

М.К. Скаков¹, О.С. Букина^{2,3}, Ю.Ю. Бакланова², Е.Т. Коянбаев², В.В. Бакланов²

¹Национальный ядерный центр Республики Казахстан,
071100, Республика Казахстан, г. Курчатов, ул. Бейбіт атом, 2Б

²Филиал Институт атомной энергии РГП «Национальный ядерный центр» РК,
071100, Республика Казахстан, г. Курчатов, ул. Бейбіт атом 10,

³Университет имени Шакарима города Семей,
071412, Республика Казахстан; г. Семей, ул. Глинки, 20 А

*e-mail: o.bukina@inbox.ru

ПОДБОР СОСТАВА МАТРИЦЫ ДЛЯ ИММОБИЛИЗАЦИИ ОБЛУЧЕННОГО ТОПЛИВА РЕАКТОРА ИГР

Аннотация: Импульсный графитовый реактор (далее ИГР) является уникальной в своем роде ядерной установкой – исследовательским реактором, активная зона которого состоит из уран-графитовых блоков и стержней с обогащением 90 масс. % по изотопу ^{235}U . В рамках конверсии реактора ИГР на низкообогащенное топливо, изучается возможность иммобилизации первой активной зоны, которая была извлечена из реактора в 1967 году. По содержанию бета-излучателей, облученное топливо относится к категории среднеактивных отходов. Расчетное значение степени выгорания ВОУ топлива составило менее 1% масс. Специалистами филиала ИАЭ РГП НЯЦ РК предложен способ иммобилизации облученного топлива реактора ИГР в цементную матрицу. Предварительно предполагается произвести разбавление топлива обедненным ураном для снижения обогащения до уровня < 20 масс. % по ^{235}U . Свойства матрицы должны соответствовать технологическим требованиям, определенным международными [3, 4, 5] и национальными стандартами [6, 7]. Подбор состава матрицы в связи с вышеперечисленным, как и определение ее характеристик, является актуальной задачей, стоящей перед специалистами института.

Цель работы состояла в подборе состава цементного раствора, обеспечивающего формирование надежной матрицы для иммобилизации облученного топлива реактора ИГР.

В статье приводятся методики и результаты определения времени (начала) схватывания, равномерности изменения объема, водоотделения, вязкости и однородности цементного раствора.

Ключевые слова: исследовательский реактор, реактор ИГР, уран-графитовое топливо, иммобилизация, матрица, ОЯТ, обращение с ОЯТ.

Введение

Импульсно-графитовый реактор (ИГР) был построен в 1960 году на Семипалатинском полигоне по инициативе И.В. Курчатова специалистами предприятий бывшего СССР, в основном, РНЦ «Курчатовский институт» и НИКИЭТ [8].

Реактор создавался для испытаний тепловыделяющих элементов ядерного ракетного двигателя и должен был служить для получения кратковременных, но весьма интенсивных потоков нейтронов и γ -лучей для облучения образцов [9]. В качестве топлива реактора ИГР используется графит с импрегнированным в него ураном с обогащением 90% по изотопу ^{235}U [9, 10]. Первые испытания экспериментальных твэлов на реакторе ИГР были проведены в феврале 1962 года по программе создания ядерных ракетных двигателей. В 1967-1968 году была проведена модернизация активной зоны реактора [10].

В соответствии с Международным договором реактор ИГР попал в программу конверсии топлива высокого обогащения исследовательских реакторов на топливо низкого обогащения. Предполагалось, что отработавшее топливо реактора ИГР в рамках программы RRRFR [11] будет вывезено в Российскую Федерацию, как в страну-производитель. Вывоз облученного топлива был осложнен отсутствием правовой базы для ввоза в страну отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) с очень низким содержанием урана и отсутствием готовой технологии переработки облученного высокообогащенного уранового (ВОО) топлива. Решением данных задач явилась идея разработки такой технологии в организации-пользователе – в Национальном ядерном центре Республики Казахстан.

Таким образом перед Институтом атомной энергии Национального ядерного центра РК (ИАЭ НЯЦ РК) встал вопрос об иммобилизации имеющихся запасов облученного уран-графитового топлива, участвовавшего в работе реактора в первые годы его существования с предварительным снижением его обогащения ниже 20% по ^{235}U .

Опыта обращения с облученным уран-графитовым топливом высокого обогащения в НЯЦ РК не было, поэтому в качестве возможных методов иммобилизации такого топлива рассматривались методы, применяемые к радиоактивным отходам (РАО). Из известных в настоящее время технологий – остекловывания [12, 13], заключение в полимерную и геополимерную матрицу [14], битумирования [15, 5], цементирования [5, 16] – была выбрана технология цементирования.

Одним из ключевых условий иммобилизации топлива ИГР являлось формирование гомогенной и прочной матрицы, в связи с чем ограничивались размеры частиц компонентов матрицы и топлива – допустимый диапазон 150 – 200 мкм и, соответственно, исключалось использование песка и крупного наполнителя, в отличие от стандартного цементирования. При этом, свойства матрицы должны соответствовать технологическим требованиям, определенным международными [3, 4, 5] и государственными стандартами [6, 7].

В соответствии с рекомендациями [3] основные требования к матрицам варьируются в зависимости от класса отходов, к которому они относятся, и уровня активности: высокая химическая устойчивость; радиационная устойчивость; долговременная (термодинамическая) стабильность; максимальный коэффициент уменьшения объема; механическая прочность; хорошая теплопроводность (для высокоактивных отходов); величина вязкости, позволяющая достичь гомогенизации продукта; гомогенное распределение радионуклидов (особенно для делящихся материалов); простота, надежность и безопасность технологии производства; возможность получения при наиболее низких температурах во избежание потерь радионуклидов за счет испарения; устойчивость к биodeградации; совместимость с геологической средой; максимально затрудненное извлечение радиоактивных компонентов из матрицы.

Для длительного хранения и утилизации иммобилизация отходов должна быть необратимым процессом, позволяющим избежать выброса загрязняющих веществ из матрицы и извлечение делящегося изотопа.

Использование цемента в качестве единственного компонента матрицы для иммобилизации топлива нежелательно, т.к. возникают последствия, негативно сказывающиеся на свойствах его конечной формы – химическая активность и растрескивание по причине высокого тепловыделения при гидратации цемента. Для нивелирования негативных последствий была изучена возможность добавок к цементу наполнителей. В результате в качестве таких наполнителей были выбраны зола-уноса и доменный шлак.

Изготовление цементного раствора должно осуществляться при соблюдении ряда технологических требований [5]:

- для исключения появления жидких РАО, ограничивается водоотделение растворов, которое не должно превышать 3 об. %;
- для достижения гомогенности раствора, время его схватывания должно быть достаточным для качественного смешивания компонентов матрицы и составлять не менее 2 часов;
- при застывании цементный раствор не должен существенно изменять объем;
- избыток тепловыделения при гидратации или неэффективный отвод тепла должны быть исключены;
- структура раствора должна быть однородной, то есть отсутствовать расслоения или недоуплотнения смеси, локальные скопления компонентов или крупные поры.

Готовая матрица представляет собой цементный компаунд с включенными жидкими или твердыми радиоактивными отходами [7]. Прочность застывшей матрицы должна обеспечивать целостность матрицы, исключать хрупкость и ее разрушение при транспортировке и хранении.

Условия и методы исследования

Объектом исследования являлись образцы растворов матриц различных составов, основой которых является портландцемент со специальными добавками (далее – Д, зола-уноса или доменный шлак). Характеристика материалов, используемых при изготовлении образцов и растворов:

- Портландцемент (цемент, ПЦ) марки ЦЕМ I 42, по ГОСТ 31108-2016, маркировка «Super 500» (ТОО «ПК «Цементный завод Семей») и «EXTREMA PLUS 550» (производитель ТОО «JAMBYL CEMENT»). Портландцемент марки ЦЕМ I 42,5Н содержит в качестве основного компонента вещественного состава только портландцементный клинкер, без минеральных или других добавок. Преимущественный размер частиц < 100 мкм, этот показатель обеспечивается заводом-изготовителем.

- Имитатор топлива – реакторный графит марок МГ-1 и R4340, по физико-механическим свойствам близкий к графиту топлива, графит предварительно измельчался в шаровой мельнице и просеивался через сито с размером ячеек 200 мкм.

- Вода.

- Зола-уноса (ЗУ) – идентифицирована как каменноугольная вид II, тип кислые, категория б серийное производство по ГОСТ 25818-2017. Преимущественный размер частиц ЗУ < 100 мкм. Перед изготовлением растворов производили просев ЗУ через сито с размером ячеек 200 мкм для удаления посторонних частиц.

- Доменный шлак (ДШ) – соответствовал требованиям ГОСТ 3476-2019, перед изготовлением растворов производили измельчение ДШ до размеров частиц < 200 мкм.

Всего исследован 21 состав с золой-уноса и 10 составов с доменным шлаком – разные соотношения масс портландцемента к массе специальной добавки (от 18 до 56 масс. %), разные соотношения массы воды к сухим компонентам (от 28 до 60 масс. %). Массовая доля имитатора топлива не превышает 2 масс. %.

При анализе существующих способов иммобилизации РАО в качестве матрицы для облученного уран-графитового топлива реактора ИГР были рассмотрены полимерные и цементные системы. В результате предпочтение было отдано матрице на основе портландцемента со специальными добавками в виде золы уноса и доменного шлака.

Мировой опыт показывает, что цементные или бетонные матрицы для твердых РАО применяются довольно часто. Цементация радиоактивных отходов в мире практикуется в основном для иммобилизации отходов низкого и среднего уровня активности. Основные преимущества данного метода заключаются [4] в общедоступности цемента, простой и недорогой технологии, которая реализуется при температуре окружающей среды. Кроме того, цементная матрица действует как диффузионный барьер и обеспечивает места сорбции и реакции; подходит для шламов, растворов, эмульгированных органических жидкостей и сухих твердых веществ; отходы имеют хорошую термическую, химическую и физическую стабильность; щелочная химия обеспечивает низкую растворимость для многих ключевых радионуклидов; форма отходов не воспламеняется; форма отходов не разрушается радиацией и обеспечивает хорошую самоизоляцию; форма отходов имеет хорошую прочность на сжатие, что облегчает обработку; легко обрабатывается удаленно; цемент универсальный и может быть модифицирован для конкретного вида отходов. Главным недостатком цементации РАО является увеличение объема отходов.

Золой-уноса является мелкая, состоящая преимущественно из шарообразных стекловидных частиц пыль, образующуюся при сгорании мелко смолотого угля и обладающая пуццолановыми свойствами и/или гидравлической активностью. Влияние золы-уноса тем больше, чем мельче ее частицы. Преимущества введения золы-уноса в цементный раствор: повышение конечной прочности, улучшение удобоукладываемости, повышение однородности и плотности смеси, меньший расход воды, уменьшение усадки и снижение начального тепловыделения при гидратации, повышение стойкости к чистым и сульфатным

водам, снижение объемной массы цементного камня, повышение огнестойкости и сопротивления тепловому удару.

Доменным шлаком называется мелкофракционный (<10 мм) сыпучий многокомпонентный материал, преимущественно стекловидный, получаемый быстрым охлаждением водой жидкого горячего шлака, образованного во время выплавки чугуна в доменной печи. Преимущества добавления доменного шлака в цементный раствор: понижение тепловыделения, улучшение водопотребности, повышение стойкости материала к мягким и сульфатным водам, снижение плотности, повышение водостойкости, морозостойкости и жаростойкости. Недостатком шлакосодержащего раствора является замедленное твердение в первое время после изготовления.

На этапе входного контроля материала проводилось фракционирование цемента, золы-уноса и доменного шлака. Фракционный состав материалов определялся рассевом с помощью вибрационного ситового грохота ANALYSETTE 3.

Измельчение графита (как имитатора топлива реактора ИГР) и доменного шлака, производилось с помощью щековой дробилки PULVERISETTE 1 и дисковой мельницы PULVERISETTE 3.

Зола-уноса предварительно просеивалась через сито с размером ячеек 200 мкм на ситовом грохоте.

Смешивание компонентов выполнялось с помощью лабораторного смесителя раствора ELE 39-0045 по предустановленной программе для перемешивания цементных растворов в соответствии с требованиями стандарта испытаний EN 196-3.

Испытания прочности на сжатие проводились на гидравлическом прессе ADR TOUCH CONTROL PRO. Определение прочности состояло в измерении минимальных усилий, разрушающих образцы матрицы при их статическом нагружении, с постоянной скоростью нарастания нагрузки, и последующем вычислении напряжений при этих усилиях.

Растворы цементных матриц для подбора параметров изготавливались по алгоритму:

- 1) отмерялась масса каждого компонента, согласно расчетным пропорциям;
- 2) наливалась вода в чашу для смешивания, затем последовательно добавлялись специальная добавка, имитатор топлива (графит) и цемент;
- 3) выполнялось смешивание с помощью автоматического смесителя раствора ELE 39-0045 по стандартному режиму оборудования для перемешивания цементного раствора до получения однородной консистенции раствора;
- 4) выполнялись испытания цементного раствора.

Вязкость раствора определялась с помощью установления консистенции раствора. Для оценки консистенции раствора используется встряхивающий столик, форма-конус и штыковка в соответствии с методикой по ГОСТ [18].

Для определения водоотделения применялся адаптированный метод на основе ГОСТ [19] для строительных цементных растворов. Водоотделение цемента – это количество воды, отделившейся при расслоении цементного теста, хранившегося в нормированных условиях, вследствие седиментационного осаждения частиц цемента.

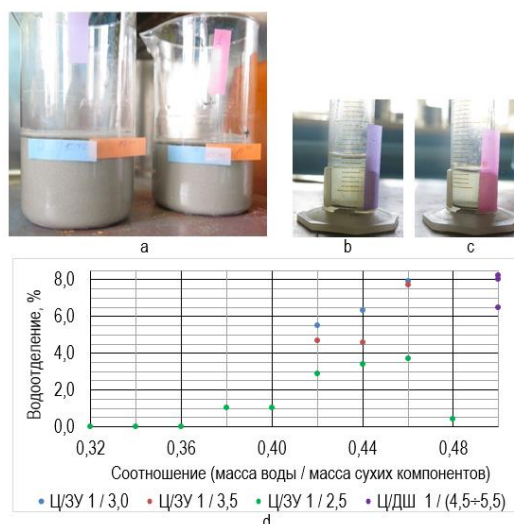
Определение времени схватывания проводилось в соответствии со стандартом по определению нормальной густоты, сроков схватывания и равномерности изменения объема цементного раствора [20].

Определение равномерности изменения объема проводилось по ГОСТ [19]. Равномерность изменения объема цемента – свойство цемента в процессе твердения образовывать цементный камень, деформация которого не превышает значений, установленных нормативным документом.

Для испытаний прочности образцы изготавливались в соответствии с ГОСТ [20].

Результаты исследований

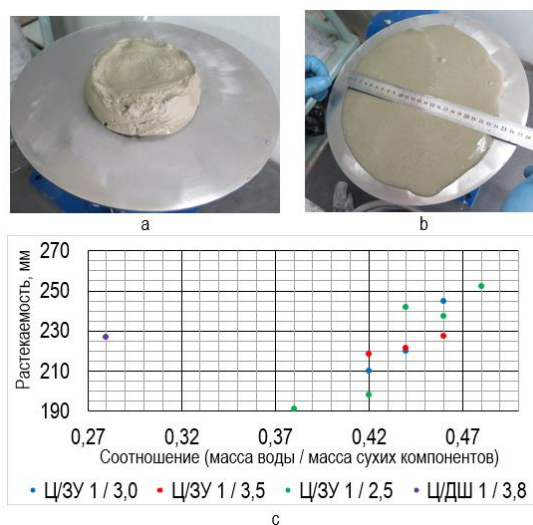
Иллюстрация процедуры определения водоотделения цементного раствора показана на рисунке 1. За два часа отстаивания происходило оседание раствора и отделение воды на поверхности (рис. 1 а), объем выделившейся воды регистрировался для каждого состава (рис. 1 б и 1 с). Предпочтительным являлись состав и тип цемента, приводящие к минимальному водоотделению.



а – оседание раствора и водоотделение в процессе отстаивания в течение 2-х часов; б и с – параллельное определение объема отделившейся воды; d – сравнение водоотделения растворов с разным количеством золы-уноса и цемента «Super 500», и растворов с доменным шлаком

Рисунок 1 – Определение водоотделения

Процесс определения вязкости раствора через растекаемость показан на рисунке 2. После встряхивания раствора на столике 30 раз, определялась величина растекаемости (рис. 2 а и 2 б). Растекаемость растворов в состав которых входила зола-уноса и цемент типа «Super 500» (ТОО «ПК «Цементный завод Семей») меньше, чем с той же золой-уноса и цементом типа «Extrema plus 550» производителя ТОО «JAMBYL CEMENT».

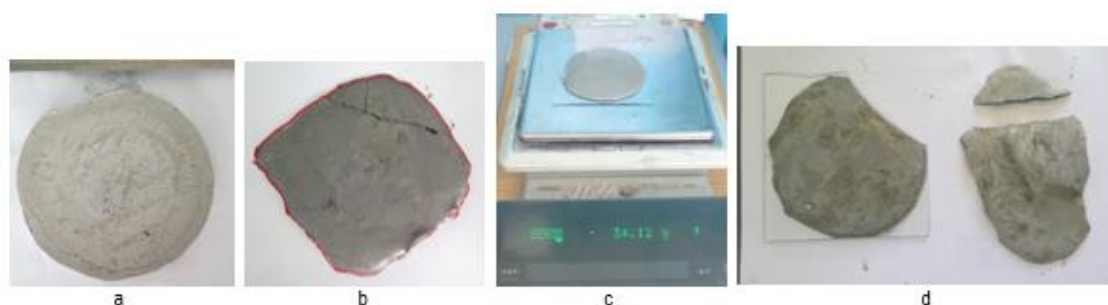


а – раствор с доменным шлаком на столике до встряхивания;
б – тот же раствор с доменным шлаком после встряхивания на столике 30 раз;
с – обобщение результатов определения растекаемости

Рисунок 2 – Определение вязкости раствора через растекаемость:

Время схватывания определяет возможную длительность смешивания компонентов цементного раствора. Время начала схватывания для составов с золой-уноса составило не менее 6 часов. Это позволяет осуществлять смешивание в несколько подходов и позволяет создать условия для достижения гомогенности раствора.

Визуальное обследование образцов на основе цемента «Super 500» не выявило каких-либо повреждений поверхности или искривлений, а также увеличения объема образцов в результате кипячения (рис. 3 а). Не все образцы на основе цемента «Extrema plus 550» прошли испытание: у некоторых были обнаружены сколы на поверхности, образцы двух составов разрушились еще до кипячения (рис. 3 б).



а – образец с золой-уноса и цементом «Super 500» после испытаний;
 б – образец с золой-уноса и цементом «Extrema plus 550» разрушился до кипячения;
 с – образец с доменным шлаком и цементом «Super 500», масса образца меньше установленной стандартом;
 д – образцы с доменным шлаком разрушились до кипячения

Рисунок 3 – Определение постоянства изменения объема

Образцы цементного раствора на основе доменного шлака имели слишком жидкую консистенцию. В связи с чем затруднение вызвали как формирование образцов нужной массы и геометрических размеров, так и работа с ними. В связи с тем, что раствор растекался по поверхности пластины, при изготовлении образцов выдерживался только диаметр согласно стандарту (рис. 3 с).

Для определения прочности были изготовлены образцы размером 100×100×100 мм. Иллюстрация цементного раствора в форме и внешнего вида образца после распалубливания представлены на рисунке 4а и 4б.

Результаты определения прочности на сжатие образцов разных составов в возрасте от 3 до 56 суток представлены на рисунке 5.

Образцы всех исследованных составов имеют значения прочности на сжатие более 10 МПа в возрасте 28 суток. Максимальная прочность в образцах с золой-уноса характерна для образцов, содержащих в составе больше цемента (соотношение Ц / ЗУ = 1 / 1,77 и В / (Ц+ЗУ+Г) = 0,42).

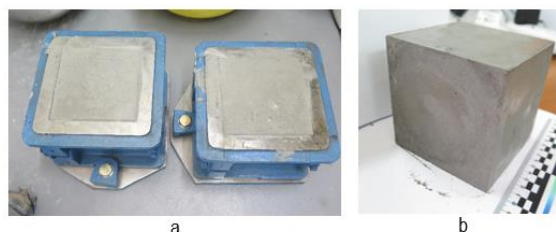


Рисунок 4 – Цементный раствор в форме сразу после изготовления (а) и образец цементной матрицы после распалубливания (48 часов твердения) (б)

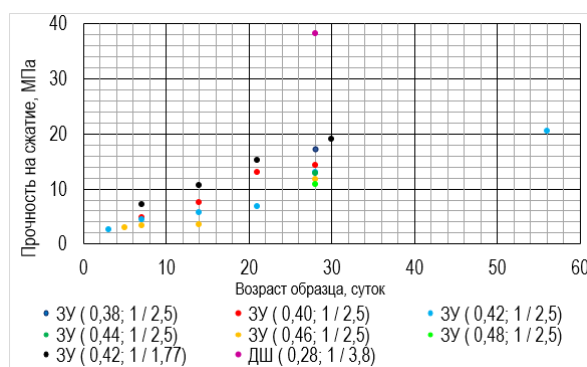


Рисунок 5 – Сравнение прочности на сжатие образцов разны составов

Обсуждение результатов

Методики, используемые для определения водоотделения, вязкости, времени схватывания раствора, равномерности изменения объема, однородности и прочности образцов цементных матриц, основывались на методиках, применяемых к определению

характеристик цементных растворов. Они показали свою состоятельность. Требования, применяемые для подбора состава матриц для иммобилизации отработавшего уран-графитового топлива реактора ИГР, оказались применимыми и достаточно конструктивными. Они могут быть рекомендованы для решения задач по подбору консистенции матриц.

Установлено, что водоотделение растворов с золой-уноса с одинаковыми соотношениями компонентов, в состав которых входил цемент типа «Super 500» (ТОО «ПК «Цементный завод Семей») меньше, чем водоотделение растворов с цементом типа «Extrema plus 550» производителя ТОО «JAMBYL CEMENT». Значения коэффициентов водоотделения растворов с доменным шлаком превышают допустимый предел водоотделения ($<3\%$), согласно принятым требованиям.

На растворах с золой-уноса показано, что коэффициент водоотделения имеет меньшие значения при снижении количества воды в растворе, но в то же время слишком густая смесь не позволит качественно смешать компоненты и получить однородную консистенцию раствора. Поэтому составы, в которых не было водоотделения, далее не рассматривались в качестве кандидатных. Минимально-допустимым соотношением воды к сухим компонентам принято $B / (Ц+ЗУ+Г)$ от 0,38. С уменьшением массы цемента и увеличением массы золы-уноса водоотделение снижается (см. рисунок 3 d). По результатам определения было выяснено, что минимальное водоотделение характерно для соотношения $(Ц / ЗУ) = (1 / 2,5)$.

На основании исследований водоотделения, вязкости (через растекаемость) раствора, постоянства сохранения объема, времени схватывания, прочности и однородности распределения графита в образцах были определены составы, с которыми продолжены научно-исследовательские работы.

Определить тип специальной добавки, рекомендуемой для создания матрицы для иммобилизации облученного топлива реактора ИГР, на данном этапе определить не удалось. Работы по тестированию матриц на механическую прочность, стойкость к длительному пребыванию в воде, морозостойкость и скорость выщелачивания будут продолжены с составами, в которых в качестве специальной добавки используется как зола-уноса, так и доменный шлак.

Составы с золой-уноса отличаются содержанием воды по отношению к сухим компонентам – от 0,38 до 0,48, а также соотношением массы цемента к массе специальной добавки – $1 / 2,5$ и $1 / 1,77$.

Состав с доменным шлаком определен однозначно: оптимальным соотношением массы воды к сухим компонентам оказалось 0,28, соотношение массы цемента к массе доменного шлака – $1 / 3,8$. Этот состав позволяет получить образцы высокой прочности, минимальное водоотделение, удовлетворительную растекаемость и пр.

Дальнейшие работы по тестированию матриц на механическую прочность, стойкость к длительному пребыванию в воде, морозостойкость и скорость выщелачивания в соответствии с требованиями [7] проводились с образцами, изготовленными по указанным соотношениям компонентов.

Заключение

В результате работ по подбору состава матрицы для иммобилизации облученного топлива реактора ИГР были установлены составы, удовлетворяющие требованиям по водоотделению, вязкости, времени схватывания раствора, равномерности изменения объема, однородности и прочности образцов.

Методики, используемые для определения характеристик цементных матриц, основывались на методиках, применяемых к определению характеристик цементных растворов. Они показали свою состоятельность. Требования по водоотделению, вязкости, времени схватывания раствора, равномерности изменения объема, однородности и прочности образцов, применяемые для подбора состава матриц для иммобилизации отработавшего уран-графитового топлива реактора ИГР, оказались применимыми и достаточно конструктивными, а также могут быть рекомендованы для решения задач по подбору консистенции матриц.

Список литературы

1. Экологический кодекс Республики Казахстан: офиц. текст по состоянию на 2 января 2021 года № 400-VI. <https://adilet.zan.kz/rus/docs/K2100000400>.
2. Измерение мощности излучения от облученного ядерного топлива реактора ИГР и анализ радионуклидного состава ОЯТ: отчет о НИР / А.Г. Коровиков. – Курчатов: Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК, 2017. – № 36-100-05/375 вн. от 01.03.17.
3. Nuclear Waste Forms / S.V. Stefanovsky, S.V. Yudinsev, R. Giere, G.R. Lump-kin // Energy, Waste and the Environment: A Geological Perspective. Geological Society, London. – 2004. – Special Publication. – V. 236. – P. 37-63.
4. Ojovan M.I. An introduction to nuclear waste immobilization / M.I. Ojovan, W.E. Lee. – Second Edition. Elsevier.
5. Технологические и организационные аспекты обращения с радиоактивными отходами // IAEA-TCS-27. – Вена. – 2005.
6. Правила организации сбора, хранения и захоронения радиоактивных отходов и отработавшего ядерного топлива, утв. приказом Министра энергетики Республики Казахстан от 8 февраля 2016 года № 39 (с изменениями от 21.09.2020 г.).
7. СТ РК 3723-2021. Отходы радиоактивные цементированные. Общие технические требования. https://online.zakon.kz/Document/?doc_id=33712184.
8. Обзор результатов исследований импульсного реактора ИГР [Электронный ресурс] / Горин Н.В., Кандиев Я.З., Щербина А.Н. и др. – 2003. URL: <https://www.nnc.kz/media/bulletin/files/xOzRdhY81A.pdf> (дата обращения: 04.11.2023).
9. Институт атомной энергии национального ядерного центра республики Казахстан – 60 лет: Книга / Под ред. Батырбекова Э.Г. и Скакова М.К. – Кокшетау: КФ «Кокшетау», 2018. – 51 с.
10. Реактор ИГР. Разбавление высокообогащенного уранового топлива / Батырбеков Э.Г., Коянбаев Е.Т., Гныря В.С., Котляр А.Н. // Человек. Энергия. Атом. – 2020. – № 1(33). – С. 23-27.
11. Импульсный графитовый реактор ИГР / И.В. Курчатов, С.М. Фейнберг, Н.А. Доллежалъ и др. // Атомная Энергия. – 1964. – Т. 17, вып. 6. – С. 463-474.
12. Dedik T. Russian Research Reactor Fuel Return Program starts shipping fuel to Russia [Электронный ресурс] / T. Dedik, I. Bolshinsky, A. Krass – 2003. – URL: <https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/Public/35/066/35066230.pdf> (дата обращения 16.12.2023 г.)
13. Малинина Г.А. Строение и гидролитическая устойчивость самарий, гафний и урансодержащих стеклокристаллических материалов для иммобилизации твердых радиоактивных отходов: дис. ...канд.хим.наук: 05.17.02 / Малинина Галина Александровна; ФГУП «РАДОН». – М., 2016. – 117 с.
14. Апсэ В.А. Ядерные технологии: учебное пособие / В.А. Апсэ, А.Н. Шмелев – М.: МИФИ, 2008. – 128 с.
15. Encapsulation of HEU / Graphite Particulate – Potential Formulations and Other Considerations, DEC_0988_A, S Farris, Sellafield LTD, 2020.
16. Туманов Ю.Н. Плазменные, высокочастотные, микроволновые и лазерные технологии в химико-металлургических процессах: книга / Ю.Н. Туманов. – М.: Физматлит, 2010. – 958 с.
17. Р.З. Рахимова Композиционные вяжущие для иммобилизации токсичных и радиоактивных отходов / Н.Р. Рахимова, Р.З. Рахимов, О.В. Стоянов // Вестник Казанского технологического университета. – 2013. № 4. – Т. 16. – С. 175-182.
18. ГОСТ 310.4-81. Цементы. Методы определения предела прочности при изгибе и сжатии. М.: Изд-во стандартов, 2003. – 11 с.
19. ГОСТ 310.6-85. Цементы. Методы определения водоотделения. М.: Изд-во стандартов, 2003. – 2 с.
20. ГОСТ 310.3-76. Цементы. Методы определения нормальной густоты, сроков схватывания и равномерности изменения объема. М.: Изд-во стандартов, 2003. – 6 с.
21. ГОСТ 10180-2012. Бетоны. Методы определения прочности по контрольным образцам. М.: Изд-во стандартов, 2018. – 32 с.

References

1. Ehkologicheskii kodeks Respubliki Kazakhstan: ofit. (In Russian).
2. Izmerenie moshchnosti izlucheniya ot obluchennogo yadernogo topliva reaktora IGR i analiz radionuklidnogo sostava OYAT: otchet o NIR / A.G. Korovikov. – Kurchatov: Filial IAEH RGP NYATS RK, 2017. – № 36-100-05/375 vn. ot 01.03.17. (In Russian).
3. Nuclear Waste Forms / S.V. Stefanovsky, S.V. Yuditsev, R. Giere, G.R. Lump-kin // Energy, Waste and the Environment: A Geological Perspective. Geological Society, London. – 2004. – Special Publication. – V. 236. – P. 37-63. (In English).
4. An introduction to nuclear waste immobilization / M.I. Ojovan, W.E. Lee. – Second Edition. Elsevier. (In English).
5. Tekhnologicheskie i organizatsionnye aspekty obrashcheniya s radioaktivnymi otkhodami // IAEA-TCS-27. – Vena. – 2005. (In Russian).
6. Pravila organizatsii sbora, khraneniya i zakhoroneniya radioaktivnykh otkhodov i otrabotavshego yadernogo topliva, utv. prikazom Ministra ehnergetiki Respubliki Kazakhstan ot 8 fevralya 2016 goda № 39 (s izmeneniyami ot 21.09.2020 g.). (In Russian).
7. ST RK 3723-2021. Otkhody radioaktivnye tsementirovannye. Obshchie tekhnicheskie trebovaniya. https://online.zakon.kz/Document/?doc_id=33712184. (In Russian).
8. Obzor rezul'tatov issledovaniy impul'snogo reaktora IGR [Ehlektronnyi resurs] / Gorin N.V., Kandiev YA.Z., Shcherbina A.N. i dr. – 2003. URL: <https://www.nnc.kz/media/bulletin/files/xOzRdhY81A.pdf> (data obrashcheniya: 04.11.2023). (In Russian).
9. Institut atomnoi ehnergii natsional'nogo yadernogo tsentra respubliki Kazakhstan – 60 let: Kniga / Pod red. Batyrbekova EH.G. i Skakova M.K. – Kokshetau: KF «KokshetaU», 2018. – 51 s. (In Russian).
10. Reaktor IGR. Razbavlenie vysokoobogashchennogo uranovogo topliva / Batyrbekov EH.G., Koyanbaev E.T., Gnyrya V.S., Kotlyar A.N. // Chelovek. Ehnergiya. Atom. – 2020. – № 1(33). – S. 23-27. (In Russian).
11. Impul'snyi grafitovyi reaktor IGR / I.V. Kurchatov, S.M. Feinberg, N.A. Dollezhal' i dr. // Atomnaya Ehnergiya. – 1964. – T. 17, vyp. 6. – S. 463-474. (In Russian).
12. Dedik T. Russian Research Reactor Fuel Return Program starts shipping fuel to Russia [Ehlektronnyi resurs] / T. Dedik, I. Bolshinsky, A. Krass – 2003. – URL: <https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/Public/35/066/35066230.pdf> (data obrashcheniya 16.12.2023 g.). (In English).
13. Malinina G.A. Stroenie i gidroliticheskaya ustoichivost' samarii, gafnii i uransoderzhashchikh steklokristallicheskikh materialov dlya immobilizatsii tverdykh radioaktivnykh otkhodov: dis. ...kand.khim.nauk: 05.17.02 / Malinina Galina Aleksandrovna; FGUP «RADON». – M., 2016. – 117 s. (In Russian).
14. Apseh V.A. Yadernye tekhnologii: uchebnoe posobie / V.A. Apseh, A.N. Shmelev – M.: MIFI, 2008. – 128 s. (In Russian).
15. Encapsulation of HEU / Graphite Particulate – Potential Formulations and Other Considerations, DEC_0988_A, S Farris, Sellafeld LTD, 2020. (In English).
16. Tumanov YU.N. Plazmennye, vysokochastotnye, mikrovolnovye i lazernye tekhnologii v khimiko-metallurgicheskikh protsessakh: kniga / YU.N. Tumanov. – M.: Fizmatlit, 2010. – 958 s. (In Russian).
17. R.Z. Rakhimova Kompozitsionnye vyazhushchie dlya immobilizatsii toksichnykh i radioaktivnykh otkhodov / N.R. Rakhimova, R.Z. Rakhimov, O.V. Stoyanov // Vestnik Kazanskogo tekhnologicheskogo universiteta. – 2013. № 4. – T. 16. – S. 175-182. (In Russian).
18. GOST 310.4-81. Tsementy. Metody opredeleniya predela prochnosti pri izgibe i szhatii. M.: Izd-vo standartov, 2003. – 11 s. (In Russian).
19. GOST 310.6-85. Tsementy. Metody opredeleniya vodootdeleniya. M.: Izd-vo standartov, 2003. – 2 s. (In Russian).
20. GOST 310.3-76. Tsementy. Metody opredeleniya normal'noi gustoty, srokov skhvatyvaniya i ravnomernosti izmeneniya ob"ema. M.: Izd-vo standartov, 2003. – 6 s. (In Russian).
21. GOST 10180-2012. Betony. Metody opredeleniya prochnosti po kontrol'nym obraztsam. M.: Izd-vo standartov, 2018. – 32 s. (In Russian).

М.К. Скаков¹, О.С. Букина^{2,3}, Ю.Ю. Бакланова², Е.Т. Коянбаев², В.В. Бакланов²

¹Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы,
071100, Қазақстан Республикасы, Курчатov қаласы, Бейбіт атом көшесі, 2Б

²«Ұлттық ядролық орталық» РМК Атом энергиясы институты филиалы ҚР,
071100, Қазақстан Республикасы, Курчатov қаласы, Бейбіт атом көшесі 10,

³Семей қаласының Шәкәрім атындағы университеті,
071412, Қазақстан Республикасы; Семей қ., Глинка к-сі, 20 А

*e-mail: o.bukina@inbox.ru

ИГР РЕАКТОРЫНЫҢ СӘУЛЕЛЕНГЕН ОТЫНЫН ИММОБИЛИЗАЦИЯЛАУ ҮШІН МАТРИЦАНЫҢ ҚҰРАМЫН ТАҢДАУ

Импульстік графитті реактор (бұдан әрі – ИГР) өз түріндегі бірегей ядролық қондырғы – зерттеу реакторы болып табылады, оның белсенді аймағы ^{235}U изотопы бойынша 90 масс. % байытылған уран-графитті отындардан тұрады. ИГР реакторын төмен байытылған отынға түрлендіру аясында 1967 жылы реактордан алынған алғашқы белсенді аймақты иммобилизациялау мүмкіндігі зерттелуде. Бета-сәулелендіргіштердің құрамы бойынша сәулеленген отын орташа белсенді қалдықтар санатына жатады. ЖБК отынының жану дәрежесінің есептік мәні массаның 1% - дан азын құрады. ҚР ҰАО РМК АЭИ филиалының мамандары ИГР реакторының сәулеленген отынын цемент матрицасына иммобилизациялау әдісін ұсынды. Байытуды ^{235}U бойынша <20 масс. % деңгейіне дейін төмендету үшін отынды сарқылған уранмен сұйылтуды жүргізу алдын ала болжанады. Матрицаның қасиеттері Халықаралық және Ұлттық стандарттарымен анықталған технологиялық талаптарға сәйкес келуі керек. Жоғарыда айтылғандарға байланысты матрицаның құрамын таңдау, оның сипаттамаларын анықтау сияқты, институт мамандарының алдында тұрған өзекті міндет болып табылады.

Жұмыстың мақсаты ИГР реакторының сәулеленген отынын иммобилизациялау үшін сенімді матрицаның қалыптасуын қамтамасыз ететін цемент ерітіндісінің құрамын таңдау болды.

Мақалада цемент ерітіндісінің ұсталу уақытын (басталуын), көлемінің өзгеру біркелкілігін, су бөлуді, тұтқырлығы мен біркелкілігін анықтау әдістері мен нәтижелері келтірілген.

Түйін сөздер: зерттеу реакторы, ИГР реакторы, уран-графитті отын, иммобилизациялау, матрица, ПЯО, ПЯО айналысу.

M.K. Skakov¹, O.S. Bukina^{2,3}, Yu.Yu. Baklanova², E.T. Koyanbaev², V.V. Baklanov²

¹National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan,
071100, Republic of Kazakhstan, Kurchatov, Beibit atom str., 2B

²PHILIAL Institute of Atomic Energy RSE «National Nuclear Center» of the RK,
071100, Republic of Kazakhstan, Kurchatov, Beibit atom str. 10,

³Shakarim University of Semey,
071412, Republic of Kazakhstan; Semey, Glinka str., 20 A

*e-mail: o.bukina@inbox.ru

SELECTING OF MATRIX COMPOSITION FOR IMMOBILIZATION OF IRRADIATED FUEL OF THE IGR REACTOR

Impulse Graphite Reactor (IGR) is a unique nuclear installation namely research reactor with the core consisting of uranium-graphite fuel elements with 90% enrichment by U^{235} . Possible immobilization of the first core taken from the reactor in 1967 is studied here as part of the IGR reactor conversion to low-enriched uranium fuel. Irradiated fuel is related to the category of medium-active waste according to the content of beta-emitters. Expected value of highly-enriched uranium fuel (HEU) burnup rate was less than 1 % mass. The experts from the Institute of Atomic Energy (IAE) proposed the way how to immobilize irradiated IGR reactor fuel into the cement matrix. First, the fuel is suggested to dilute with depleted uranium in order to lower the enrichment up to the <20 mass. % by U^{235} . The properties of the matrix should meet the engineering criteria ruled by

international and national standards. So, according to aforesaid, The IAE team is facing an actual problem of selection the matrix and understanding its characteristics.

The work was aimed at selection of composition of cement mortar for making robust matrix to immobilize irradiated IGR reactor fuel.

The paper describes techniques and results of the time identification (start) of solidification, gradual volume change, water separation, velocity and uniform cement mortar.

Key words: research reactor, IGR reactor, uranium-graphite fuel, immobilization, matrix, SNF, SNF management.

Сведения об авторах

Мажын Канапинович Скаков – доктор физико-математических наук, профессор, академик КазНАЕН; Национальный ядерный центр Республики Казахстан, Казахстан; e-mail: skakov@nnc.kz. ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3716-8846>.

Ольга Сергеевна Букина* – докторант кафедры «Техническая физика и теплоэнергетика»; Университет имени Шакарима города Семей, Республика Казахстан; начальник группы лаборатории испытаний конструкционных и топливных материалов; филиал Институт атомной энергии РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», Казахстан; e-mail: o.bukina@inbox.ru. ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-2564-0421>.

Юлия Юрьевна Бакланова – начальник отдела материаловедческих испытаний; филиал Институт атомной энергии РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», Казахстан; e-mail: basalai@nnc.kz. ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-4054-7831>.

Ерболат Тайтолеуович Коянбаев – заместитель директора по по материаловедческим исследованиям; филиал Институт атомной энергии РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», Казахстан, e-mail: erbol@nnc.kz. ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-4675-1067>.

Виктор Владимирович Бакланов – первый заместитель директора; филиал Институт атомной энергии РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», Казахстан; e-mail: Baklanov@nnc.kz. Web of Science ResearcherID:IBU-8740-2023, Scopus Author ID: 16315181100.

Авторлар туралы мәліметтер

Мажын Канапинович Скаков – физика-математика ғылымдарының докторы, профессор, ҚазҰАЕН академигі; Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы, Қазақстан; e-mail: skakov@nnc.kz. ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3716-8846>.

Ольга Сергеевна Букина* – техникалық физика және жылу энергетикасы кафедрасының докторанты; Семей қаласының Шәкәрім атындағы университеті, Қазақстан Республикасы; Конструкциялық және отын материалдарының зертханалық сынақ зертханасының меңгерушісі; «Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы» РМК филиалы Атом энергиясы институты, Қазақстан; e-mail: o.bukina@inbox.ru. ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-2564-0421>.

Юлия Юрьевна Бакланова – материалдарды сынау бөлімінің бастығы; «Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы» РМК филиалы Атом энергиясы институты, Қазақстан; e-mail: basalai@nnc.kz. ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-4054-7831>.

Ерболат Тайтөлеуұлы Қоянбаев – директордың материалтану зерттеулері жөніндегі орынбасары; филиалы Атом энергиясы институты «Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы» РМК, Қазақстан, e-mail: erbol@nnc.kz. ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-4675-1067>.

Виктор Владимирович Бакланов – директордың бірінші орынбасары; «Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығы» РМК филиалы Атом энергиясы институты, Қазақстан; e-mail: Baklanov@nnc.kz. Web of Science ResearcherID:IBU-8740-2023, Scopus Author ID: 16315181100.

Information about the authors

Mazhyn Kanapinovich Skakov – Doctor of Physical and Mathematical Sciences, Professor, Academician of KazNAEN; National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan, Kazakhstan; e-mail: skakov@nnc.kz. ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-3716-8846>.

Olga Sergeevna Bukina* – doctoral student of the Department of Technical Physics and Thermal Power Engineering; Shakarim University of Semey, Republic of Kazakhstan; Head of the laboratory testing laboratory for structural and fuel materials; branch Institute of Atomic Energy of the RSE «National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan», Kazakhstan; e-mail: o.bukina@inbox.ru. ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-2564-0421>.

Yulia Yurievna Baklanova – head of the materials testing department; branch Institute of Atomic Energy of the RSE «National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan», Kazakhstan; e-mail: basalai@nnc.kz. ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-4054-7831>.

Erbolat Taitoleuovich Koyanbaev – Deputy Director for Materials Science Research; branch Institute of Atomic Energy RSE «National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan», Kazakhstan, e-mail: erbol@nnc.kz. ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-4675-1067>.

Viktor Vladimirovich Baklanov – first deputy director; branch Institute of Atomic Energy of the RSE «National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan», Kazakhstan; e-mail: Baklanov@nnc.kz. Web of Science ResearcherID: IBU-8740-2023, Scopus Author ID: 16315181100.

Поступила в редакцию 19.12.2023
Поступила после доработки 12.01.2024
Принята к публикации 15.01.2024

DOI: 10.53360/2788-7995-2024-1(13)-38

МРНТИ: 29.19.16



А. Касымбаев^{1*}, С.В. Плотников¹, А. Тұрлыбекұлы², А. Погребняк³

¹Восточно-Казахстанский технический университет им. Д. Серикбаева, 070004, Республика Казахстан, г. Усть-Каменогорск, ул. Протозанова 69

²Institute of materials engineering, 010000, Республика Казахстан, г. Астана, ул. Сауран 5г, 156

³Сумской государственный университет, 40007, Украина, г. Сумы ул. Римского-Корсакова 2

*e-mail: alexey_kasymbayev@mail.ru

ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКТУРНЫХ СВОЙСТВ МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ, МНОГОСЛОЕВЫХ, ТВЕРДЫХ НАНОКОМПОЗИТНЫХ ПОКРЫТИЙ

Аннотация: Работа посвящена анализу и обобщению результатов исследований физико-механических свойств нитридных и карбидных многослойных систем на основе (TiZrNbTa)N в зависимости от методов нанесения и термической обработки. Повышение прочности конструкции без увеличения массы изделия и обеспечение специфических свойств поверхности, таких как высокая износостойкость, оптимальные трибологические характеристики, жаростойкость и коррозионная стойкость имеют решающее значение на сегодняшний день. Рассмотрено влияние введения чрезвычайно высоких доз ионов N⁺ (10^{18} см⁻²) в наноструктурированные покрытия (TiZrNbTa)N нанесенных методом вакуумно-дугового напыления. Исследовано изменение твердости твердость покрытий, достигнута величина твердости 23 ГПа на глубинах ≥ 200 нм. Исследовано нанесение тонкого слоя, направленного на устранение капельных фракций, образующихся при катодной эрозии при вакуумно-дуговом напылении, привело к снижению микротвердости имплантированных образцов. Изучено повышение давления в камере осаждения до 3×10^{-3} Торр существенно повысило концентрацию азота в составе покрытия при одновременном уменьшении количества таких металлических компонентов, как Ti, Nb и V. Предварительные испытания на приборе для испытания на