и рутила TiO_2 [15]. Высокоактивные отходы могут быть внедрены в кристаллические решетки фаз керамической матрицы, причем первые три минерала способны принимать в свои структуры почти все элементы, присутствующие в ВАО. Технология керамизации основана на процессах химического осаждения и термообработки растворов, содержащих ВАО в смеси с компонентами, составляющими композицию Synroc. Процесс синтеза композиции Synroc успешно реализован и в ННЦ ХФТИ с использованием метода горячего изостатического прессования [16]. Таким образом, показана перспективность использования ГИП для капсулирования ОЯТ в специальные контейнеры и иммобилизация ВАО в керамические матрицы. В связи с этим проблема оптимизации процесса ГИП-обработки с целью получения защитных материалов с повышенными физико-механическими характеристиками является актуальной и требует всестороннего исследования.

Международный опыт разработки методов ГИП для иммобилизации радиоактивных отходов. Как отмечалось ранее, идея технологии ГИП была предложена в 50-х годах прошлого столетия в США [6] и начала применяться с начала 60-х годов в качестве исследовательского инструмента при изготовлении экспериментального топлива и реакторных материалов. Использование газа для передачи давления предполагает, что материал должен либо содержаться в герметичном сосуде (канистра или капсула), либо предварительно спекаться в агломерат с закрытой пористостью для возможности осуществления процесса уплотнения. Чтобы избежать попадания газа высокого давления в поры или пустоты, из канистры предварительно должен быть удален газ.

Использование технологии ГИП для производства защитных форм с радиоактивными отходами было впервые предложено в 1970-х годах [17]. Основные элементы процесса ГИП представлены на рис. 5. Главный элемент установки ГИП — сосуд высокого давления,

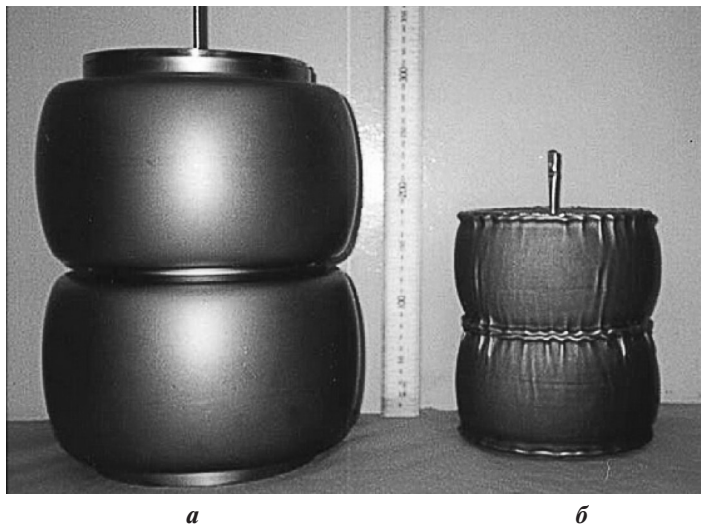


Рис. 6. Внешний вид канистры до (а) и после ГИП-обработки (б); содержание композиции Synroc — 13,5 кг

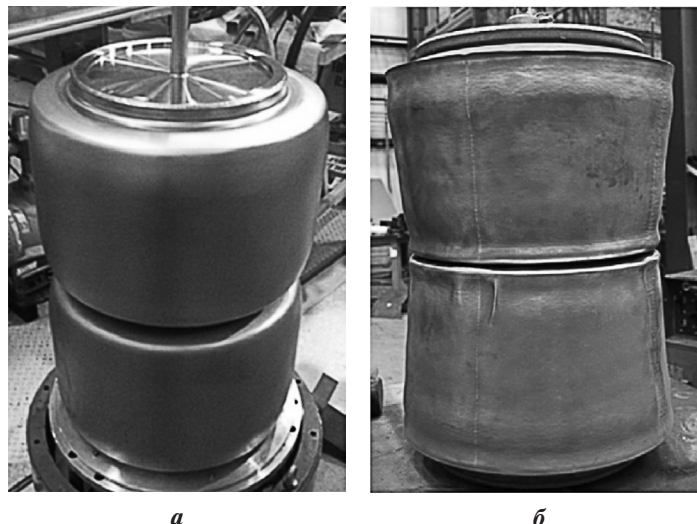


Рис. 7. Канистры емкостью 100 л, содержащие 170 кг отходов для иммобилизации в матрицу Synroc, до (а) и после ГИП-обработки (б)

в котором происходит обработка изделий в атмосфере аргона при давлении до 200 МПа; максимальный диаметр образцов — 30 см.

Лабораторная установка ГИП была разработана в 1970-х годах в Национальной лаборатории Айдахо (США) для консолидации порошкообразных радиоактивных отходов с обработкой до 100 кг отходов цеолитного типа за один технологический цикл [18]. При этом использовался керамический материал Synroc-D, разработанный в Ливерморской национальной лаборатории (США) для защитных форм отходов атомных станций США [19, 20]. Консолидация осуществлялась с помощью либо ГИП, либо горячего одноосного прессования в металлических контейнерах. Эти методы предпочтительнее спекания без давления, поскольку позволяют быстрее получать требуемую плотность материала (время выдержки 10 мин; давление 28 МПа; температура 1100 °С) [21], а также обрабатывать большие объемы отходов. Так, проектная мощность завода с применением данной технологии оценивалась в 1,45 т/день [22].

Одним из лидеров в области разработки процессов ГИП-обработки для иммобилизации РАО является ANSTO (Australian Nuclear Science and Technology Organisation) — Австралийская научно-технологическая организация. Здесь используются установки ГИП для обработки керамики и стеклокерамики в диапазоне температур 900...1300 °С и давлений 20...100 МПа.

В технологии ГИП канистры обычно изготавливаются из нержавеющей стали, иногда — из никеля. Обычно толщина стенки канистры составляет несколько миллиметров, чтобы получить удовлетворительные свойства порошков при их прессовании (плотность прокаленного порошка при загрузке перед процессом ГИП целесообразно увеличить, чтобы избежать чрезмерной деформации и значительных отклонений от цилиндрической геометрии). Канистры в форме гантели позволяют сохранить почти цилиндрическую форму после осуществления ГИП (рис. 6).

Основная функция металлической канистры — обеспечить уплотнение порошка во время ГИП-обработки. Кроме этого, она изолирует отходы, предотвращая распространение радиационного загрязнения. Канистра также сохраняет летучие радиоизотопы в процессе консолидации при высокой

температуре. Тестирование показало, что взаимодействие между керамическими и стеклокерамическими отходами с оболочкой канистры минимально, чем и обеспечивается целостность защитной формы при ГИП-обработке [23].

Начиная с 1980-х годов, специалисты ANSTO проводили разработки технологии кондиционирования РАО с помощью ГИП для промышленной реализации совместно с американской компанией AIP (American Isostatic Presses Inc) [24]. Был разработан и продемонстрирован технологический процесс ГИП-обработки имитационных РАО с использованием канистр емкостью 100 л, содержащих до 200 кг отходов (рис. 7), что позволяет иммобилизовать порядка 10 000 м³ отходов в год [25].

Отработанное ядерное топливо и ВАО, возникающие при его переработке, относятся к основным негативным и наиболее опасным последствиям деятельности человека в сфере использования ядерной энергии. Общеизвестно, что для создания безопасных условий предварительного хранения отработавшие тепловыделяющие сборки (ОТВС), имеющие перспективу захоронения (например, негерметичные ОТВС), подлежат омоноличиванию. Для разработки соответствующей технологии шведскими учеными проведен большой комплекс исследований по оптимизации как состава защитных материалов, так и технологических аспектов процесса капсулирования ОЯТ. В области создания защитных форм для радиоактивных отходов Швеция является первой страной, которая использовала ГИП-технологии с перспективой промышленной реализации. Полученные результаты исследований и промышленных разработок позволяют считать, что одним из наиболее проработанных в мировой практике подходов к проблеме изоляции ОЯТ в настоящее время является шведский вариант капсулирования отработавших сборок в медную монолитную защитную форму для окончательного захоронения в глубинные геологические формации (рис. 8). Этот подход предусматривает использование ГИП-технологии для получения сплошной толстостенной медной оболочки, окружающей ОЯТ [26].

Таким образом, применение метода ГИП в сфере иммобилизации радиоактивных отходов обеспечивает:

воздействие всестороннего равномерного статического давления при высокой температуре — оптимальные

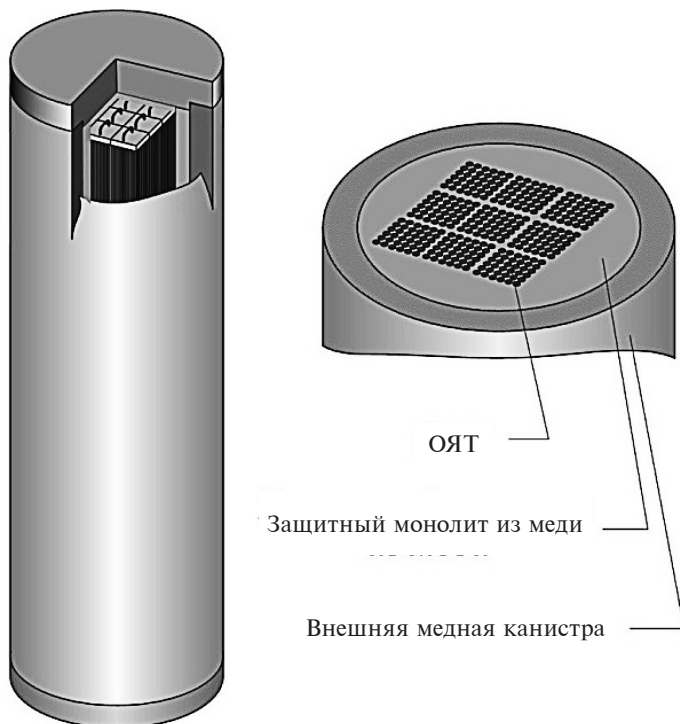


Рис. 8. Шведский вариант капсулирования сборок ОЯТ в медные контейнеры методом ГИП

условия для спекания порошковых и синтеза минералоподобных материалов;

возможность получения максимально плотного материала, т. е. минимизацию объема утилизируемых отходов; гибкость технологии — возможность выбора параметров ГИП в зависимости от типа РАО в широком диапазоне; отсутствие непосредственного контакта между капсулируемыми в специальном контейнере отходами и оборотованием, т. е. отсутствие вторичных отходов.

Результаты научно-технологических исследований в ННЦ ХФТИ. Опыт получения керамических материалов специального назначения и технические возможности экспериментального оборудования (в первую очередь газостатические установки) преопределили направленность деятельности в этой сфере:

создание радиационно- и коррозионностойких барьерных и матричных материалов на основе керамических и стеклокерамических композиций;

обоснование и разработка оборудования и технологических схем для реализации процесса капсулирования ВАО и ОЯТ.

Надежным решением проблемы длительного хранения или захоронения РАО является включение радионуклидов в кристаллические структуры, аналогичные природным минералам, которые содержат радиоактивные элементы и сохраняют радиационную и коррозионную стойкость на прогнозируемое время. Выше было упомянуто об успешном применении процесса горячего изостатического прессования в ННЦ ХФТИ при создании минералоподобной керамической матрицы состава Synroc для иммобилизации высокоактивных отходов [16]. Этот опыт был использован при разработке стеклокерамических минералоподобных материалов алюмосиликатного состава, предназначенных для применения в качестве элементов защитной формы при капсулировании ОЯТ.

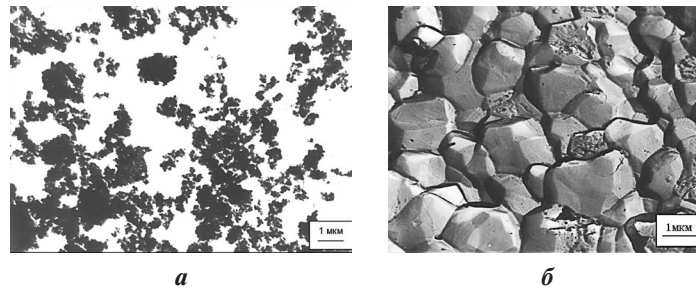


Рис. 9. Керамика состава $ZrO_2-3\% Y_2O_3$:
а — исходный наноразмерный порошок; б — микроструктура образцов, изготовленных горячим квазиизостатическим прессованием

Минералоподобную стеклокерамику из порошковых композиций на основе смеси природных компонентов (гранит + каолин) получали по двухстадийной схеме: предварительное спекание на воздухе для реализации начальных стадий формирования кристаллических фаз и последующее спекание под давлением с целью устранения пористости и формирования стеклокристаллической фазы. Вторая стадия была реализована с помощью горячего изостатического прессования на лабораторной установке ГАУС-4/1250-35. Расчетно-экспериментальным анализом были оптимизированы, в зависимости от состава порошковой композиции, параметры ГИП-обработки: давление аргона 100–150 МПа; температура 920 °С; время выдержки 3–5 ч. Исследования полученного материала продемонстрировали его высокие физико-механические свойства: например, прочность на изгиб составила 190–200 МПа. Коррозионные испытания (водная среда, 90 °С, 100 сут) показали коррозионную стойкость, соответствующую уровню наиболее стойких минералоподобных композиций. Имитационное γ -облучение до доз $0,5 \cdot 10^8$ Гр не вызвало существенных структурных и фазовых изменений в материале [5]. Результаты проведенных комплексных исследований позволяют сделать вывод о функциональной пригодности разработанных материалов для использования в качестве защитной формы с целью капсулирования ОЯТ.

Метод ГИП был использован при создании керамики с повышенной радиационной и коррозионной стойкостью, обеспеченной наноразмерной структурой на основе диоксида циркония, частично стабилизированного оксидом иттрия состава ($ZrO_2 - 3\% \text{ мол. } Y_2O_3$). Традиционно для получения спеченных образцов применяли трехступенчатый процесс: предварительное прессование исходных нанопорошков при комнатной температуре, спекание приготовленных компактов на воздухе при 1100...1300 °С в течение 2...6 ч, на завершающей стадии — горячее изостатическое прессование в атмосфере аргона при 1150...1350 °С в течение 2...3 ч [27]. В ННЦ ХФТИ получение наноструктурной керамики из порошка указанного состава реализовано с помощью лабораторной установки горячего квазиизостатического вакуумного прессования [28] при прямом пропускании электрического тока через графитовую пресс-форму при температуре 1500...1600 °С, давлении 45 МПа и времени выдержки 2 мин (рис. 9).

Исследования и опытно-конструкторские разработки, проводимые в ННЦ ХФТИ в направлении капсулирования ОЯТ, основываются на том, что отработавшие тепловыделяющие сборки не должны герметизироваться по несколько штук в многотонные защитные контейнеры. Более надежным вариантом считается использование металлической капсулы объемом на одну ОТВС. Другим

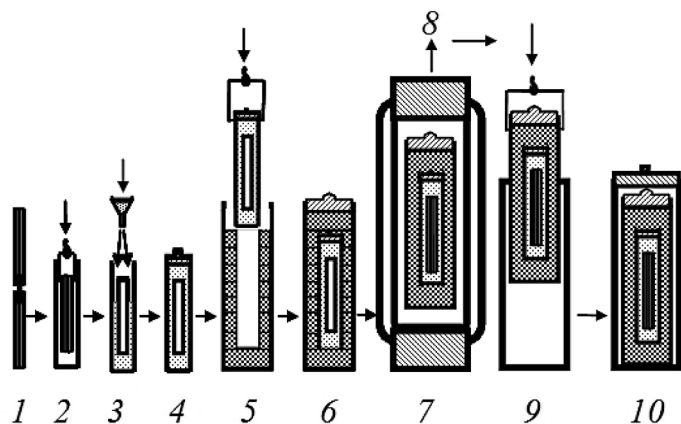


Рис. 10. Схема капсулирования отработавшей ТВС

обязательным условием нашего подхода к осуществлению процесса капсулирования ОЯТ является многобарьерность защиты, что реализуется созданием многослойной капсулы из радиационно- и химически-стойких иммобилизационных и барьерных материалов.

С учетом вышеуказанных условий разработан метод капсулирования с помощью горячего изостатического прессования одной ОТВС РБМК внутри многослойной капсулы с иммобилизационным слоем из керамического материала (рис. 10).

В соответствии с технологической схемой капсулирования ОТВС, отработавшая сборка, предварительно разрезанная пополам (1), вначале загружается во внутреннюю стальную капсулу (2), засыпается керамическим порошком (3) и герметизируется (4). Капсула помещается внутрь барьерного слоя (5), который сформирован предварительно спеченными керамическими втулками и торцевыми заглушками, загруженными в наружную капсулу из коррозионностойкой стали. После дегазации и герметизации наружной капсулы (6) применяется метод горячего изостатического прессования (7), а затем опрессованная ОТВС помещается в специальную канистру для хранения (8–10). Использование газостатической обработки капсулы обеспечивает не только достижение высокой плотности спрессованного материала, но и деформацию металлической оболочки, в результате чего она входит в плотный контакт с сердечником.

Омоноличенные ОТВС могут рассматриваться как подготовленные для безопасного длительного хранения или последующего глубинного геологического захоронения. Система многобарьерной защиты монолитного блока способна предотвратить загрязнение окружающей среды радиоактивными веществами при хранении ОЯТ, а также обеспечить коррозионную защиту от внешних природных воздействий.

В процессе отработки технологической схемы выполнен обширный комплекс работ по исследованию как разработанных защитных материалов, так и технологических аспектов процесса капсулирования имитационной ОТВС [29–31]. Необходимым оборудованием при этом являлась лабораторная газостатическая установка ГАУС-4. Размер рабочей зоны газостата служил определяющим фактором в выборе геометрических параметров макетов, при конструировании которых стремились к соблюдению геометрического подобия макетов и полнотражных изделий.

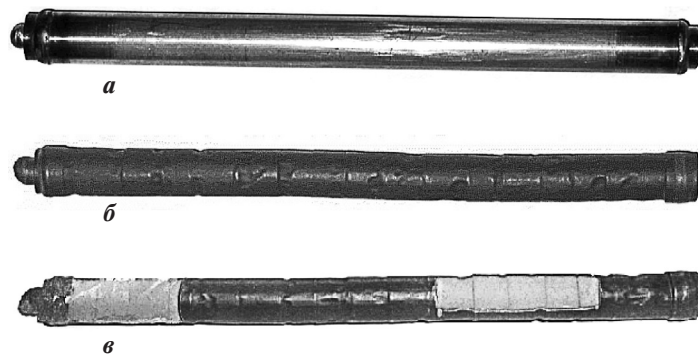


Рис. 11. Внешний вид капсул для макетных исследований: а — исходная капсула; б и в — капсулы после горячего изостатического прессования

Лабораторные исследования метода капсулирования имитаторов ТВС, а также модельно-расчетный и экспериментальный анализы позволили:

выбрать перспективную конструкцию капсулы для изоляции ОТВС РБМК;

определить исходные геометрические параметры наружной металлической оболочки, обеспечивающие сохранение первоначальной правильной цилиндрической формы капсулы (избежать появления продольных гофров, искривления капсулы, появления источников микротрещин, рис. 11);

предложить схему цикла горячего изостатического прессования для получения монолитного бездефектного длиномерного керамического блока, организовав процесс изменения температуры и давления в рабочем пространстве газостата так, чтобы гарантированно избежать появления растягивающих напряжений в керамическом материале барьерного слоя.

Таким образом, применение сравнительно дорогостоящего метода ГИП с целью иммобилизации РАО оправдано уникальными возможностями, предоставляемыми данной технологией:

получением иммобилизационных керамических материалов с плотностью, близкой к теоретической;

использованием сырья из сравнительно дешевых природных горных пород для создания коррозионно- и радиационностойких барьерных материалов;

получением сплошного толстостенного барьерного слоя, состоящего из отдельных заготовок (втулок, днища и крышки), за счет их диффузионной сварки, которая реализуется в процессе ГИП-обработки.

Выводы

Представлены основные характеристики, области применения и некоторые результаты использования прогрессивной технологии обработки материалов давлением — горячего изостатического прессования. Кроме порошковой металлургии, в которой эта технология имеет безусловное преимущество среди способов консолидации порошков, она с успехом используется и в других отраслях науки и техники. В работе приведены некоторые примеры эффективного применения ГИП-обработки различных изделий при решении разных технических задач.

В ядерной отрасли применение процесса ГИП перспективно при создании радиационно- и коррозионно-стойких защитных матричных керамических композиций

(керамизация ВАО), в частности с целью иммобилизации высокоактивных отходов. Другим направлением работ в этой области является формирование защитных форм для кондиционирования отходов атомной энергетики, в частности капсулирования ОЯТ.

Показана роль и эффективность разработанного в ННЦ ХФТИ метода омоноличивания ОТВС РБМК внутри многослойной капсулы с иммобилизационным слоем из керамического материала с помощью горячего изостатического прессования как при изготовлении элементов защитной формы из порошковых композиций, так и на заключительном этапе формирования многослойной защитной капсулы.

Разработка технологий кондиционирования и омоноличивания радиоактивных материалов в механически прочные, коррозионно- и радиационностойкие защитные формы на основе минералоподобной керамики с использованием процессов горячего изостатического прессования способствует решению проблемы надежной изоляции радиоактивных отходов атомных станций.

Список использованной литературы

1. Розвиток ядерної енергетики в Україні / Васильченко В. М., Константинов М. І., Литвинський Л. Л., Пуртов О. А. // Ядерна енергетика та довілля. — 2013. — № 1. — С. 7—13.
2. Ядерная энергетика. Обращение с отработанным ядерным топливом и радиоактивными отходами / Ажажа В. М., Белоус В. А., Габелков С. В., Джур Е. А., Крикун Ю. А., Левенец В. В., Лисиченко Г. В., Неклюдов И. М., Саенко С. Ю., Тарасов Р. В., Шиляев Б. А., Широков Б. М., Шур А. В.; под ред. И. М. Неклюдова. — К. : Наук. думка, 2006. — 253 с.
3. Радиоактивные отходы Украины. Состояние, проблемы, решения / Авдеев О. К., Кретинин А. А., Леденев А. И., Скворцов В. В., Удод В. В., Шахов А. А.; под ред. Э. В. Собоновича. — К. : ДрУк, 2003. — 400 с.
4. Sayenko S. Yu. Encapsulation of the Spent Fuel Assemblies Using Defence Mineral-Like Barriers / Sayenko S. Yu., Kantsedal V. P., Tarasov R. V. // Proc. Conference "Waste Disposal". — 1998. — P. 425—429.
5. Саенко С. Ю. Стеклокерамические материалы на основе природных компонентов для изоляции отработанного ядерного топлива : Дис. ... канд. техн. наук 05.01.02. — Харьков, 2003. — 125 с.
6. Hanes H. D. Hot isostatic processing. High pressure science and technology / Hanes H.D. // Proc. Conference "Sixth AIPART". — 1977. — V. 2. — P. 633—650.
7. Канцедал В. П. Разработка и создание технологического исследовательского комплекса на базе ГИП оборудования для иммобилизации высокоактивных отходов / Канцедал В. П., Лаврук А. Г., Старченко А. В. // ВАНТ. Сер.: ФРП и РМ. — 1998. — № 3(69), 4(70). — С. 92—93.
8. Неклюдов И. М. Создание газостатического оборудования для отработки процессов кондиционирования высокоактивных отходов / Неклюдов И. М., Саенко С. Ю., Ашихмин В. П. // Энергетика и электрификация. — 2005. — № 7. — С. 52—55.
9. Гаврилин С. С. Горячее изостатическое прессование стержней керметного твела / Гаврилин С. С., Стафеева Н. В., Бойко И. Г. // Атомная энергия. — 2012. — Т. 112. — № 6. — С. 331—335.
10. Ажажа В. М. Структурные изменения в жаропрочных никелевых сплавах при баротермической обработке / Ажажа В. М., Свердлов В. Я., Саенко С. Ю. // Физика и химия обработки материалов. — 2007. — № 1. — С. 83—87.
11. Вплив баротермічної обробки на структуру та властивості γ -TiAl сплавів / Голтвяниця В. С., Цивірко Е. І., Саенко С. Ю., Холмоєв Г. О. // Металознавство та обробка металів. — 2008. — № 1. — С. 30—35.
12. Модельно-расчетный анализ влияния параметров газостатической обработки на кинетику устранения пор в жаропрочных никелевых сплавах / Саенко С. Ю., Ажажа Ж. С., Холмоєв Г. А., Пилипенко А. В., Клочихин В. В. // Тр. XX Междунар. конф. по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению. — 2012. — С. 155—156.
13. Афанасьев А. А. Оценка и сравнение вариантов ЯТЦ с переработкой и прямым захоронением ОЯТ АЭС Украины с учетом существующей кооперации в области ЯТЦ и развития новых подходов в других странах // Ядерні та радіаційні технології. — 2005. — Т. 5. — № 1. — С. 4—14.
14. Саенко С. Ю. Технологические подходы для обеспечения безопасности при обращении с радиоактивными отходами / Саенко С. Ю. // Энергетика: економіка, технології, екологія. — 2007. — № 2(21). — С. 27—35.
15. Hoeng C. L. Large scale densification of an unclear waste ceramic by hot isostatic pressing / Hoeng C. L., Larker H. T. // J. Amer. Ceram. Soc. Bul. — 1983. — V. 62. — № 12. — P. 1389—1390.
16. Шабалин Б. Г. Синтез и исследование свойств кристаллических матриц типа SYNROC для иммобилизации радиоактивных отходов / Шабалин Б. Г., Канцедал В. П., Саенко С. Ю. // ВАНТ. Сер. ФРП и РМ. — 1998. — № 3(69), 4(70). — С. 89—91.
17. Tegman R. Hot-isostatic pressing of ceramic waste forms / Tegman R. // InterCeram. — 1985. — № 3. — P. 35—38.
18. Unirradiated testing of the demonstration scale ceramic waste form at ANL-west / Goff K. M., Simpson M. F., Bateman K. J., Esh D. W., Rigg R. H., Yapuncich F. L. // Trans. Amer. Nucl. Soc. — 1997. — V. 77. — P. 79—84.
19. Larker H. T. Scientific Basis for Nuclear Waste Management, Edition G. J. McCarthy, Plenum, London, UK. — 1979. — P. 207—212.
20. High-alumina tailored nuclear waste ceramics / Morgan P. D., Clarke D. R., Jantzen C. M., Harker A. B. // J. Amer. Ceram. Soc. — 1981. — V. 64. — P. 249—258.
21. Basalt Waste Isolation. Project approach to develop models in Scientific Basis for Nuclear Waste Management / Campbell J. H., Hoeng C. L., Ackerman F. J., Peters P. E., Grens J. Z. — Edition W. Lutze, North Hol. Publ. — 1982. — P. 599—605.
22. SYNROC technology for immobilizing U.S. defense wastes / Newkirk H. W., Hoeng C. L., Ryerson F. J., Rozsa R. B. // J. Amer. Ceram. Soc. Bul. — 1982. — V. 61. — № 5. — P. 559—566.
23. Zirconolite-rich titanate ceramics for immobilisation of actinides: waste form/HIP can interactions and chemical durability / Zhang Y., Stewart M. W., Li H., Carter M. L., Vance E. R., Moricca S. // J. Nucl. Mat. — 2009. — V. 395. — P. 69—74.
24. Larker H. T. HIP / Larker H. T. // Proc. Conference on Hot Isostatic Pressing, 1987, Sweden. — 1988. — P. 19—25.
25. Ramm E. J. In-bellows calcination of alkoxide precursor to synroc / Ramm E. J., Vance E. R. // Ceram. Trans. — 1990. — V. 9. — P. 57—64.
26. Concepts for the Conditioning of Spent Nuclear Fuel Waste Disposal : Technical Reports Series No. 345, IAEA, 1992. — 123p.
27. Chaim R. Densification studies of synroc for high-level defense / Chaim R., Hefet M. // J. Mater. Res. — 1998. — № 13. — P. 1875—1879.
28. Получение нанокерамики на основе диоксида циркония методом горячего вакуумного прессования / С. Ю. Саенко, Н. Н. Белаш, Э. С. Геворкян, Т. Е. Константинова, А. Е. Сурков, В. А. Чишкала, И. А. Даниленко, Ф. В. Белкин // Физика и техника высоких давлений. — 2008. — Т. 18. — № 1. — С. 47—52.
29. Саенко С. Ю. Экологическая безопасность при хранении радиоактивных отходов: разработка защитных материалов на основе высокопрочных керамик / Саенко С. Ю. // Сб. науч. тр. СНУЭиП. — 2010. — № 3(35). — С. 92—101.
30. Исследование капсулирования отработавшей ТВС РБМК горячим изостатическим прессованием / Ажажа Ж. С., Габелков С. В., Линник Ю. А., Ледовская Л. Н., Неклюдов И. М., Саенко С. Ю., Пилипенко А. В., Тарасов Р. В., Холмоєв Г. А. // Атомная энергия. — 2007. — № 6. — С. 347—352.
31. Капсулирование горячим изостатическим прессованием поврежденных твэлов: технологический подход и макетные эксперименты / С. Ю. Саенко, Ж. С. Ажажа, Г. А. Холмоєв, А. В. Пилипенко, С. В. Габелков, Р. В. Тарасов // Ядерна та радіаційна безпека. — 2009. — № 3. — С. 36—39.

References

1. *Vasilchenko, V. M., Konstantinov, M. I., Litvinskii L. L., Pur-tov O.A.* (2013), "Development of Nuclear Energy in Ukraine" [Rovz-tok yadernoi enerhetyky v Ukraini], *Yaderna enerhetyka ta dovkillya*, No. 1, pp. 7–13. (Ukr)
2. *Azhazha, V. M., Belous, V. A., Gabelkov, S. V., Dzhur, Ye. A., Krikun, Yu. A., Levenets, V. V., Lysyuchenko, G. V., Nekliudov, I. M., Saienko, S. Yu., Tarasov, R. V., Shylyiaiev, B. A., Shyrokov, B. M., Sch-ur, A. V.* (2006), "Nuclear Energy. Spent Nuclear Fuel and Radioactive Waste Management" [Yadernaia energetika. Obrashcheniie s otrabotan-nyim yadernym toplivom i radioaktivnymi otkhodami], Kyiv, Naukova dumka, 253 p. (Rus)
3. *Avdeev, O. K., Kretinin, A. A., Ledenev, A. I., Skvortsov, V. V., Udod, V. V., Shakhov, A. A., Sobotovich, E. V.* (2003), "Radioactive Waste of Ukraine. Conditions, Problems, Solutions" [Radioaktivnyie otkhody Ukrainy. Sostoianiiie, problemy, resheniia], Kyiv, DrUk, 400 p. (Rus)
4. *Sayenko, S. Yu., Kantsedal, V. P., Tarasov, R. V.* (1998), "En-capsulation of the Spent Fuel Assemblies Using Defense Mineral-Like Barriers", Proc. Conference "Waste Disposal", pp. 425–429.
5. *Sayenko, S. Yu.* (2003), "Glass-Ceramic Materials Based on Natural Components for Spent Nuclear Fuel Isolation" [Steklokeramicheskiiie materialy na osnove prirodnykh komponentov dlia izoliatsii otrabotannogo yadernogo topliva], PhD Thesis dated 5 January 2002, Kharkiv, 125 p. (Rus)
6. *Hanes, H. D.* (1977), "Hot Isostatic Processing. High Pressure Science and Technology", Proc. Conference "Sixth AIPART", V. 2, pp. 633–650.
7. *Kantsedal, V. P., Lavruk, A. G., Starchenko, A. V.* (1998), "De-sign and Construction of Process Research Facility Based on Hot Iso-static Pressing Equipment for Immobilization of High-Level Waste" [Razrabotka i sozdaniie tekhnologicheskogo issledovatel'skogo kompleksa na baze GIP oborudovaniia dlia immobilizatsii vysokoaktivnykh otkhodov], VANT, Ser. FRP I RM, No. 3(69), 4(70), pp. 92–93. (Rus)
8. *Nekliudov, I. M., Sayenko, S. Yu., Ashikhmin, V. P.* (2005), "De-velopment of Gasostatic Equipment for Exercising High-Level Waste Conditioning Processes" [Sozdaniie oborudovaniia dlia otrabotki protsessov konditsionirovaniia vysokoaktivnykh otkhodov], Energetika i elektrifikatsiia, No. 7, pp. 52–55. (Rus)
9. *Gavrilin, S. S., Stafeieva, N. V., Boyko, I.G.* (2012), "Hot Isostat-ic Pressing of Cermet Fuel Rods" [Goriacheie izostaticheskoiie pressovaniie sterzhnei kermetnogo tvela], Atomnaia energiia, V. 112, No. 6, pp. 331–335. (Rus)
10. *Azhazha, V. M., Sverdlov, V. Ya., Sayenko, S. Yu.* (2007), "Struc-tural Changes in Hot-Resistant Nickel Alloys During Barothermic Treatment" [Strukturnyie izmeneniia v zharoprochnykh nikelovykh splavakh pri barotermicheskoi obrabotke], Fizika i khimiia obrabotki materialov, No. 1, pp. 83–87. (Rus)
11. *Holtvianytzia, V. S., Tsyvirko, E. I., Sayenko, S. Yu., Kholomei-ev, H. O.* (2008), "Impact of Barothermic Treatment on Structure and Properties of γ -TiAl Alloys" [Vplyv barotermichnoi obrobky na struk-turu ta vlastyivosti γ -TiAl splaviv], Metaloznavstvo ta obrobka metaliv, No. 1, pp. 30–35. (Ukr)
12. *Sayenko S. Yu., Azhazha, Zh. S., Kholomeev, G. A., Pylypen-ko, A. V., Klochikhin, V. V.* (2012), "Model and Calculation Analysis of Impact of Gasostatis Treatment Parameters on Kinetics of Pore Filling in Hot-Resistant Nickel Alloys" [Modelno-raschetnyi analiz vliianiia parametrov gazostaticheskoi obrabotki na kinetiku ustrane-niia por v zharonikelevykh splavakh], XX International Conference on Physics of Radiation Phenomena and Radiation Material Science, pp. 155–156. (Rus)
13. *Afanasyev, A. A.* (2005), "Assessment and Comparison of NFC Options with Processing and Direct Disposal of SNF of Ukrainian NPPs Taking into Account Existing Cooperation in NFC Area and Development of New Approaches in Other Countries" [Otsenka i sravneniie variantov YaTTs s pererabotkoi i priamym zakhroneniim OYaT AES Ukrainy s uchetom sushestvuiushei kooperatsii v oblasti YaTs I razvitiia novykh podkhodov v drugikh stranakh], Yaderni ta radiatsiini tekhnolohii, V. 5, No. 1, pp. 4–14. (Rus)
14. *Sayenko, S. Yu.* (2007), "Process Approaches to Ensure Safety during Radioactive Waste Management" [Tekhnologicheskiiie podkhody dlia obespecheniia bezopasnosti pri obrashchenii s radioak-tivnymi otkhodami], Energetyka: ekonomika, tekhnolohii, ekolohiia, No. 2(21), pp. 27–35. (Rus)
15. *Hoenig, C. L., Larker H. T.* (1983), "Large Scale Densification of a Nuclear Waste Ceramic by Hot Isostatic Pressing", J. Amer. Cer-am. Soc. Bul., V. 62, No. 12, pp. 1389–1390.
16. *Shabalin, B. G., Kantsedal, V. P., Sayenko, S. Yu.* (1998), "Syn-thesis and Study of Properties of SYNROC Type Crystal Matrixes for Radioactive Waste Immobilization" [Sintez i issledovaniie svoystv kristallicheskikh matrits tipa SYNROC dlia immobilizatsii radioaktivnykh otkhodov], VANT, Ser. FRP i RM, No. 3(69), 4(70), pp. 89–91. (Rus)
17. *Tegman, R.* (1985), "Hot Isostatic Pressing of Ceramic Waste Forms", Interceram, No. 3, pp. 35–38.
18. *Goff, K. M., Simpson, M. F., Bateman, K. J., Esh, D. W., Rigg, R. H., Yapuncich, F. L.* (1997), "Unirradiated Testing of the Dem-onstration Scale Ceramic Waste Form at ANL-west", Trans. Amer. Nucl. Soc., V. 77, pp. 79–84.
19. *Larker, H. T.* (1979), "Scientific Basis for Nuclear Waste Man-agement", Edition G. J. McCarthy, Plenum, London, UK, pp. 207–212.
20. *Morgan, P. D., Clarke, D. R., Jantzen, C. M., Hark-er, A. B.* (1981), "High-Alumina Tailored Nuclear Waste Ceramics", J. Amer. Ceram. Soc., V. 64, pp. 249–258.
21. *Campbell, J. H., Hoenig, C. L., Ackerman, F. J., Peters, P. E., Grens, J. Z.* (1982), "Basalt Waste Isolation. Project Approach to De-velop Models in Scientific Basis for Nuclear Waste Management", Edi-tion W. Lutze, North Hol. Publ., pp. 599–605.
22. *Newkirk, H. W., Hoenig, C. L., Ryerson, F. J., Roz-sa, R. B.* (1982), "SYNROC Technology for Immobilizing U.S. De-fense Wastes", J. Amer. Ceram. Soc. Bul., V. 61, No. 5, pp. 559–566.
23. *Zhang, Y., Stewart, M. W., Li, H., Carter, M. L., Vance, E. R.* (2009), "Morica S. Zirconolite-Rich Titanate Ceramics for Immobilization of Actinides: Waste Form/HIP Can Interactions and Chemical Durability", J. Nucl. Mat., V. 395, pp. 69–74.
24. *Larker H. T.* (1988), "HIP", Proc. Conference on Hot Isostatic Pressing, Sweden, pp. 19–25.
25. *Ramm, E. J., Vance, E. R.* (1990), "In-Bellows Calcination of Alkoxide Precursor to Synroc", Ceram. Trans., V. 9, pp. 57–64.
26. Concepts for the Conditioning of Spent Nuclear Fuel Waste Disposal: Technical Reports Series No. 345, IAEA, 1992, 123 p.
27. *Chaim, R., Hefet, M.* (1998), "Densification Studies of Synroc for High-Level Defense", J. Mater. Res., No. 13, pp. 1875–1879.
28. *Sayenko, S. Yu., Belash, N. N., Gevorkian, E. S., Konstanti-nova, T. E., Surkov, A. Ye., Chishkala, V. A., Danilenko, I. A., Bel-kin, F. V.* (2008), "Nanoceramics Based on Zirconium Dioxide Using Hot Vacuum Pressing Method" [Polucheniie nanokeramiki na osnove dioksida tsirkoniia metodom goriachego vakuumnogo pressovaniia], Fizika i tekhnika vysokikh davlenii, V. 18, No. 1, pp. 47–52. (Rus)
29. *Sayenko, S. Yu.* (2010), "Environmental Safety during Radio-active Waste Storage: Design of Protective Materials Based on High Strength Ceramics" [Ekologicheskaiia bezopasnost pri khraneniia radioaktivnykh otkhodov: razrabotka zaschitnykh materialov na osnove vysokoprochnykh keramik], Proceedings of SNUNEI, No. 3(35), pp. 92–101. (Rus)
30. *Azhazha, Zh. S., Gabelkov, S. V., Linnik, Yu. A., Ledovska-ya, L. N., Nekliudov, I. M., Sayenko, S. Yu., Pilipenko, A. V., Tara-sov, R. V., Kholomeev, G. A.* (2007), "Examination of Capsulation of Spent Fuel Assembly at RBMK Using Hot Isostatic Pressing" [Issle-dovaniie kapsulirovaniia otrabotavshei TVS RBMK goriachim izostat-icheskim pressovaniem], Atomnaia energiia, No. 6, pp. 347–352. (Rus)
31. *Sayenko, S. Yu., Azhazha, Zh. S., Kholomeev, G. A., Pilipen-ko, A. V., Gabelkov, S. V., Tarasov, R. V.* (2009), "Capsulation Using Hot Isostatic Pressing of Damaged Fuel Rods: Process Approach and Dummy Tests" [Kapsulirovaniie goriachim izostaticheskim pressova-niim povrezhdennykh tvelov: tekhnologicheskii podkhod i maketnyie eksperimenty], Nuclear and Radiation Safety, No. 3, pp. 36–39. (Rus)

Получено 03.02.2015.