

С. Ю. Саенко, Ж. С. Ажажа,
Г. А. Холомеев, А. В. Пилипенко,
С. В. Габелков, Р. В. Тарасов

Национальный научный центр
«Харьковский физико-технический институт» НАН Украины

Капсулирование горячим изостатическим прессованием поврежденных ТВЭЛОВ: технологический подход и макетные эксперименты

Представлены основные результаты макетных исследований и экспериментальной отработки метода горячего изостатического прессования для получения длинномерной не искривленной защитной капсулы, содержащей отработавшую ТВС или поврежденные ТВЭЛЫ РБМК внутри коррозионно- и радиационно-стойкой монолитной толстостенной стеклокерамической оболочки.

С. Ю. Саенко, Ж. С. Ажажа, Г. О. Холомеев, О. В. Пилипенко, С. В. Габелков, Р. В. Тарасов

Капсулювання гарячим ізостатичним пресуванням пошкоджених твєлів: технологічний підхід та макетні експерименти

Представлено основні результати макетних досліджень і експериментального опрацювання методу гарячого ізостатичного пресування для отримання довгомірної не скривленої захисної капсули, що містить відпрацьовану ТВЗ або пошкоджені твєли РБМК усередині корозійно- і радіаційно-стійкої монолітної товстостінної склокерамічної оболонки.

Решение проблемы обращения с постоянно возрастающим количеством отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) актуально для всех развивающихся атомную энергетику стран. В Украине эта проблема в значительной степени обострена наличием сотен тонн специфических РАО в виде высокоактивных топливосодержащих материалов четвертого блока Чернобыльской АЭС, подлежащих, в конечном счете, имобилизации и геологическому захоронению. К одним из видов таких РАО относятся ТВЭЛЫ РБМК, существенно поврежденные и деформированные в результате аварии.

Известно, что одним из наиболее проработанных в мировой практике подходов к проблеме изоляции ОЯТ в настоящее время является шведский вариант капсулирования отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС) в целом виде или отдельных их частей для дальнейшего окончательного захоронения в глубинные геологические формации. Этот подход предусматривает использование технологии горячего изостатического прессования (ГИП) для получения сплошной толстостенной медной оболочки, окружающей радиоактивные отходы (в данном случае — отработавшие топливные сборки) [1].

Исследования по разработке подобной технологии проводятся в ННЦ ХФТИ НАН Украины. Газостатические установки используются в качестве основного оборудования для отработки технологических приемов капсулирования РАО и элементов ОЯТ методом ГИП [2, 3].

Для кондиционирования поврежденных ТВЭЛОВ РБМК использование стандартных контейнеров хранения затруднено, и целесообразно рассмотреть способ их герметизации в защитные толстостенные капсулы с использованием способа горячего изостатического прессования. При этом капсулированию могут быть подвергнуты поврежденные ТВЭЛЫ как полной длины, так и порезанные на отдельные фрагменты. Для ограничения образования вторичных радиоактивных отходов количество порезов, естественно, должно быть минимальным.

Цель настоящей работы — расчетно-макетные исследования влияния конструкции прессуемого изделия и режимов горячего изостатического прессования на формоизменение длинномерной капсулы, содержащей отработавшую ТВС РБМК или отдельные поврежденные ТВЭЛЫ внутри коррозионно- и радиационно-стойкой монолитной толстостенной керамической оболочки для получения прессуемого изделия правильной (близкой к цилиндрической) формы.

Технологическое оборудование. Схема реализации разработываемого метода капсулирования отработавших ТВЭЛОВ или ОТВС представлена на рис. 1.

Отработавшая ТВС РБМК длиной около 3,6 м или отдельные ТВЭЛЫ вначале вставляются во внутреннюю капсулу из коррозионно-стойкой стали, засыпаются керамическим порошком и герметизируются. Далее эта капсула помещается внутрь барьерного слоя, сформированного предварительно спеченными керамическими втулками и торцевыми заглушками, загруженными в наружную капсулу из коррозионно-стойкой стали. После дегазации и герметизации полученная многослойная капсула подвергается изостатическому прессованию, параметры которого зависят от свойств барьерного материала. Такой подход обеспечивает:

получение монолитной толстостенной оболочки, охватывающей радиоактивные материалы, которая обладает высокой коррозионной и радиационной стойкостью;

предотвращение выхода из облученного топлива газообразных, летучих и подвижных радионуклидов в материал барьерного слоя благодаря наличию внутренней герметичной капсулы из коррозионно-стойкой стали;

возможность хранения поврежденных твэлов в капсулированном виде на открытой площадке, а также последующего их геологического захоронения без перегрузки.

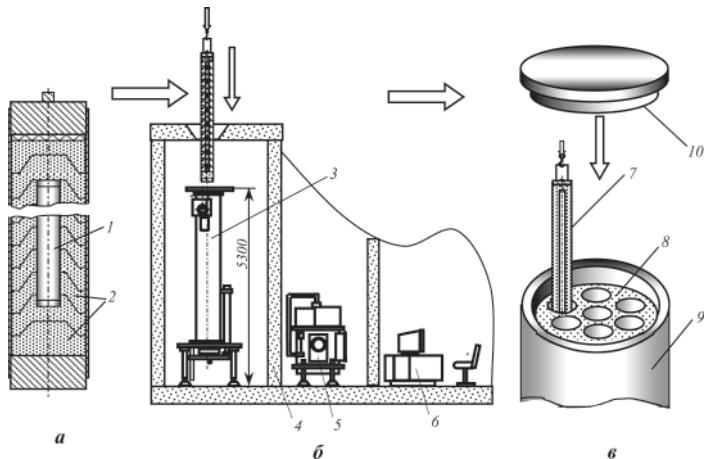


Рис. 1. Схема процесса капсулирования поврежденных твэлов:

- а — защитная капсула, подготовленная для капсулирования;
- б — компоновка газостатической установки;
- в — загрузка кондиционированных твэлов в контейнер;
- 1 — внутренняя металлическая капсула с поврежденными твэлами;
- 2 — стеклокерамические заготовки для создания барьерного слоя;
- 3 — газостат; 4 — защитный бокс; 5 — термокомпрессор;
- 6 — блок питания и пульт управления; 7 — капсула после ГИП;
- 8 — бетонный наполнитель контейнера; 9 — металлический корпус;
- 10 — крышка контейнера

Для создания специального газостатического оборудования разработана конструкторская документация на серию лабораторных и промышленных газостатических установок типа ГАУС [4]. Лабораторные установки ГАУС-4 на максимальное давление 400 МПа, рабочую температуру до 2000 °С, с диаметром рабочей зоны 35 мм, высотой 150 мм эксплуатируются в ННЦ ХФТИ (г. Харьков, Украина) и в НПО «Радиовый институт» (г. Санкт-Петербург, РФ). Их составными частями являются газостат, лабораторный криогенный термокомпрессор КРИТ-4Л на давление до 500 МПа, система питания и управления.

Выполнен комплекс работ по исследованию и разработке метода горячего изостатического прессования для изоляции одной отработавшей ТВС РБМК в толстостенную капсулу с барьерным слоем из стеклокерамического материала, для изготовления которого использованы порошковые смеси, приготовленные размолом гранита и каолина [5, 6].

Реализация на практике предложенного подхода возможна только при использовании специальных длинномерных газостатических установок. Поэтому разработан проект, проведены теплофизические расчеты, прочностное обоснование надежности и создана конструкторская документация на газостатическую установку для капсулирования отработавших ТВС РБМК. Разработанная установка включает в себя газостат на рабочее давление до 100 МПа, термокомпрессор, баллонную станцию, систему питания и управления, систему загрузки и выгрузки капсулы (рис. 1, б). Корпус газостата, который герметизируется резьбовыми торцевыми затворами, представляет собой одно-

слойный полый цилиндр наружным диаметром 440 мм с толщиной стенки 40 мм. Внутри корпуса расположена шестизонная электропечь сопротивления с рабочим пространством диаметром 220 мм, высотой 4150 мм, максимальной мощностью 75 кВт и рабочей температурой до 1250 °С. В качестве конструкционного материала основных силовых деталей установки выбрана мартенситно-старяющаяся сталь 03Х9К14Н6МЗД (ЭП-921), в которой благоприятно сочетаются высокие прочностные свойства с достаточными вязкостью и пластичностью; эта сталь также обладает высокими характеристиками сопротивления усталостному разрушению. Минимальный расчетный ресурс корпуса газостата при интенсивности работы 200 циклов в год составляет порядка 40 лет, торцевого затвора — 17,5 года.

Основные результаты исследований и их обсуждение. Для капсулирования отработавших твэлов с использованием метода горячего изостатического прессования исследованы стеклокерамические материалы алюмосиликатного состава, полученные из природных горных пород на основе трех исходных порошковых композиций (здесь и далее в процентах массы): 70 % гранита + 30 % каолина, 15 % гранита + 85 % каолина, 15 % альбитита + 85 % каолина [6]. Структура всех исследованных материалов характеризуется наличием стекловидной фазы в количестве 40–45 % с равномерно распределенными в ней зернами остаточного α -кварца (приблизительно 15 %) размером около 30 мкм, кристаллами полевого шпата (1–2 %) и мелкими (до 7 мкм) зернами муллита (приблизительно 20 %), который за счет игольчатой формы кристаллов в значительной степени обеспечивает прочность стеклокерамической композиции.

Для получения барьерных материалов использованы ГИП-обработки при различных параметрах. Так, для материала на основе стеклокерамики исходного состава шихты (70 % гранита + 30 % каолина) использован процесс газостатического прессования при давлении 80–100 МПа, температуре 900–920 °С, времени выдержки 4–6 ч.

Применение сравнительно дорогостоящего метода горячего изостатического прессования для решения рассматриваемой проблемы оправдано рядом уникальных возможностей, предоставляемых данной технологией:

- возможностью получения иммобилизационных керамических материалов с плотностью, близкой к теоретической;
- возможностью использования сырья из сравнительно дешевых природных горных пород (значительно более дешевых, чем медь) для создания коррозионно- и радиационно-стойких барьерных материалов;

- возможностью получения сплошного толстостенного барьерного слоя на всю глубину материала из отдельных заготовок (штулок, крышки и днища) за счет их диффузионной сварки, которая реализуется в процессе ГИП-обработки.

Проведенные конструкторские, технологические и исследовательские работы позволили выбрать перспективную конструкцию многослойной капсулы для изоляции отработавшей ТВС РБМК (рис. 1, а). В качестве материала металлических оболочек (наружной и внутренней) выбрана коррозионно-стойкая сталь 12Х18Н10Т, которая обладает хорошей совместимостью со стеклокерамическими композициями, высокой коррозионной и радиационной стойкостью, достаточной механической прочностью.

Для обоснования выбранной конструкции проведены эксперименты на макетах, заполненных стеклокерамическим материалом в виде порошка или предварительно спрессованных из порошка и спеченных таблеток (имитирующих крышку и днище) и штулок, внутри которых располагались

имитаторы ОТВС или отдельных твэлов. Эксперименты показали, что для заполнения внутренней капсулы и свободных объемов ТВС целесообразно использовать крупнозернистый порошок в виде засыпки. Для наружного барьерного слоя в качестве заготовок выбраны предварительно спеченные таблетки и втулки. Применение спеченных заготовок в качестве материала для формирования барьерного слоя снижает формоизменение наружной металлической оболочки при горячем изостатическом прессовании за счет большей исходной плотности спеченных заготовок по сравнению с виброуплотненным порошком, что позволяет существенно снизить опасность нарушения исходной цилиндрической формы прессуемых длинномерных изделий в процессе ГИП.

Определяющим фактором при проектировании макетов служил размер рабочей зоны газостатической установки ГАУС-4. При проектировании стремились к геометрическому подобию макетов по отношению к полнометражным капсулам. В основном использовались оболочки макетов в виде металлических трубок двух типоразмеров: диаметром 11 мм, толщиной стенки 0,4 мм, длиной 60–150 мм (капсулы малого диаметра, рис. 2) и диаметром 32 мм, толщиной стенки 1 мм и высотой 60–150 мм (капсулы большого диаметра, рис. 3). Материал оболочки — сталь 12Х18Н10Т, имитаторы твэлов — корундовая “соломка” или трубки из коррозионно-стойкой стали с корундовыми стержнями внутри. На первых макетах моделировалось соотношение длины и диаметра полнометражных изделий, на вторых — соотношение геометрических параметров элементов капсулы в поперечном сечении.

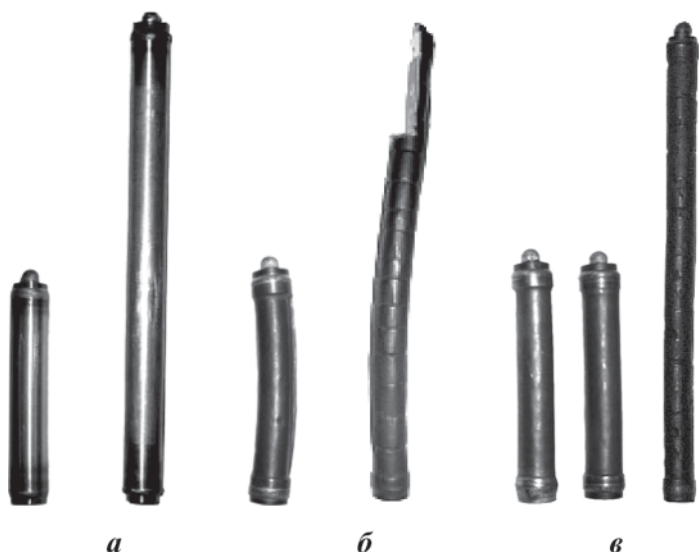


Рис. 2. Внешний вид капсул малого диаметра:

- a* — капсулы до изостатического прессования;
- б* — капсулы после изостатического прессования, искривленные вследствие образования продольного гофра оболочки;
- в* — капсулы после изостатического прессования, сохранившие прямолинейную форму

В экспериментах на макетах обоих типов обнаружено, что после изостатического прессования металлическая оболочка капсулы, как правило, теряла свою первоначально правильную цилиндрическую форму: появлялись один или несколько продольных гофров, следствием чего становилось осевое искривление (рис. 2, б). Недопустимость таких явлений для реального изделия очевидна — они могут не только создать препятствия при извлечении капсулы из

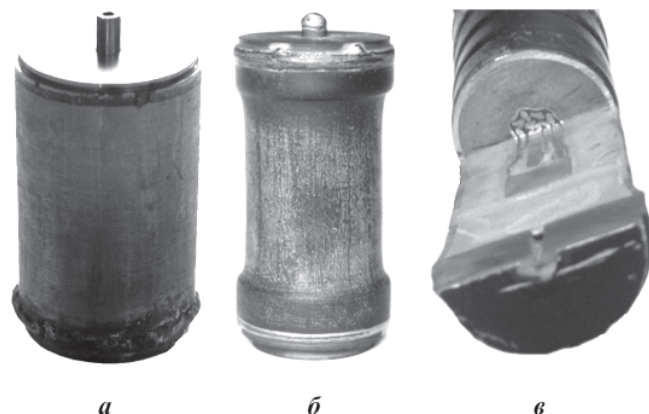


Рис. 3. Внешний вид капсул большого диаметра:

- a* — капсула до изостатического прессования;
- б* — капсула после изостатического прессования;
- в* — сечение защитной капсулы с макетом ОТВС в стеклокерамической толстостенной оболочке после изостатического прессования

газостата, но и послужить инициатором трещин в стеклокерамическом монолите в районе гофра оболочки.

Эксперименты и анализ неупругого формоизменения металлической оболочки капсулы с жестким сердечником под действием внешнего изостатического давления позволили сделать заключение, что максимально допустимый исходный диаметральный зазор между оболочкой и сердечником, при котором невозможно образование гофров, определяется математическим выражением, которое выведено из схемы “минимального” гофра (рис. 4):

$$x < h(1 - 2/\pi), \quad (1)$$

где x — исходный диаметральный зазор между оболочкой и сердечником; h — толщина металлической оболочки; $(1 - 2/\pi) \approx 0,363$.

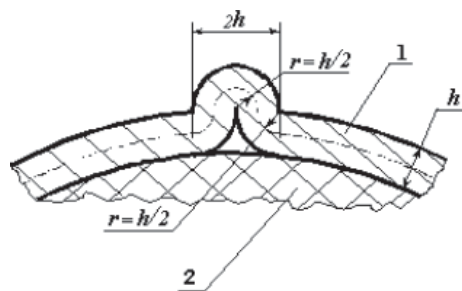


Рис. 4. Схема “минимального” гофра:

- 1 — металлическая оболочка; 2 — сердечник;
- r — радиус изгиба средней линии оболочки в зоне образования гофра

Подтверждение выражения (1) получено в эксперименте по изостатическому прессованию капсулы с металлическим сердечником, который имел ступенчатое изменение диаметра по высоте. Такой конструкцией были заданы различные значения диаметрального зазора между сердечником и оболочкой на трех участках по высоте капсулы: $0,3 h$, $0,68 h$ и $1,45 h$, где h — толщина оболочки. После ГИП-обработки при 21 МПа и 700 °С на первом участке оболочка сохранила цилиндрическую форму, на втором — имела слабо выраженное отклонение от круговой формы в сторону образования продольных гофров, на третьем — явно выражались пять зародышей продольных гофров, почти равномерно расположенных по окружности.

При газостатическом прессовании необходимо учитывать, что в защитной капсуле коэффициент термического расширения материала сердечника (стеклокерамика) значительно ниже коэффициента термического расширения материала металлической оболочки. Вследствие этого исходный зазор между оболочкой и сердечником при нагреве будет увеличиваться, и на практике нужно так организовать процесс ГИП, чтобы не создавались дополнительные условия для образования продольных гофров за счет нагрева. В связи с этим на начальной стадии изостатического прессования необходимо без нагрева капсулы повышать давление до значения, обеспечивающего переход оболочки по всему сечению в пластическое состояние. При этом оболочка входит в плотный контакт с сердечником, после чего следует повышать температуру, а также давление до рабочих параметров изостатического прессования [2]. Такой режим газостатического прессования макетов капсул в экспериментах обеспечил сохранение в результате ГИП прессуемыми изделиями почти прямолинейной осесимметричной формы с кольцевыми канавками в местах стыков таблеток (рис. 2, *в* и 3, *б*). Оболочка капсулы равномерно, без образования продольных гофров, охватывает сердечник. Изменение объема стеклокерамического материала привело к его уплотнению с 62–73 % до 97–99 % теоретической плотности. Продольные срезы показали, что барьерный материал представляет собой монолит, плотно прилегающий к боковой поверхности оболочки и торцам капсулы (рис. 3, *в*).

Отметим, что на завершающей стадии изостатического прессования при охлаждении и снижении давления в газостате возможно появление растягивающих термических напряжений в наружных слоях барьерного слоя, обусловленных радиальным градиентом температуры. Общее, переменное во времени напряженное состояние барьерного слоя определяется суммой этих напряжений и сжимающих напряжений, вызванных давлением газа и разностью коэффициентов термического расширения материала оболочки и сердечника. В связи с этим на завершающей стадии обработки необходимо так изменять температуру и давление в рабочем пространстве газостата, чтобы гарантированно избежать появления суммарных растягивающих напряжений в материале барьерного слоя. Для этого разработаны компьютерные программы расчета температуры и напряжений в протяженном многослойном цилиндре, которые позволяют установить зависимость радиального перепада температуры в цилиндрической капсуле от темпа охлаждения, что, в свою очередь, позволяет рассчитать динамику напряженного состояния капсулы, вызванного радиальным градиентом температуры и давлением газа. Регулируя соответствующим образом скорость снижения температуры и давления газа на стадии охлаждения, можно избежать не только появления растягивающих напряжений в барьерном слое, но и минимизировать суммарные механические напряжения перед выгрузкой капсулы из газостата.

Выводы

Для кондиционирования ОЯТ и поврежденных отработавших твэлов, в первую очередь разрушенного блока Чернобыльской АЭС, предложен метод капсулирования с помощью

ГИП-обработки. Благодаря данному методу можно получить толстостенную монолитную стеклокерамическую защитную оболочку, охватывающую радиоактивные материалы, которая обладает высокой коррозионной и радиационной стойкостью, что обеспечивает возможность как хранения отработавших твэлов в капсулированном виде на открытой площадке, так и последующего их геологического захоронения без перегрузки.

Для заполнения внутренней капсулы и свободного пространства между твэлами целесообразно использовать крупнозернистый порошок стеклокерамики. Для создания наружного барьерного слоя в качестве заготовок следует применять предварительно спеченные втулки, крышку и днище.

Установлено, что для сохранения капсулами прямолинейной формы в процессе горячего изостатического прессования необходимы:

обеспечение размера исходного диаметрального зазора между сердечником и оболочкой капсулы не более 0,36 толщины оболочки;

повышение давления на начальной стадии изостатического прессования без нагрева капсулы до значения, обеспечивающего переход оболочки по всему сечению в пластическое состояние, осуществление плотного контакта оболочки с сердечником и последующее повышение температуры и давления до рабочих параметров изостатического прессования.

На завершающей стадии ГИП-обработки необходимо проводить снижение температуры и давления в соответствии с разработанными компьютерными программами оптимизации режима охлаждения капсулы для избежания растягивающих напряжений в керамическом барьерном материале при выгрузке капсулы из газостата.

Список литературы

1. Hedman T. The Swedish Programs enters the site selection phase // J. Radwaste Solutions. — 2003, March/April. — P. 53–60.
2. Ажажа Ж. С., Габелков С. В., Линник Ю. А. и др. Исследование капсулирования отработавшей ТВС РБМК горячим изостатическим прессованием // Атомная энергия. — 2007. — Т. 103, вып. 6. — С. 347–352.
3. Саенко С. Ю., Габелков С. В., Тарасов Р. В. та ін. Спосіб капсулювання радіоактивних відходів: пат. № 52494 Україна: МПК G21F9/26; опубл. 16.12.02, Офіц. Бюл. Укрпатента «Пром. власність», № 12.
4. Ажажа Ж. С., Ашихмин В. П., Линник Ю. А. и др. Создание газостатического оборудования для отработки процессов кондиционирования высокоактивных отходов // Энергетика и электрификация. — 2005. — № 7. — С. 52–55.
5. Саенко С. Ю. Капсулирование отработанного ядерного топлива в защитные стеклокерамические формы: технологический подход и оценка применения // В сб.: Междунар. конф. «Обращение с отработанным ядерным топливом». — К., 2000. — С. 32–5.
6. Саенко С. Ю., Габелков С. В., Ажажа Ж. С. и др. Изучение влияния γ -облучения на физико-механические свойства стеклокерамических материалов для изоляции радиоактивных отходов // В сб.: 17-я Междунар. конф. по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению. — 2006. — С. 249–250.

Надійшла до редакції 05.05.2009.