

Ж 53
А92

АКАДЕМИЯ НАУК СОЮЗА ССР
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ КОМИТЕТ
ПО ИСПОЛЬЗОВАНИЮ
АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ СССР



Ежемесячный журнал
ГОД ИЗДАНИЯ ДВЕНАДЦАТЫЙ

АТОМИЗДАТ ■ МОСКВА ■ 1968

Том 24 ■ Май ■ Вып. 5

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ:

А. И. АЛИХАНОВ, А. А. БОЧВАР, А. П. ВИНОГРАДОВ, Н. А. ВЛАСОВ (зам. главного редактора), И. Н. ГОЛОВИН, Н. А. ДОЛЛЕЖАЛЬ, А. П. ЗЕФИРОВ, В. Ф. КАЛИНИН, Н. А. КОЛОКОЛЬЦОВ (зам. главного редактора), А. К. КРАСИН, А. И. ЛЕЙПУНСКИЙ, В. В. МАТВЕЕВ, М. Г. МЕЩЕРЯКОВ, М. Д. МИЛЛИОНЩИКОВ (главный редактор), П. Н. ПАЛЕЙ, Д. Л. СИМОНЕНКО, В. И. СМЕРНОВ, В. С. ФУРСОВ, В. Б. ШЕВЧЕНКО.

СОДЕРЖАНИЕ

СТАТЬИ

В. И. Баранов. Развитие радиогеологии в СССР . . .	419
Я. Богач, П. Квитнер, Э. Сабо. Определение некоторых примесей в кремнии высокой чистоты методом активационного анализа без разрушения образцов	421
Я. Божик, Е. Кубовский, С. Лятэк. Измерение материального параметра критической сборки «Анна»	425
Н. Г. Баданина, Ю. П. Сайков. Критерий сравнения состояния твэлов активной зоны реактора	429
Ю. В. Чухкин, Е. Ф. Давыдов, В. Н. Сюзёв, Т. М. Гусева, В. В. Колесов, М. Д. Дерибизов. Радиационная стойкость пластинчатых твэлов реактора СМ-2	432
Б. Г. Егназаров, В. А. Зюбко, А. И. Новиков. Выбор оптимальной аналитической методики при инструментальном активационном анализе	435
В. И. Субботин, Д. М. Овечкин, Д. Н. Сорокин, А. П. Кудрявцев. Теплоотдача при кипении натрия в условиях свободной конвекции	437
В. П. Бобков, М. Х. Ибрагимов, В. И. Субботин. Расчет коэффициента турбулентного переноса тепла при течении жидкости в трубе	442
В. Я. Кудяков, М. В. Смирнов, Н. Я. Чукреев, Ю. В. Поеохин. Образование двухвалентного тория в среде расплавленного хлористого калия	448
Н. М. Зуева, Л. С. Соловьев. Равновесие и устойчивость плазмы в аксиально симметричных тороидальных системах	453

ПЕРСОНАЛИЯ

Исаак Константинович Кизкин (к 60-летию со дня рождения) 460

АННОТАЦИИ ДЕПОНИРОВАННЫХ СТАТЕЙ

Н. Е. Брежнева, Ю. И. Капшанинов, С. Н. Озипранер. Изучение кинетики электролитического выделения гидроокисных осадков редкоземельных элементов

А. С. Тшечкин. Вычислительное устройство для обработки γ -спектров	462
В. Е. Дроздов, Ю. С. Рябухин. К расчету мощностей поглощенных доз полоого цилиндрического облучателя с неравномерным распределением активности	463
М. Задубан, Л. Медвидь. Определение суммарной β -активности долгоживущих продуктов деления при помощи K^{40}	464
Г. П. Березина, Я. Б. Файнберг, А. К. Березин. Экспериментальное исследование потоков быстрых ионов, образующихся в системе пучок — плазма	465

ПИСЬМА В РЕДАКЦИЮ

М. А. Сарычев, Ю. Н. Алексенко, Н. В. Звонков, В. И. Буйницкая, И. В. Рогожкин, А. А. Баталов, Ю. В. Александров. Распределение потока тепловых нейтронов в различных отражателях с каналами	467
Т. М. Гусева, Е. Ф. Давыдов, В. Н. Сюзёв, Ю. В. Чухкин. О возможном характере изменения объема тепловыделяющих композиций при твердом распухании	469
Е. М. Лобанов, Н. В. Зиновьев. Определение необходимой статистики при бескорреляционной расшифровке данных активационного анализа	471
С. Н. Вотинин, Т. М. Гусева, В. И. Клименков. О радиационной стойкости сплава циркония с 1% ниобия в условиях работы реактора СМ-2	473
А. Э. Шеми-заде. О сухих выпадениях продуктов ядерных испытаний	474
К. П. Захарова, Г. М. Иванов, В. В. Куличенко, Н. В. Крылова, Ю. В. Сорокин, М. И. Федорова. Об использовании тепла химических реакций для термической переработки жидких радиоактивных отходов	475

225381/не



п

а в период с декабря 1961 г. по февраль 1962 г. $\lambda = 0,08 \pm 0,02$. Используя формулу (2), можно получить долю сухих выпадений:

$$\frac{C_c}{C_m + C_c} = \frac{1}{1 + \lambda B} \quad (3)$$

где B — количество осадков (в миллиметрах), выпавших за неделю (так как значение λ определялось по недельным выпадениям).

В г. Ташкенте среднее значение доли сухих выпадений в период глобальных выпадений составило $74 \pm 20\%$, а во время интенсивных выпадений было равно $42 \pm 25\%$. При этом необходимо отметить, что за отдельные интервалы времени при сохранении величины уровня суммарных выпадений доля сухих выпадений была еще выше (до 96%).

Временная зависимость λ может быть обусловлена изменением степени дисперсности радиоактивных аэрозолей и связанными с этим изменением вариациями интенсивности вымывания и сухого осаждения.

Поступило в Редакцию 12/VI 1967 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. Э. Шемпи-заде. «Докл. АН УзССР», № 11, 24 (1966).
2. W. Libby. Proc. Nat. Acad. Sci. U.S.A., 44, 800 (1958).
3. Доклад научного комитета ООН по действию атомной радиации, A/AC, 82/G/L, 343, 1961.
4. Доклад научного комитета ООН по действию атомной радиации, A/AC, 82/R, 124/Rev., 2, 1962.
5. V. Megery, V. Chiriac. Ann. Stint. Univ. Jasi, 16, No. 10, 117 (1964).
6. Доклад научного комитета ООН по действию атомной радиации, A/AC, 82/G/L, 516, 1960.
7. В. Н. Лавренчик. Глобальное выпадение продуктов ядерных взрывов. М., Атомиздат, 1965, стр. 132.

Об использовании тепла химических реакций для термической переработки жидких радиоактивных отходов

К. П. ЗАХАРОВА, Г. М. ИВАНОВ, В. В. КУЛИЧЕНКО, Н. В. КРЫЛОВА,
Ю. В. СОРОКИН, М. И. ФЕДОРОВА

УДК 621.039.75:542.65:536.66

В предыдущем сообщении [1] были приведены первые результаты исследования возможности применения тепла некоторых химических реакций для переработки твердых остатков жидких радиоактивных отходов в плавильные материалы непосредственно в мольнике. Работа проводилась применительно к отходам, твердый остаток которых состоит из окиси алюминия или из смеси окисей железа, хрома, кальция и др.

В настоящей работе представлены результаты дальнейшего исследования условий и особенностей хемотермической переработки радиоактивных отходов различных составов. В состав сброшенных радиоактивных растворов могут входить такие компоненты, как нитраты, в том числе нитрат натрия, органические соединения и др. Кроме того, состав твердого остатка растворов зависит от выбранного режима обезвреживания. Если обезвреживание проводится при температуре $110-120^\circ\text{C}$, то образующийся твердый остаток содержит нитраты и органические примеси. Если обезвреживание проводится при более высоких температурах, порядка $600-700^\circ\text{C}$, основными компонентами твердого остатка могут быть карбонаты, образующиеся при взаимодействии нитратов с продуктами разложения органических соединений.

При наличии в шихте значительных количеств нитрата натрия для проведения процесса плавления может быть использовано тепло, выделяющееся при взаимодействии последнего с восстановителями, в том числе с металлическим алюминием. Указанная реакция характеризуется высоким тепловым эффектом ($2180 \text{ ккал на } 1 \text{ кг смеси}$).

Подобные реакции протекают очень бурно и при больших количествах смеси могут носить взрывной характер. Для снижения удельного тепловыделения, а также для улучшения качества образующегося плавильного материала в шихту необходимо вводить флюирующие добавки. При переработке нитрата натрия

лучшим флюсом является двуокись кремния (может использоваться мелкий кварцевый песок).

Результаты исследования процесса показали, что допустимое содержание нитрата натрия в шихте находится в пределах $20-50\%$.

Поскольку нитратсодержащие продукты имеют органические примеси, определяли допустимые количества органических продуктов (сульфокислот) в шихте. Было установлено, что допустимо содержание до 3% органических примесей. В противном случае либо реакция не происходит, либо в результате реакции образуется хрупкий шлаковидный продукт.

В том случае, когда в результате первой стадии переработки (обезвреживания) образуется продукт, содержащий, вместо нитратов, карбонаты или окислы, для проведения процесса в шихту вводится и окислитель, и восстановитель. Причем для получения плавильного материала может быть использован как термит, состоящий из окиси железа и алюминия, так и смесь нитрата натрия с алюминием. Содержание твердого остатка, состоящего в основном из карбонатов и не имеющего органических примесей в шихте, в которую в качестве термитной добавки введена смесь окиси железа с алюминием, не может быть выше $20-25\%$, при этом термитная добавка составляет не менее 60% . Наличие органических примесей даже в небольших количествах ($2-2,5\%$) значительно затрудняет процесс. Использование для переработки тех же продуктов нитрат-алюминиевого термита позволяет повысить содержание твердого остатка радиоактивных отходов до 35% при одновременном снижении добавки термитной смеси до 50% .

Таким образом, с целью получения конечного плавильного материала может применяться термитная смесь любого из указанных выше составов.

Большое внимание в работе было уделено вопросу образования возгонов в ходе хемотермического про-

Влияние состава шихты и температуры процесса на количество возгонов

Состав шихты, вес. %	Температура процессов, °C	Количество возгонов, % от веса шихты
NaNO ₃ —32,0; Al—17,0; SiO ₂ —33,0; CaO—18,0	2300	11,7
	2000	7,5
	1975	6,7
	1875	5,7
	1500	4,0
Fe ₂ O ₃ —47,0; CaSi ₃ —13,3; Al—6,7; Al ₂ O ₃ —21,2; NaNO ₃ —12,0	1970	4,4
Fe ₂ O ₃ —52,5; CaSi ₃ —15,0; Al—7,5; Al ₂ O ₃ —23,8; NaNO ₃ —1,2	1730	1,2

песса. В табл. 1 приведены результаты исследования зависимости количества возгонов от различных факторов. Показано, что количество возгонов, образующихся при хемотермическом процессе, зависит от состава шихты и от температуры процесса. Причем изменение температуры оказывает более заметное влияние, чем изменение состава шихты.

Исследование химического состава возгонов показало, что они содержат окислы практически всех металлов, соединения которых находятся в составе шихты. Однако основную массу возгонов составляют

Химический состав возгонов для различных шихт

Состав шихты, вес. %	Состав возгонов, вес. %				
	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	CaO	Fe ₂ O ₃
Fe ₂ O ₃ —52,5; Al—7,5; CaSi ₃ —15,0; Al ₂ O ₃ —23,8; NaNO ₃ —1,2	52,2	11,6	14,1	9,1	13,1
Fe ₂ O ₃ —31,5; Al—6,3; CaSi ₃ —12,6; Al ₂ O ₃ —37,0; NaNO ₃ —12,6	28,5	20,7	18,2	11,8	20,8
Fe ₂ O ₃ —47,0; Al—6,7; CaSi ₃ —13,3; Al ₂ O ₃ —21,2; NaNO ₃ —12,0	27,8	34,2	15,8	6,2	16,0
NaNO ₃ —40,0; Al—30,0; SiO ₂ —30,0	31,8	26,4	41,8	—	—
NaNO ₃ —25,0; Al—16,0; SiO ₂ —38,0; CaO—21,0	29,8	31,9	34,0	4,0	—
NaNO ₃ —37,0; Na ₂ SO ₄ —9,0; Al—27,0; SiO ₂ —27,0	16,8	67,3	15,9	—	—

окислы кремния и алюминия. В качестве примера в табл. 2 приведен состав возгонов для различных шихт (в пересчете на окислы).

Состав возгонов, так же как и их количество, зависит не только от состава шихты, но и от температуры процесса. Особенно заметно температура процесса влияет на поведение алюминия: переход его в возгон увеличивается от 0,4% при 1730°С до 4,3% при 1970°С. Улетучивание натрия мало зависит от температуры в указанных пределах и значительно больше зависит от общего его содержания в шихте. Появление в возгонах больших количеств окиси алюминия и двуокиси кремния неоднократно наблюдалось при металлотермической выплавке различных металлов [2—4]. Это объясняется образованием моноокисей кремния и алюминия, которые характеризуются высокой упругостью пара. При попадании в холодную зону AlO окисляется до Al₂O₃, а SiO до SiO₂, образуя белый дым. Переход в газовую фазу окиси кальция связан, вероятно, с улетучиванием металлического кальция, так как давление его пара уже при 1439°С составляет 760 мм рт. ст. [5]. Это подтверждается и тем фактом, что при введении в шихту CaO содержание кальция в возгоне значительно меньше, чем при введении силикокальция, несмотря на меньшее содержание последнего (см. табл. 2). Появление в возгонах окислов железа при температуре около 1800°С отмечалось и ранее. Однако по вопросу механизма перехода окисей железа в газовую фазу нет единого мнения [6].

Удельный вес возгона, определенный пикнометрическим методом, равен 2,4—2,5 г/см³. Рентгеноструктурное исследование возгона показало полное отсутствие кристаллической фазы, что подтверждается работами и других авторов [6].

При изучении дисперсного состава возгона установлено, что основную массу составляют частицы диаметром 1—5 мк, причем по мере удаления от зоны реакции наблюдается укрупнение частиц. Последнее объясняется в основном двумя факторами: высокой концентрацией частиц в газовом потоке (1,5—3 г/дм³) и наличием на них электрических зарядов.

Указанные свойства аэрозолей позволили предположить, что эффективной очистки газового потока можно добиться путем создания отстойных камер непосредственно за зоной реакции. Например, в двух последовательно расположенных камерах с объемом каждой, равным объему реакционной зоны, даже в отсутствие электрического поля осаждаются около 98—99% от общего количества возгонов.

При изучении поведения радиоактивных изотопов в ходе хемотермической переработки отходов нами было показано, что улетучивание рутения очень мало (около 1%) независимо от того, какая из вышеуказанных смесей используется в качестве источника тепла. Это объясняется тем, что окислы рутения легко восстанавливаются до металла и летучей четырехокиси рутения не образуются.

Исследование улетучивания цезия при хемотермической переработке различных шихт и сравнение полученных данных с результатами изучения поведения натрия показало, что содержание цезия в возгоне пропорционально содержанию в нем натрия. В случае использования термита, состоящего из окиси железа и алюминия, переход цезия в возгон составляет 3—4%, при использовании нитрат-алюминиевого термита 10—15%.

Исследование состава газовой фазы, образующейся при хемотермическом процессе, показало, что в опре-

деленных условиях в ней может содержаться водород или метан. Водород образуется при использовании в качестве термита смеси окисей железа и алюминия и при наличии влаги в шихте. Метан образуется при наличии в шихте органических примесей. Дожигание водорода и метана путем увеличения содержания окиси железа в шихте или подачи дополнительного количества воздуха в реакционную зону нельзя считать надежным методом, так как в промышленных условиях трудно учесть количество влаги или органических примесей. Более взрывобезопасным следует считать использование нитрат-алюминиевого термита, так как в этом случае при проведении опытов в лабораторных условиях в газовой фазе водорода или метана не обнаружено.

Поступило в Редакцию 12/VI 1967 г.

Влияние растворенного кислорода на электросопротивление жидкого натрия

А. В. АФОНИНА, Б. А. НЕВЗОРОВ, О. В. СТАРКОВ

В основе одного из методов контроля чистоты натрия-теплоносителя лежит зависимость электросопротивления натрия от концентрации растворенных примесей [1—3].

Имеющиеся данные по влиянию растворенного кислорода на электросопротивление натрия противоречивы. В таблице по данным работ [1—6] приводятся величины относительного изменения электросопротивления на один атомный процент кислорода, растворенного в натрии. Создается впечатление, что эта размерность в большей степени отвечает физическому смыслу влияния примесей на электросопротивление натрия, чем приведенные в указанных работах

($\text{мком} \times \text{см} / \text{вес.} \% \text{ кислорода} \cdot \frac{\% \Delta \rho}{\rho} / \text{вес.} \% \text{ кислорода}$).

Значительное расхождение величин, по-видимому, связано с различным способом введения кислорода в натрий и неучетом влияния других примесей.

Сравнительные измерения электросопротивления натрия с различным содержанием кислорода проводили при температурах до 800°С. Две трубки из стали 1X18H10T ($9 \times 0,4 \text{ мм}$) в вакуумных условиях заполняли натрием с разным исходным содержанием кислорода: 0,005 и 0,6 вес. % (во втором случае добавляли химически чистую перекись натрия). Электросопротивление заполненных трубок измеряли двойным мостом постоянного тока. Расстояние между потенциометрическими электродами равнялось $100 \pm 0,5 \text{ мм}$. Изменение температуры по длине трубок не превышало $\pm 5^\circ \text{С}$. Электросопротивление измеряли в процессе повышения и снижения температуры (прямой и обратный ход температуры) с точностью $\pm 2 \times 10^{-7} \text{ ом}$. Общее сопротивление трубки с натрием, содержащим 0,6 вес. % кислорода, во всем интервале температур оказалось больше, чем сопротивление трубки с натрием, содержащим 0,005 вес. % кислорода. Минимальные среднеквадратичные отклонения экспериментальных точек для кривых изменения электросопротивления первой и второй трубок составляли $0,645 \cdot 10^{-5}$ и $0,610 \cdot 10^{-5} \text{ ом}$ соответственно. При расчете удельного сопротивления натрия по результатам измерения общего сопротивления трубок с натрием использовали справочные данные по электросопротив-

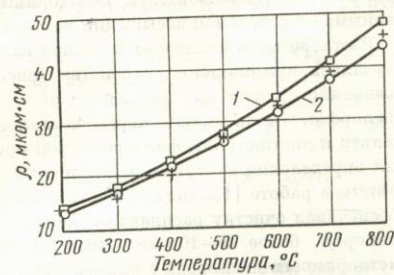
ЛИТЕРАТУРА

1. В. Г. Верескунов и др. «Атомная энергия», 20, 277 (1966).
2. П. В. Гельд, Р. М. Леринман. «Ж. прикл. химии», XXIII, 1191 (1950).
3. П. В. Гельд, Н. Н. Буйнов. Там же, стр. 1087.
4. П. В. Гельд, О. А. Есин. Там же, стр. 1200.
5. А. Н. Несмеянов. Давление пара химических элементов. М.—Л., Изд-во АН СССР, 1963.
6. Н. А. Торопов, В. П. Барзаковский. Высокотемпературная химия силикатных и других окисных систем. М.—Л., Изд-во АН СССР, 1963.

УДК 621.039.534.63.24

лению стали 1X18H10T [7]. С ростом температуры разница между удельными сопротивлениями натрия в трубках увеличивается (см. рисунок). Это связано с тем, что концентрация растворенного кислорода в грязном натрии увеличивается согласно кривой растворимости (0,6 вес. % кислорода в натрии соответствует равновесной растворимости, находящейся за пределами 800°С), в то время как в относительно чистом натрии сохраняется постоянное содержание растворенного кислорода — 0,005 вес. % (равновесная растворимость для температуры 250°С). Полученные результаты для температурной зависимости удельного электросопротивления натрия, содержащего 0,005 вес. % кислорода, с точностью до 5% совпадают с литературными данными для чистого натрия [8]. При температурах до 500°С разница между электросопротивлениями обоих образцов натрия лежит в пределах ошибки измерения. При расчете влияния кислорода на электросопротивление натрия при 650—800°С равновесную концентрацию кислорода в натрии определяли по уравнению, выведенному на основе опубликованных данных [3, 9, 10]:

$$\lg C = 1,226 - 1840/T,$$



Зависимость удельного электросопротивления натрия от температуры:

1 — грязный натрий с равновесным содержанием кислорода; 2 — чистый натрий с 0,005 вес. % кислорода; + — чистый натрий (данные работы [7]).