

УДК УДК 628.4.038

Т.А. Кулагина¹, д-р техн. наук, В.А. Кулагин¹, д-р техн. наук, В.А. Попков², канд. техн. наук (¹Сибирский федеральный университет, г. Красноярск, Россия; ²Радиохимический завод Горно-химического комбината, г. Железногорск, Россия). E-mail: v.a.kulagin@mail.ru

ЭКОЛОГИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ КАВИТАЦИОННОЙ ТЕХНОЛОГИИ ОБРАЩЕНИЯ С РАДИАТИВНЫМИ ОТХОДАМИ

Введение

Важность работы определяется необходимостью разработки новых эффективных и наукоемких технологий обращения с отработавшим ядерным топливом с учетом исключения вредного воздействия на окружающую среду при долговременном хранении.

В соответствии с Международной Конвенцией о безопасности обращения с радиоактивными отходами на всех его этапах должны быть обеспечены эффективные средства защиты отдельных лиц, общества в целом и окружающей среды от вредного воздействия радионуклидов и ионизирующего излучения, как в настоящее время, так и в будущем [1-7]. Хотя количество радиоактивных отходов по сравнению с другими техногенными отходами ничтожно мало (приблизительно 0,5 % от всех промышленных отходов), их специфика требует совершенствования и разработки новых технологий обращения с ними и применения специальных методов обеспечения безопасности для человека и биосферы. С точки зрения долговременной безопасности наиболее важным этапом обращения с радиоактивными отходами является их длительное хранение и захоронение.

В России создана собственная правовая и организационная система обеспечения и регулирования ядерной и радиационной безопасности [5, 7-9]. Краткий обзор методов обращения с радиоактивными отходами РАО приведен в [10].

Наиболее широко используемым в настоящее время процессом отверждения жидких радиоактивных отходов низкого и среднего уровней активности является включение жидких радиоактивных отходов (ЖРО) в неорганические вяжущие (процесс цементирования). Образующийся при цементировании продукт обладает целым рядом достоинств: высокая механическая прочность, является не горючим, радиационно и химически устойчив, пониженное внешнее излучение цементных материалов из-за высокой плотности.

Повышенные требования безопасности хранения отходов полученных от переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) приводят к необходимости использования принципиально иных наукоемких технологий, в частности, эффектов кавитационной технологии, достаточно легко

реализуемой, энергоэффективной и в ряде случаев не имеющей альтернативы.

Физическая модель кавитационного гидротермодинамического воздействия, может быть представлена двумя основными механизмами: распространением ударных волн вблизи схлопывающихся кавитационных микропузырьков и ударным действием кумулятивных микроструек при их несимметричном коллапсе. При этом реализуются поля высоких температур (до 15000 °С) и давлений (до 10000 атм.). Скорость кумулятивных струек может достигать 500 м/с. Явление сопровождается интенсивным турбулентным микроперемешиванием и механотермолизом воды с образованием H_2 , O_2 , H_2O_2 и свободных водородных связей и многое другое. Таким образом, локальная область вблизи схлопывающегося кавитационного микропузырька является уникальным реактором для проведения различных реакций и технологических процессов, проводимых при нормальных внешних физических условиях [11-13].

Существуют несколько форм и слоев отходов, которые неоднородны во всех фазах технологического процесса, при этом выделяют три основные формы [14]:

жидкость - состоит из воды, растворенных солей и других химических соединений и располагается над плотными слоями или между ними, иногда погружаясь в солевой осадок;

солевой осадок – кристаллизованные солевые отходы, образующиеся поверх ила, в основном растворимые в воде;

ил (пульпа) – плотный нерастворимый в воде компонент, который осаждается на дне резервуара, образуя толстый слой переменной консистенции.

В настоящее время на предприятиях ядерно-энергетического цикла во всём мире возникли проблемы по переработке высокоактивных отходов, накопленных за последние полвека. Практика показала, что длительное хранение активных жидких отходов приводит к накоплению твердого осадка – пульпы. Именно эта форма отходов и является наиболее сложной с точки зрения переработки и утилизации, что предопределяет необходимость решения ряда технологических задач, в том числе:

оценка влияния температуры на кинетику физико-химических процессов в застывающей цементной массе и в конечном итоге на качество получаемого бетона;

определение влияния физико-химических свойств кавитационно обработанной воды на качество получаемого цементного компаунда.

1. Численное исследование температурного поля в стандартной 200-литровой бочке-контейнере для хранения ОЯТ

Рассмотрим результаты исследований температурного поля в стандартной 200-литровой бочке для трех различных процессов: охлаждения воды и цементного компаунда, выделения тепла радиоактивного распада радионуклидов в цементном компаунде, твердения цементного компаунда.

Задачей проведения настоящего теплового расчета является определение температурного поля в бочке с цементным компаундом в процессах его твердения и последующего хранения. Эти процессы можно описать исходя из следующих соображений: во-первых, процесс твердения цементного компаунда в бочке в рассматриваемом временном интервале является с точки зрения теплопереноса процессом неравновесным, так как температурное поле в нем непрерывно меняется во времени из-за тепловыделения при реакции твердения цемента. Во-вторых, процесс теплообмена с окружающей средой также нестационарный из-за непрерывного изменения температуры поверхности теплообмена. В-третьих, процесс теплообмена бочки с окружающей средой в ходе длительного хранения бочки в хранилище принимает характер стационарного в связи с выделением тепла при радиоактивном распаде содержащихся в цементном компаунде радионуклидов.

Для расчета коэффициента теплоотдачи от стенки к окружающей среде использовано критериальное уравнение, описывающее теплообмен в условиях свободной конвекции [15]:

$$Nu = 0,135(Gr \cdot Pr)^{0,33}, \quad (1)$$

где Nu - критерий Нуссельта; Gr - критерий Грасгофа; Pr - критерий Прандтля.

Среда в бочке - вода или цементный компаунд, окружающая среда - воздух. Расчет по уравнению (1) дает значения $\alpha = 6-7$ ватт/м²·К для разности температур стенки и окружающей среды от 5 до 50 градусов, что позволяет считать его постоянным в течение всего процесса теплообмена бочки с окружающей средой. Имеется цилиндр радиуса R и высотой $H = 2l$, температура которого равна T_0 . В начальный момент времени он помещается в среду с постоянной температурой $T_c > T_0$. Требуется найти распределение температуры в любой момент времени при условии симметричной задачи по рис. 1.

Уравнение теплопроводности преобразуется к виду:

$$\frac{\partial T(r, z, \tau)}{\partial \tau} = a \left(\frac{\partial^2 T(r, z, \tau)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T(r, z, \tau)}{\partial r} + \frac{\partial^2 T(r, z, \tau)}{\partial z^2} \right), \quad (2)$$

$$\tau > 0; \quad 0 < r < R; \quad -l < z < +l,$$

где r, z, τ – цилиндрические координаты. Начальные и граничные условия:

$$T(r, z, 0) = T_0 = \text{const}; \quad (3)$$

$$-\frac{\partial T(R, z, \tau)}{\partial r} + \frac{\alpha}{\lambda} [T_c - T(r, z, \tau)] = 0; \quad (4)$$

$$\frac{\partial T(0, z, \tau)}{\partial r} = 0, \quad T(0, z, \tau) \neq \infty; \quad (5)$$

$$-\frac{\partial T(r, l, \tau)}{\partial z} + \frac{\alpha}{\lambda} [T_c - T(r, l, \tau)] = 0; \quad (6)$$

$$\frac{\partial T(r, 0, \tau)}{\partial z} = 0. \quad (7)$$

Решение этого уравнения имеет вид

$$1 - \theta = \frac{T_c - T(r, z, \tau)}{T_c - T_0} = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} A_{n,1} A_{m,2} J_0(\mu_{n,1} \frac{r}{R}) \cos \mu_{m,2} \frac{z}{l} \exp[-(\frac{\mu_{n,1}^2}{R^2} + \frac{\mu_{m,2}^2}{l^2}) a \tau], \quad (8)$$

где $A_{n,1}$, $A_{m,2}$ - постоянные коэффициенты, определяемые по формулам:

$$A_{n,1} = \frac{2Bi_1}{J_0(\mu_{n,1})(\mu_{n,1}^2 + Bi_1^2)}; \quad A_{m,2} = (-1)^{m+1} \frac{2Bi_2 \sqrt{Bi_2^2 + \mu_{m,2}^2}}{\mu_{m,2}(Bi_2^2 + \mu_{m,2}^2 + Bi_2^2)}, \quad (9)$$

где $\mu_{n,1}$, $\mu_{m,2}$ - корни соответствующих характеристических уравнений; J_0 - функция Бесселя нулевого порядка; Bi_1 , Bi_2 — критерии Био, равные $\alpha l / \lambda$ и $\alpha R / \lambda$, соответственно.

Готовые математические решения уравнения теплопроводности, учитывающие условия твердения цементного компаунда в бочке, в литературе отсутствуют. Предлагаемая математической модель, позволяющая рассчитывать распределение температуры в емкости цилиндрической формы при застывании в ней цементного компаунда учитывает кинетику процессов тепловыделения, перераспределение тепла вследствие теплопроводности и теплоотдачи во внешнее пространство.

Уравнение для температуры в рассматриваемом вычислительном эксперименте имеет вид:

$$S \frac{dT}{dt} = \alpha(T_0 - T) + J, \quad (10)$$

где S обозначает теплоемкость калориметра, α - коэффициент теплоотдачи, T_0 - внешнюю температуру. Величина J описывает интенсивность теплообразования. Для однотипных экзотермических реакций уравнение теплоотдачи замыкается кинетическим соотношением вида

$$Q \frac{dC}{dt} = -J(C, T), \quad (11)$$

где C - количество вещества, способного вступить в реакцию, а Q - количество тепла, выделяемого при вступлении в реакцию одной единицы C . Интенсивность J/Q , с которой происходит реакция, зависит как от количества потенциального реагента, так и от температуры.

Для завершения математической формулировки задачи интенсивность теплообразования $J(C, T)$ в уравнениях (10) и (11), как функция от C и T , задана в виде кинетического соотношения, описывающего совокупную реакцию застывания цементного компаунда:

$$J = C_0 \beta \left(\frac{C}{C_0} \right)^n \exp \left(\frac{\gamma T}{273^\circ (T + 273^\circ)} \right), \quad (12)$$

где C_0 - начальное содержание цемента в системе, а n , β и γ - свободные параметры, которые следует подобрать так, чтобы теоретическое (численное) решение $T(t)$ системы уравнений (10) и (11) с соответствующими начальными условиями максимально совпало с измеренной в опыте зависимостью температуры от времени.

Система уравнений для процессов перераспределения тепла в цилиндрических координатах записывается в виде [15]:

$$\begin{cases} c_v \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\lambda \cdot r \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right) \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial f} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial f} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) + J(C, T); \\ Q \frac{\partial C}{\partial t} = -J(C, T), \end{cases} \quad (13)$$

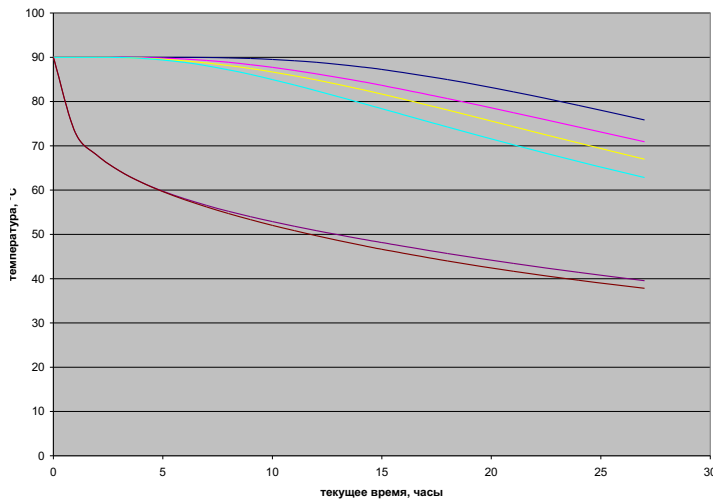
где λ - теплопроводность, переменная C и теплоемкость c_v здесь относятся к единице объема, а для J снова принимается формула (12). Не вынося теплопроводность за знаки частных производных, создаем возможность считать физические коэффициенты системы переменными по пространственным координатам: свои для цементного компаунда, для стальных стенок бочки и для воздуха под крышкой.

Как было определено ранее, на стальной поверхности бочки задаются граничные условия 3-го рода, а именно

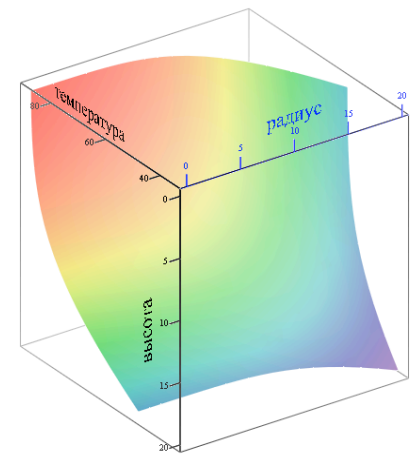
$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial n} = \alpha (T - T_0), \quad (14)$$

где T_0 - температура внешней среды, α - коэффициент теплоотдачи стали в воздух.

Сравнивая ход охлаждения воды и цементного компаунда можно сделать вывод о том, что оба процесса описываются аналогичными степенными зависимостями, но цементный компаунд остывает намного быстрее воды вследствие разницы в теплофизических характеристиках. Судя по температурным профилям в различных сечениях бочки, представленным на рисунке 1 *а* и *б*, процесс остывания характеризуется значительными градиентами температуры между центральными точками и точками на поверхности отвода тепла, а лимитируют процесс отвода тепла теплофизические характеристики содержимого бочки.

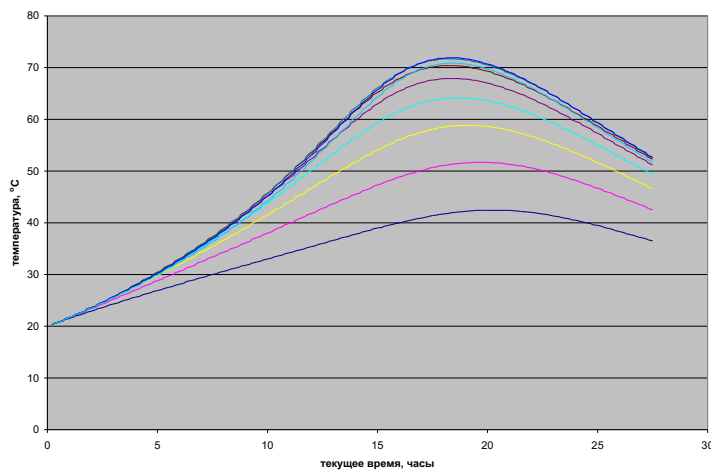


a

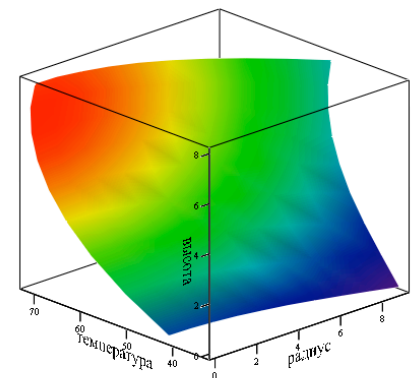


б

Рис. 1 - *a*) временные зависимости температуры в разных точках бочки при охлаждении воды, *б*) профиль температуры в различных сечениях бочки после 10 часов охлаждения в ней воды



a



б

Рис. 2 - *a*) временные зависимости температуры в разных точках бочки при затвердевании цементного компаунда, *б*) профиль температуры в различных сечениях бочки после 18 часов затвердевания в ней цементного компаунда

На основании результатов, представленных на рис. 2, можно констатировать, что внутренний объем бочки нагревается до температур 70 °С и более, что на практике отмечалось и ранее. Перегрев центральных областей относительно периферийных составляет 25-30 °С, что лишний раз свидетельствует о необходимости принятия мер для снижения величины этого перегрева для обеспечения однородности и качества цементного компаунда.

2. Методика исследования и техника эксперимента

В соответствии с программой проведения экспериментальных работ по выбору состава цементного компаунда и технологических режимов цементирования для приготовления цементного компаунда использовали:

- портландцемент марки ЦЕМ I 42,5Б, ГОСТ 31108-2003 (по прежней классификации ПЦ 500-Д0), ОАО «Мордовцемент»;
- сорбционную добавку - молотый клиноптилолит Холинского месторождения ТУ 2163-002-12763074 следующего фракционного состава (% по массе): более 1 мм - 2,55; до 0,5 мм - 13,74; до 0,25 мм - 12,20; до 0,125 мм - 34,19; до 0,1 мм - 15,23; до 0,05 мм - 20,03; менее 0,05 мм - 2,06;
- воду из ППВ (техническая) и воду после кавитационного воздействия (табл. 1);
- нерастворимые остатки гидроксидной пульпы.

Табл. 1. Физико-химические показатели воды после кавитационной обработки с различными объёмами заполнения суперкавитирующего реактора (СК-реактора)

Объем заполнения СК-реактора $V, \%$	$T, ^\circ\text{C}$		КРК*, % нас		$x, \text{Ом}^{-1}/\text{см}$		рН		$E, \text{мВ}$	
	$\alpha = 10^\circ$	$\alpha = 20^\circ$	$\alpha = 10^\circ$	$\alpha = 20^\circ$	$\alpha = 10^\circ$	$\alpha = 20^\circ$	$\alpha = 10^\circ$	$\alpha = 20^\circ$	$\alpha = 10^\circ$	$\alpha = 20^\circ$
Параметры воды до обработки	20,7		101,2		0		5,4		200	
100	40,5	32,6	85,1	96,65	14,5	6	5,65	5,45	133	168,5
65	34,6	27,2	87,65	95,7	5,5	13	6,0	5,7	128,5	147

*КРК – концентрация растворенного кислорода

Состав цементного раствора корректировался после проведения пробного замеса с использованием приобретенных для проведения опытных операций вяжущих компонентов и определения растекаемости цементного раствора. Для определения растекаемости цементного компаунда использовали прибор Суттарда по ГОСТ 23789-79 «Вяжущие гипсовые. Методы испытаний».

При изготовлении образцов использовали следующую схему смешивания компонентов: клиноптилолит с гидроксидной пульпой загружали в пластиковые стаканы в заданных соотношениях и перемешивали. Через 15 минут добавляли расчетное количество цемента и воды и смесь тщательно перемешивали. Полученную смесь вносили в специально изготовленные формы из фторопласта для формирования образцов диаметром и высотой по 20 мм. Путем легкого постукивания по корпусу форм в течение нескольких минут смесь уплотняли и удаляли из нее воздух. После этого формы с образцами помещали на 24 часа в камеру нормального твердения, обеспечивающую при температуре 20-30 °С относительную влажность воздуха 95 ± 5 %. Через сутки образцы извлекали из форм и помещали их обратно в камеру нормального твердения на 28 суток. После выдержки

образцы испытывали на механическую прочность, водо- и морозостойкость. Для обеспечения сопоставимости и достоверности результатов характеристики образцов определяли по данным трех опытов.

Вспомогательное и измерительное оборудование обеспечили возможность исследования влияния гидродинамической кавитации на следующие параметры состояния воды: температуру; концентрацию растворенного кислорода (КРК); показатель pH; электропроводность; окислительно-восстановительный потенциал (ОВП) и др. Результаты экспериментальных исследований изменения этих характеристик дистиллированной воды после кавитационной обработки с постоянным числом кавитации $\chi = 0,05$ и методы регрессионного анализа позволили установить рациональную продолжительность кавитационной обработки.

Зависимость ОВП от времени кавитационного воздействия носит экспоненциальный характер:

$$y = 15,34\exp(-x/106,36) + 15,34\exp(-x/106,39) + 149,24\exp(-x/21,28) + 141,43$$

и при значении 150 секунд выходит на плато, что позволяет выделить участок наиболее интенсивного изменения ОВП – 30-90 с.

При кавитационном воздействии на воду в течение этого времени ОВП понижается на 43 %, тогда как максимальное понижение ОВП составляет 47 %. Т.е. скорость изменения ОВП при кавитационном воздействии в диапазоне 30-90 с почти в три раза превышает скорость изменения ОВП при воздействии в диапазоне 90-300 с.

3. Использование кавитационной технологии для извлечения пульпы из хранилищ ОЯТ

Исследования проводили с использованием нескольких проб малорастворимой гидроалюмосиликатной твердой фазы [16]. Для обработки пульпы при повышенной температуре использовали термостат, позволяющий поддерживать заданную температуру рабочей смеси с погрешностью не более 3 °С. Рабочие растворы готовили из химических реактивов марок «Ч» и «Х.Ч.». Измерение объема твердой и жидкой фаз проводили после отстаивания суспензий в течение суток. В случаях, если жидкая фаза за этот период не осветлялась, время отстаивания увеличивали или раствор фильтровали через бумажный фильтр «синяя лента». Отбор жидкой фазы на анализ проводили путем декантации.

Результаты эксперимента (табл. 2) показали, что выход компонентов пульпы в раствор по традиционной технологии (опыт 1) достигает по Al 35,6, по SiO₂ - 34,39 %, тогда как при использовании кавитационно обработанной воды (опыт 2) - 56,03 % и 60,72 % соответственно.

Проведенные опыты позволяют предположить, что применение кавитационной технологии для размыва и растворения твердой фазы модельной пульпы может повысить эффективность переработки высокоактивных отходов и освобождения емкостей для их хранения от накопившихся осадков без увеличения концентраций химических реагентов и

повышения температуры, что, в свою очередь, снижает коррозионную нагрузку [15-17].

Табл. 2. Распределение компонентов алюмосиликатного слоя твердой фазы между используемыми для его обработки растворами

Состав растворов, используемых для обработки пульпы	Степень перехода в раствор, % (опыт 1)		Степень перехода в раствор, % (опыт 2)	
	Al	SiO ₂	Al	SiO ₂
100 г/л NaOH	2,52	1,81	5,79	4,34
H ₂ O	2,04	0,70	2,36	0,85
HNO ₃ + ОПК	1,39	8,57	2,50	15,43
H ₂ O	0,56	0,57	0,64	0,64
100 г/л NaOH	8,88	2,74	16,87	6,30
H ₂ O	5,54	0,94	6,34	1,15
HNO ₃ + ОПК	1,22	8,65	2,01	14,96
H ₂ O	0,32	1,01	0,36	1,14
100 г/л NaOH	4,72	2,57	9,48	5,04
H ₂ O	6,60	1,28	7,34	1,68
HNO ₃ + ОПК	1,36	5,54	2,31	9,19
Итого	35,6	34,39	56,03	60,72

В ходе проведения работ определены время (для различных условий оно находится в интервале от 100 до 500 часов и более) и степень релаксации модифицированных свойств воды, что позволяет использовать такую воду в качестве несущей фазы для приготовления растворов при переработке основных компонентов пульпы ОЯТ. Установлены зависимости преобразования трудно растворимых осадков от времени, скорости и чисел кавитации обработки воды и водных растворов.

4. Результаты экспериментальных исследований по использованию кавитационной технологии для приготовления цементного компаунда

Для экспериментального подтверждения теоретических расчетов по различным моделям была создана установка для непосредственного измерения температурного поля в бочке и на поверхности теплообмена ее с окружающей средой. Для измерения температуры использованы два типа датчиков: хромель-копелевые термопары (ТП) и платиновые термометры сопротивления (ТС). На рис. 3 и 4 представлены схема расположения и фотографии двух типов блоков датчиков. Для измерения сигналов датчиков применяются стандартные аналогово-цифровые преобразователи, имеющие выход для связи с ЭВМ. Программное обеспечение этих преобразователей позволяет записывать результаты измерений в удобную для последующей обработки форму. Для оценки теплофизических характеристик бочки на экспериментальной установке были выполнены опыты по замеру температурного поля в бочке в процессе остывания в ней нагретой до 90 °С воды.

тс7

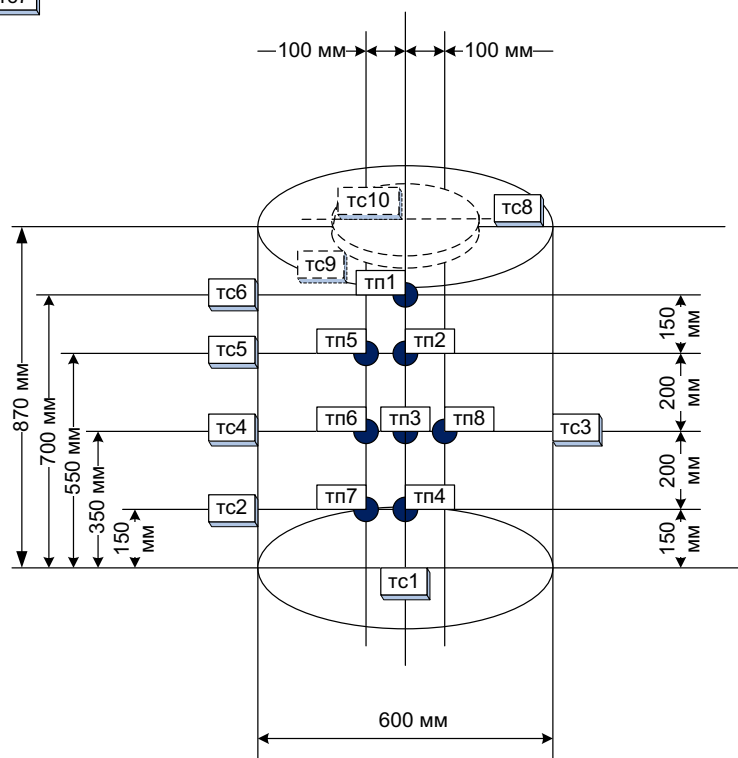


Рис. 3. Схема пространственного расположения датчиков в объеме контейнера и на его наружной поверхности



Рис. 4. Блок датчиков экспериментальной установки для измерения температуры во внутреннем объеме бочки

В данной работе проведена серия опытов по определению влияния кавитационного воздействия на физико-химические свойства воды при условии максимального кавитационного эффекта, т.е. при минимальных числах кавитации. На рис. 6 представлены результаты экспериментальных замеров температур в процессе затвердевания цементного компаунда для трех точек: в наиболее горячей точке внутри бочки тп3 (см. рис. 3), в периферийной точке тп6 и на боковой поверхности бочки в точке тс3 при разных значениях водовяжущего соотношения. Для этих же точек представлены расчетные зависимости.

Наибольшее совпадение расчета с экспериментом (рис. 5) наблюдается для $V/B = 0,6$, где максимумы температуры различаются на 6 градусов. Для $V/B = 0,45$ максимальная расчетная температура превышает экспериментальную на 15 °С. Наибольшее различие наблюдается для расчетной и экспериментальной температур на боковой поверхности бочки в точке тс3, составляющее 40 °С. Очевидно, что модель не учитывает особенностей процесса затвердевания цементного компаунда в области температуры, близкой к температуре кипения воды. В то же время тепловой расчет бочки по модели, описанной выше, может быть использован для $V/B \geq 0,5$ с достаточной для технических расчетов точностью.

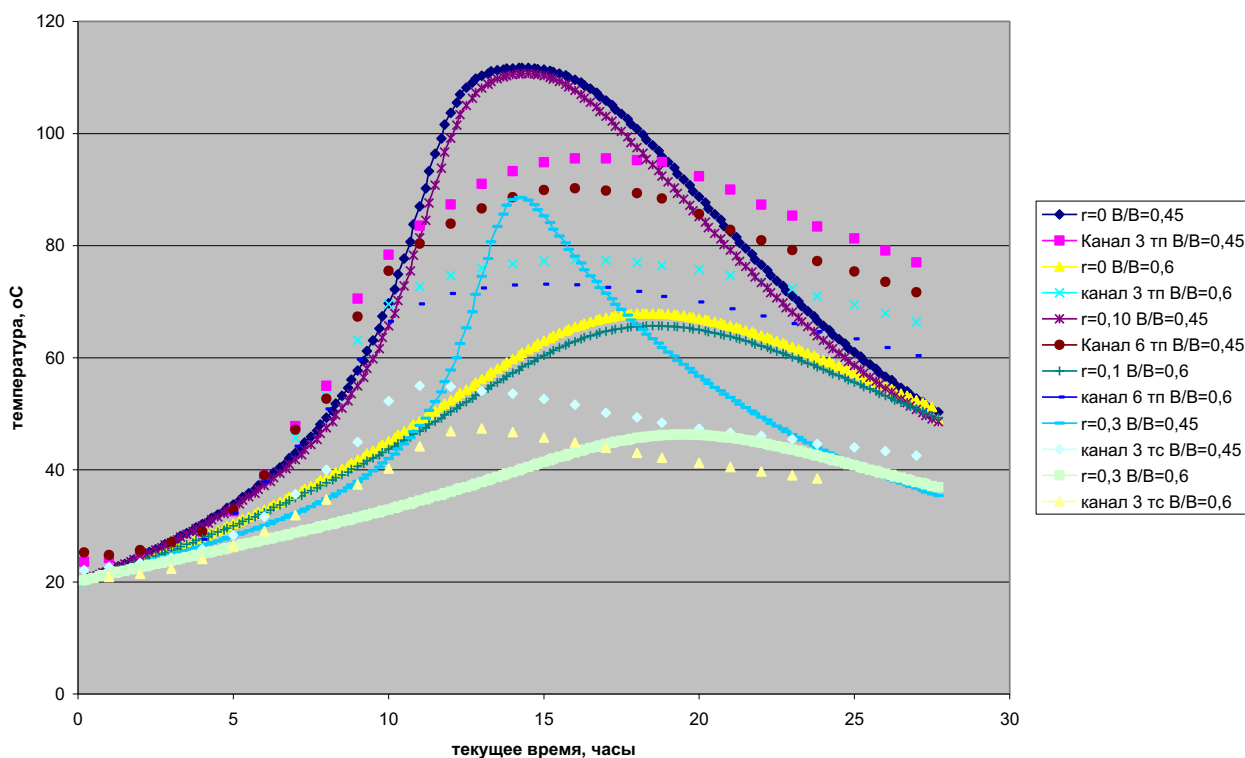


Рис. 5. Сравнение расчетной и экспериментально замеренной температуры в процессе затвердевания цементного компаунда в наиболее горячей точке внутри бочки тп3, в периферийной точке тпб и на боковой поверхности бочки в точке тс3 при разных значениях водовяжущего соотношения

Механическую прочность образцов определяли по отраслевой инструкции «Цементные компаунды на основе радиоактивных отходов». Результаты механических испытаний представлены в табл. 3, испытания на морозостойкость - в табл. 4, измерения скорости выщелачивания цезия-137 - в табл. 5.

Результаты измерения скорости выщелачивания цезия-137 (с использованием кавитационной технологии, табл. 5) указывают на то, что она не превышает установленных значений, принятых в атомной отрасли нормативных правил.

Табл. 3. Исходная механическая прочность цементных компаундов

Показатель		Механическая прочность компаунда через 28 суток, МПа							
В/Ц	В/В	С пром. водой		Образцы кавитационно обработанной воды					
				№ 1		№ 2		№ 3	
0.5	0.41	36,0	32,5	27,4	27,7	39,2	45,2	52,2	43,0
		Средн. 34,2		Средн. 27,5		Средн. 42,2		Средн. 47,6	

Примечание: В/Ц – водоцементное отношение; В/В - водовязущее отношение
 $V/B = V/(C + K\text{-фактор})$: К-фактор определяется при введении тонкого заполнителя по соответствующим нормативным документам.

Табл. 4. Результаты испытаний образцов цементного компаунда

№	Исходная механическая прочность компаунда на сжатие, МПа	Среднее значение, МПа	Прочность компаунда после испытаний на морозостойкость, МПа	Среднее значение, МПа	Изменение механической прочности, %
0-1	36,0	34,2	32,8	29,8	-12,9
0-2	32,5		26,8		
1-1	27,4	27,5	21,3	21,6	-21,5
1-2	27,7		22,0		
2-1	39,2	42,2	50,7	42,4	0,5
2-2	45,2		34,1		
3-1	52,2	47,6	52,9	48,4	1,7
3-2	43,0		44,0		

Таблица 5 - Скорость выщелачивания цезия-137

№ образца	A_0 , Бк/г	R_n , г/(см ² ·сутки)							
		Количество суток							
		1	3	7	10	14	21	28	56
0-1	5850	1,03E-2	2,47E-3	2,93E-4	2,00E-4	1,88E-4	1,26E-4	9,46E-5	4,89E-5
0-2	980	9,4E-2	2,78E-2	3,04E-4	2,17E-4	1,55E-4	1,33E-4	9,01E-5	5,67E-5
1-1	1840	6,12E-2	1,51E-2	2,01E-3	1,13E-3	8,08E-4	5,77E-4	4,95E-4	2,52E-4
1-2	3840	6,69E-2	3,29E-2	1,87E-3	1,16E-3	8,47E-4	5,83E-4	5,09E-4	2,34E-4
2-1	2050	5,07E-2	2,82E-2	1,83E-3	1,45E-3	7,03E-4	6,18E-4	5,23E-4	2,55E-4
2-2	3150	7,95E-2	4,36E-2	2,16E-3	1,67E-3	7,31E-4	6,62E-4	5,18E-4	2,71E-4
3-1	3680	7,34E-2	3,78E-2	2,86E-3	1,91E-3	1,81E-3	7,97E-4	6,96E-4	3,20E-4
3-2	1400	1,22E-1	6,07E-2	3,45E-3	2,13E-3	1,74E-3	8,41E-4	7,19E-4	3,57E-4

Увеличение удельной поверхности цемента непосредственно в водной среде с помощью кавитационного диспергирования позволяет полностью использовать его потенциальные свойства и повышать степень гидратации и поверхностную энергию частиц. Разрушая мало прочную первичную алюминатную крупнозернистую структуру, удается получить мелкокристаллическую структуру цементного камня, прочность которого возрастает в 2–3 раза (рис. 6) по сравнению с приготовлением раствора в обычных смесителях.

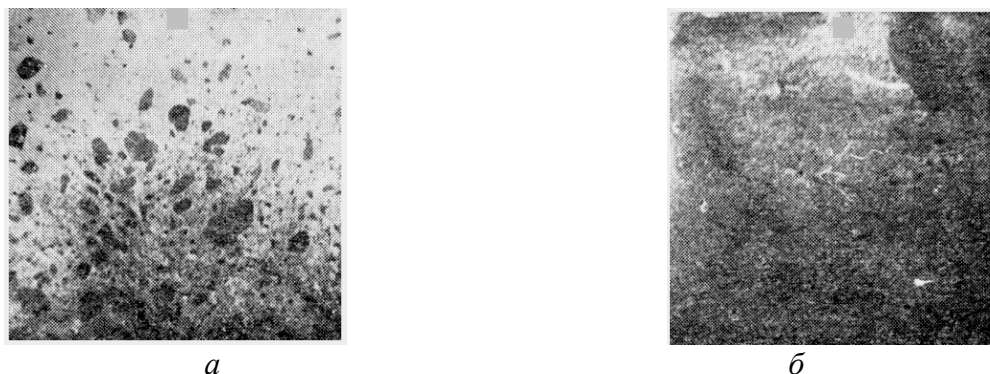


Рис. 6 – Структура бруска цементного камня (В/Ц = 0,5, цемент М300): *а* – без кавитационной обработки (прочность на изгиб $R_{и} = 3,6$ МПа, на сжатие – $R_{сж} = 17,3$ МПа); *б* – $t_{обр} = 60$ с (относительное число кавитации $\chi/\alpha = 0,34$, $R_{и} = 9,6$ МПа, $R_{сж} = 38,1$ МПа)

В процессе обработки цементного молочка образуется «игольчатая» структура цементного камня, которая изменяет ход кристаллохимической реакции твердения бетона, играет роль центров направленной кристаллизации, что приводит, с одной стороны, к появлению фибриллярного строения цементного камня, а, с другой, - к появлению упрочняющей структурно-ориентированной надмолекулярной структуры.

ВЫВОДЫ

Основным результатом проведенных исследований является возможность эффективного использования кавитационной технологии при обращении с отходами ядерно-топливного цикла с целью защиты окружающей среды от радиоактивного загрязнения, в том числе:

1. Предложен метод деструкции компонентов пульпы при размыве осадков растворами на основе кавитационно-активированной воды, обеспечивающий увеличение скорости растворения и объемов осадков. Экспериментально установлено, что применение кавитационно-активированной воды позволяет увеличить выход малорастворимых компонентов пульпы до 56,03 % (по Al), и до 60,72 % (по SiO₂) по сравнению с традиционной переработкой (соответственно 35,6 % и 34,39 %). Использование кавитационной технологии при переработке отходов ядерно-энергетического комплекса позволяет равномерно извлекать компоненты

пульпы, избегая накопления делящихся материалов и снижая коррозионную нагрузку на конструктивные элементы хранилища;

2. Экспериментально определен усредненный коэффициент теплоотдачи для всей охлаждающей поверхности бочки-контейнера для хранения цементного компаунда, оказавшийся равным $9,86 \text{ ватт/м}^2 \cdot \text{К}$, что почти в два раза больше значения, вычисленного с помощью общеизвестного критериального уравнения;

3. Существенный градиент температуры по сечению бочки в процессе теплообмена с окружающей средой в ходе длительного хранения, обусловленный выделением тепла при радиоактивном распаде содержащихся в цементном компаунде радионуклидов, может наблюдаться при значениях $q_v = 1000 \text{ вт/м}^3$ и более;

4. Тепловой расчет контейнера для долговременного хранения РАО при цементировании нерастворимых остатков пульп, извлеченных из емкостей-хранилищ, может быть выполнен по предложенной численной модели с достаточной для технических расчетов точностью в процессе твердения цементного компаунда в бочке при $V/V \geq 0,5$;

5. Полученные данные при компаундировании ОЯТ являются дополнением к результатам работ [19, 20] и их логическим продолжением. Таким образом, суммарно получено подтверждение существенного влияния кавитационно активированной воды на характеристики цементного компаунда в процессе его приготовления. Использование эффектов кавитационной технологии целесообразно при утилизации отходов радиохимического производства и приводит к повышению прочности цементного компаунда, а также к улучшению других его характеристик: морозостойкости и скорости выщелачивания радионуклидов из цементной матрицы. Последняя характеристика является одним из основных факторов, определяющих надежность длительного хранения и захоронения радиоактивных отходов.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, Правительства Красноярского края, Красноярского краевого фонда поддержки научной и научно-технической деятельности» в рамках научного проекта № 16-41-242156 р_офи_м

Литература

[1] Безопасность ядерного топливного цикла; пер. с англ. М.: ЦНИИАТОМИНФОРМ, 2002. 196 с. (The Safety of the Nuclear Fuel Cycle. Nuclear Energy Agency Organization Economic Cooperation and Development // Copyright OECD 1993).

[2] Шведов В.П., Седов В.М., Рыбальченко И.Л., Власов И.Н. Ядерная технология. - М.: Атомиздат, 1979. - 536 с.

[3] Публикация 103 Международной Комиссии по радиационной защите (МКРЗ); пер с англ. / ред. М.Ф. Киселёв и Н.К. Шандала. - М.: Изд. ООО ПКФ «Алана», 2009. - 344 с.

[4] *Ключников А.А., Пазухин Э.М., Шигера Ю.М., Шигера В.Ю.* Радиоактивные отходы АЭС и методы обращения с ними - К.: Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, 2005. - 487 с.

[5] *Кузнецов В.М.* Основные проблемы и современное состояние предприятий ядерного топливного цикла Российской Федерации. – М.: Российская Демократическая партия «Яблоко», 2002. - 259 с.

[6] *Лебедев В.М.* Ядерный топливный цикл - М.: Энергоатомиздат, 2005. 305 с.

[7] ФЕДЕРАЛЬНЫЙ ЗАКОН от 21.11.95 N 170-ФЗ (ред. от 02.07.2013 с изменениями, вступившими в силу 02.09.2013) «ОБ ИСПОЛЬЗОВАНИИ АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ»

[8] Безопасность России. Правовые, социально-экономические и научно-технические аспекты. Регулирование ядерной и радиационной безопасности / Колл. авт. – М.: МГОФ «Знание», НТЦ ЯРБ, 2003. 400 с.

[9] Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами (СПОРО-2002). СП 2.6.6.1168-02. – СПб: Деан. 2003. 64 с.

[10] *Волков В.Г., Чесноков А.С.* // Промышленные ведомости. 2011. № 11-12.

[11] *Ивченко В.М., Кулагин В.А., Немчин А.Ф.* Кавитационная технология; ред. акад. Г.В. Логвинович. - Красноярск: Изд-во КГУ, 1990. 200 с.

[12] *Демиденко Н.Д., Кулагин В.А., Шокин Ю.И.* Моделирование и вычислительные технологии распределенных систем; ред. чл.-корр. РАН А.М. Федотов. - Новосибирск: Наука, 2012. - 424 с.

[13] *Демиденко Н.Д., Кулагин В.А., Шокин Ю.И., Ли Ф.-Ч.* Теплообмен и суперкавитация. – Новосибирск: Наука, 2015. – 436 с.

[14] *Кулагина Т.А., Козин О.А., Матюшенко А.И.* Экологическая безопасность техносферных объектов. - Красноярск: Изд-во «Гротеск», 2015. 323 с.

[15] Павлов К.Ф., Романков П.Г., Носков А.А. Примеры и задачи по курсу процессов и аппаратов химической технологии. - Л.: Химия, 1987. – 576 с.

[16] *Козин О.А.* Методы и средства повышения экологической безопасности обращения с отходами ядерно-энергетического цикла // Автореф. дисс. ... канд. техн. наук. Красноярск: СФУ, 2011. 19 с.

[17] *Козин О.А., Кулагина Т.А.* // Химическое и нефтегазовое машиностроение. 2010. № 10. С. 7-15.

[18] *Кулагина Т.А., Козин О.А.* // Безопасность жизнедеятельности. 2010. № 11. С. 31–38

[19] Кулагина Т.А., Попков В.А. // Журнал СФУ. Техника и технологии. 2015 (8). № 2. 198-207.

[20] Кулагина Т.А., Попков В.А. // Журнал СФУ. Техника и технологии. 2015 (8). № 3. 362-368.