

УДК 621.039.73

ЦЕМЕНТИРОВАНИЕ КУБОВЫХ ОСТАТКОВ АЭС С РАЗМЕЩЕНИЕМ КОМПАУНДА В ХРАНИЛИЩАХ НАЛИВНОГО ТИПА

*Козлов П.В., Слюнчев О.М. (ПО «Маяк», г. Озерск, Челябинская обл.),
Кириянов К.В., Мялкин И.В. (ННГУ им. Н.И. Лобачевского, г. Нижний Новгород)*

Одним из основных видов радиоактивных отходов АЭС является кубовый остаток от упаривания низко- и среднеактивных жидких отходов. Такие отходы подлежат отверждению цементированием, что объясняется сравнительной простотой практической реализации и удовлетворительным качеством получаемого компаунда [1].

Отверждение может проводиться как в специальном смесителе периодического либо непрерывного действия с последующей выдачей цементного раствора в контейнер либо отсек хранилища, так и непосредственно в контейнере, используемом для хранения компаунда. Непрерывный режим работы смесителя более производительен, но при этом сложно добиться постоянства состава компаунда. Периодический режим обеспечивает более точную дозировку компонентов на каждой операции. В качестве емкости для хранения обычно используют стальные бочки или бетонные контейнеры объемом 1—3 м³. При использовании контейнеров возможны их перемещение, классификация, например, по типу и активности отвержденных отходов и контроль состояния упаковки. Кроме того, не предъявляются повышенные требования к подвижности цементного раствора и тепловыделению в ходе гидратации. Следует отметить, что подобное технологическое решение в настоящее время наиболее распространено на АЭС.

Недостатками данного способа хранения являются большее количество технологических операций, значительные затраты на контейнеры и неоптимальное заполнение объема хранилища. Указанных недостатков нет при размещении компаунда в хранилищах наливного типа, где отвержденные отходы помещают непосредственно в отсеки большого объема — около сотен кубических метров, стенки которого являются инженерным барьером.

Примером подобной организации процесса может служить отверждение высокосолевых отходов установки GTF Хандфордского радиохимического комплекса (США). В 1980-х гг. было

отверждено и размещено в хранилище 3800 м³ сульфатно-фосфатных жидких радиоактивных отходов [2]. Железобетонный отсек хранилища длиной 38, шириной 15 и глубиной 10 м с толщиной стенок от 0,6 до 1,2 м на высоту 9,1 м заполняли цементным компаундом. Остальное пространство заливали чистым бетоном. В качестве гидроизолирующего диффузионного барьера использовали асфальтовое покрытие толщиной около 1 м. Верх отсека имел песчано-глиняный барьер, отводящий просочившуюся воду из гравийного барьера. Над хранилищем во избежание проникновения животных и прорастания корней растений размещали предохранительный барьер из дробленого камня.

Аналогичная технология цементирования отходов перерабатывающего завода была принята в Китае [3], Германии [4]. В последнем случае отвержденные радиоактивные отходы закачивали в виде цементного раствора в соляные каверны на глубине до 1000 м.

В ПО «Маяк» в сооружаемом комплексе цементирования жидких среднеактивных отходов также предполагается использовать хранилище цементного компаунда наливного типа [1]. Оно будет представлять собой сооружение приповерхностного типа, состоящее из 100 железобетонных отсеков. Отсек шириной и длиной по 5 м, высотой около 11 м позволит размещать около 260 м³ отвержденных отходов. Ежегодно планируется заполнять по 4—6 отсеков общим объемом до 1600 м³. Отсеки цементной смесью будут заливать поочередно, чтобы обеспечить оптимальный температурный режим в хранилище. Каждый отсек будет оснащен смесителем, который планируется захоранивать после использования в этом же отсеке. Перекрытие толщиной 0,7 м обеспечит радиационную защиту от ионизирующего излучения.

После окончания эксплуатации комплекса цементирования среднеактивных отходов (20—50 лет) все оборудование и легкоъемные строительные конструкции, расположенные над хранилищем, будут демонтированы, оставшиеся

вспомогательные помещения, проходки, коридоры и другие пустоты залиты бетоном, хранилище законсервируют.

Несмотря на очевидные достоинства хранилищ наливного типа, к указанной технологии предъявляются специфические требования:

теплота гидратации цементной смеси из-за затрудненных условий теплоотвода из монолита должна быть пониженной. Температура компаунда на границе с железобетонной стенкой отсека хранилища не должна превышать 90 °С;

подвижность цементного раствора должна обеспечивать равномерное заполнение отсеков хранилища;

компаунд не должен расслаиваться в процессе схватывания, водоотделение на его поверхности не должно превышать 1% по объему.

При выполнении данных условий одновременно должны соблюдаться нормативные требования к цементному компаунду. Это требует тщательного подбора параметров отверждения. Следует отметить, что вследствие большого объема монолита помещенные в хранилище наливного типа отвержденные отходы нельзя извлекать, перемещать или перетаривать. В связи с этим конструкция хранилища и свойства отвержденного компаунда должны полностью соответствовать современным требованиям к подобным объектам.

Разработанные в ПО «Маяк» состав и технология цементирования жидких среднеактивных отходов с последующим хранением компаунда в отсеках большого объема обеспечивают пониженное тепловыделение компаунда при твердении и высокую подвижность цементной смеси. Получаемый компаунд удовлетворяет всем нормативным требованиям.

Тепловыделение компаунда снижается путем замены большей части портландцемента золами местных ТЭС (Аргаяшской ТЭЦ и Рефтинской ГРЭС), глинистыми добавками, а также увеличением концентрации солей в отходах. Доля портландцемента в сухой смеси не превышает 30% по массе, концентрация солей в отверждаемом растворе, главным образом, нитрата натрия составляет от 300 до 600 г/л [5]. Калориметрические исследования показали, что за счет принятых мер тепловыделение снизится с 200 до 60 Дж/г [5].

Минимальное содержание портландцемента как вяжущего материала в разработанной сухой смеси (20% по массе) определяется необходимостью соблюдения нормативных требований по прочности затвердевшего компаунда — не менее 50 кг/см² [6]. По сравнению с портландцементом максимальная температура твердения блока объемом 0,15 м³ снижена со 130 до 42 °С [7]. Причем наблюдалось не только уменьшение максимальной температуры разогрева, но и сдвиг температурного максимума с 15 ч после затворения до 60—70 ч.

При дальнейшем масштабировании эксперимента температура в центре блока компаунда объемом 4 м³ в ходе его твердения не превысила 57 °С [5]. На поверхности центральной части блока и его периферии температурный максимум составил 46 и 36 °С соответственно. Максимум разогрева был достигнут через 45—65 ч после заполнения отсека цементной смесью, и дольше всего он продолжался в центральной части блока. Сухая смесь содержала, % по массе: ПЦ-400 30, зола Аргаяшской ТЭЦ 59,7, бентонит 10, суперпластификатор С-3 0,3. Отверждаемый раствор содержал нитрат натрия в концентрации около 300 г/л. Отношение объема отверждаемого раствора к массе сухой смеси в ходе эксперимента составило 0,485 м³/т. Образец имел размер 2×2×0,9 м.

Согласно предварительным расчетам температура в центре одиночного отсека объемом 300 м³ при скорости заполнения цементной смесью разработанного состава 3 м³/сут не превысит 117 °С, на границе со стенкой хранилища составит около 85 °С. Увеличение скорости загрузки отсека до 4 м³/сут может привести к существенному росту температуры компаунда — до 150 °С в центральной части. Максимум температуры достигается на 30—40-е сут после начала загрузки с последующим плавным снижением до исходной температуры через 400—450 сут. Указанный тепловой расчет предполагает, что удельная активность цементного компаунда составит ~10⁹ Бк/кг, вклад радиационного разогрева в общий тепловой баланс невелик — обусловленный им прирост температуры не превысит 2 °С.

Необходимая подвижность цементной смеси (20—23 см по стандартному конусу) достигается высоким раствороцементным соотношением (0,55—0,6 см³/г), а также использованием пла-

стификаторов (С-3 либо ЛСТ) в количестве 0,3—0,4% по массе. Водоотделение при схватывании цементной смеси не превышает 1% по объему [6].

Прочная фиксация радионуклидов в компаунде достигается за счет применения бентонита и клиноптилолита (10% по массе), а также предварительной обработки раствора с осаждением карбоната кальция или диоксида марганца в щелочной области pH 10—12 [8]. Скорость выщелачивания ^{137}Cs и ^{90}Sr за 90 сут, определенная в соответствии с ГОСТом Р 52126—2003, составляет $(2\text{—}6)10^{-4}$ г/(см²·сут), ^{241}Am — $2\cdot 10^{-5}$ г/(см²·сут) (рис. 1, а). Степень выщелачивания ^{137}Cs и ^{90}Sr не превышает 10%, ^{241}Am — 0,5% (рис. 1, б).

Компаунд соответствовал нормативным требованиям по водо-, морозо- и радиационной стойкости [9]. Прочность компаунда на 28-е сут составила около 105 кг/см², при дальнейшей выдержке в течение 6—7 месяцев она возрастала в 1,5 раза до 150 кг/см².

Таким образом, разработанные сухие смеси и параметры отверждения ими нитратсодержащих высокосолевого среднеактивных отходов обеспечивают соответствие получаемой цементной смеси и компаунда нормативным и технологическим требованиям.

Однако кубовые остатки АЭС имеют более сложный химический состав, отличающийся от указанного прежде всего наличием бората натрия, гидроксидов натрия и калия в значительной

концентрации (десятки и сотни граммов в 1 л), а также оксалатов, комплексонов, например, ЭДТА и поверхностно-активных веществ, например, ОП-10 [10, 11]. Это существенно затрудняет процессы гидратации и твердения цементного материала и может негативно отразиться на свойствах цементного компаунда. Так, известно, что тетрабораты существенно замедляют гидратацию цемента [10].

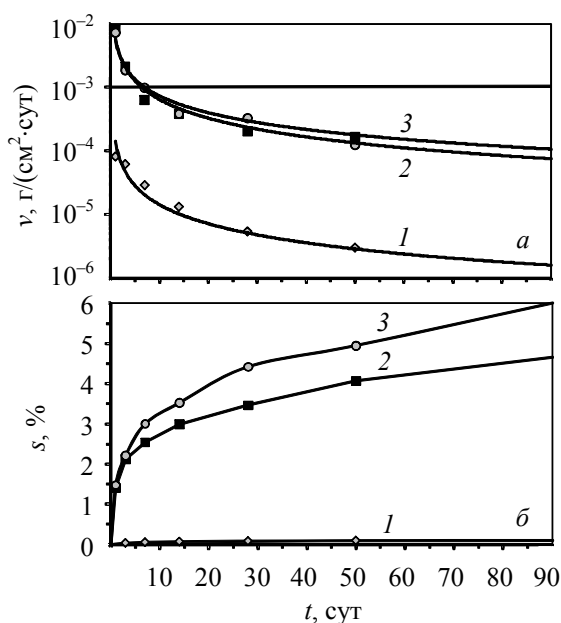
В настоящей работе исследовано влияние перечисленных компонентов на свойства разработанного для отсеков наливного типа матричного материала. Определены характеристики цементной смеси и компаунда с локализованными кубовыми остатками жидких радиоактивных отходов АЭС.

Экспериментальная часть. Для отверждения в исследованиях использовали модельный раствор кубового остатка от упаривания жидких радиоактивных отходов АЭС, состав которого выбран на основании данных работ [10—12] и приведен в табл. 1. В качестве сравнения использовали моделирующий среднеактивные отходы радиохимического производства раствор, содержащий нитрат натрия концентрацией 300 г/л.

Таблица 1. Химический состав модельного раствора

Компонент	Концентрация, г/л
H ₃ BO ₃	110
Na ₂ SO ₄	8
NaCl	1
NaNO ₃	180
NaOH	80
KOH	20
Na ₂ C ₂ O ₄	1
ЭДТА	1
ОП-10	1
pH	12,2—12,4

Перед отверждением в растворы вносили дополнительно нитрат кальция и карбонат натрия в сухом виде для осаждения карбоната либо гидроксида кальция (в кубовом растворе) в целях дополнительной фиксации радионуклидов, исходя из образования 5 г/л осадка [8]. В модельном растворе среднеактивных отходов после осаждения корректировали pH до 11 гидроксидом натрия.



Р и с. 1. Изменение скорости (а) и степени выщелачивания (б) ^{241}Am (1), ^{137}Cs (2), ^{90}Sr (3)

В качестве основных компонентов сухих смесей использовали портландцемент марки М-400 и низкокальцевую золу уноса Рефтинской ГРЭС в количестве 30 и 49,7% общей массы смеси. Химический состав золы, определенный на энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном анализаторе состава вещества ReSPEKT (Россия), представлен в основном оксидами кремния (56,7%), алюминия (20,9%), железа (6,3%) и кальция (2,2%). Зола характеризуется высокой дисперсностью — около 86% представлено фракцией с размером частиц менее 0,1 мм. Удельная поверхность золы и портландцемента близка и составляет около 2,2 м²/г.

В качестве сорбционных добавок использовали клиноптилолит и бентонит (по 10% массы сухой смеси). Клиноптилолит и бентонит имели высокую дисперсность и развитую поверхность (31,9 и 57,7 м²/г). Удельную поверхность порошкообразных материалов измеряли методом газовой адсорбции на установке СОРБИ N.4.1 (Россия). В качестве пластифицирующей добавки в цементных смесях использовали суперпластификатор С-3 в количестве 0,3% массы сухой смеси. Консистенцию цементной смеси определяли согласно ГОСТу 310.4—81 по расплыву стандартного конуса, водоотделение — ГОСТу 26798.1—96. Образцы затвердевшего компаунда размером 2×2×2 см, выдержанные 28 сут в воздушно-влажной атмосфере при 22 ± 2 °С, испытывали на прочность при сжатии согласно ГОСТу 310.4—81. Устойчивость компаунда к длительному пребыванию в воде (водостойкость) определяли согласно ГОСТу Р 51883—2002. Образцы компаунда помещали в колбы, заливали 100 мл дистиллированной воды. Иммерсионные испытания проводили в течение 130 сут без замены среды выщелачивания при 25 °С. Затем образцы извлекали, выдерживали на воздухе в течение суток, измеряли массу и подвергали испытанию на прочность на сжатие.

Влияние контакта с водой на прочность оценивали по ее относительному изменению в сравнении с контрольными образцами, хранившимися во время испытаний в воздушно-влажных условиях. Определяли также потерю массы.

Морозостойкость цементных компаундов определяли согласно ГОСТу 10060.1—95 по изменению прочности образцов в результате цик-

лического замораживания и оттаивания относительно контрольных образцов. В соответствии с требованиями ГОСТа Р 51883—2002 проводили 30 циклов замораживания-оттаивания.

Тепловыделение в процессе твердения компаунда измеряли с использованием дифференциального микрокалориметра ДАК1-1А (Россия). Цементную смесь затворяли модельными растворами непосредственно в реакционной ячейке микрокалориметра при 25 °С и давлении 101,325 кПа.

Результаты и их обсуждение. Характеристики цементных смесей и компаундов на их основе приведены в табл. 2.

Т а б л и ц а 2. Характеристики цементных смесей и компаундов на их основе

Характеристика	Среднеактивные отходы радио-химического производства	Кубовый раствор АЭС	
		0,55	0,6
Раствороцементное отношение, см ³ /г	0,55	0,55	0,6
Включение солей в компаунд, % по массе	10	13,1	13,8
Водоотделение, %	0,9	0,6	1,3
Растекаемость, см	23	16	—
Прочность образцов на сжатие после 28 сут твердения, кг/см ²	106	104	55

Результаты тестирования компаунда с кубовым остатком АЭС следующие:

Прочность образцов на сжатие, кг/см ² :	
после 28 сут твердения . . .	104
после испытаний на морозостойкость . . .	120
после иммерсионных испытаний . . .	143
Прочность на сжатие контрольных образцов, хранящихся в воздушно-влажных условиях, кг/см ² :	
на 70-е сут твердения . . .	151
на 160-е сут твердения . . .	144
Относительное снижение прочности образцов по отношению к контрольным, %:	
после испытаний на морозостойкость . . .	21
после иммерсионных испытаний . . .	1
Потеря массы образцами в результате иммерсионных испытаний, % . . .	
	10

Установлено, что при раствороцементном отношении, равном 0,55 см³/г, цементные растворы и компаунды, содержащие оба типа растворов, обладают высокими характеристиками.

Водоотделение не превышает 1% по объему, включение солей составляет 10 и 13% по массе, прочность на сжатие — около 105 кг/см². В то же время растекаемость цементного раствора, содержащего кубовый раствор АЭС, существенно ниже, чем состава с модельным раствором среднеактивных отходов, — 16 и 23 см соответственно. Это не может быть объяснено различием концентрации солей в отверждаемых растворах [6] и связано именно с различием их химического состава.

Увеличение растворцементного отношения до 0,6 см³/г приводит к существенному увеличению водоотделения цементного раствора (с 0,6 до 1,3%) и снижению прочности компаунда почти в 2 раза, что неприемлемо.

В то же время следует отметить, что нет жестких требований на растекаемость цементного раствора — она определяется многими факторами (геометрией отсека, производительностью и режимом работы смесителя, числом точек выдачи цементного раствора и высотой его падения при заполнении отсека) и для каждого конкретного случая должна определяться опытным путем. При периодической выдаче цементной смеси из одной точки в отсек размером 2×2×1,5 м с высоты около 3,5 м достигается его равномерное заполнение при растекаемости смеси 18 см и более [6, 9]. Поэтому подвижность полученного при растворцементном отношении 0,55 см³/г цементного раствора можно признать удовлетворительной.

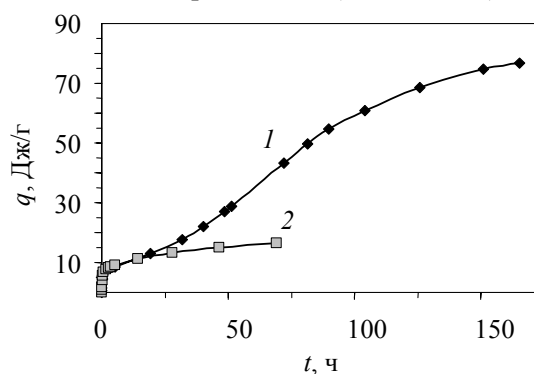
Исследованные образцы характеризовались высокой морозо- и водостойкостью — снижение прочности относительно контрольных составов 21 и 1% соответственно, что удовлетворяет нормативным требованиям (не более 25%). При этом прочность после испытаний на 20–40% превышает данный показатель на 28-е сут твердения, что свидетельствует о превалировании процессов упрочнения компаунда в ходе испытаний. Следует также отметить, что иммерсионные испытания проводили в более жестких условиях, чем установлено в ГОСТе Р 51883—2002, — продолжительность контакта образцов с водой составляла 130 сут вместо 90 сут. Образцы после испытаний характеризовались целостностью и отсутствием трещин.

Потеря массы образцами в ходе иммерсионного теста составила около 10%, что немного ниже наполнения компаунда по солям. Это объясняется тем, что часть компонентов раствора

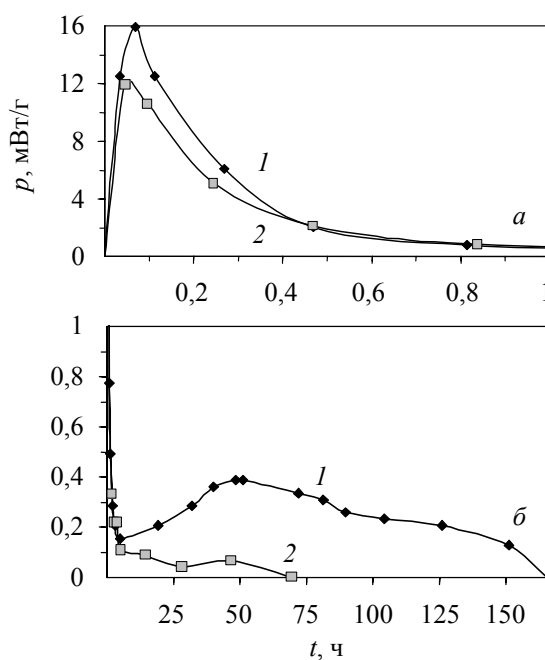
может образовывать малорастворимые соединения с компонентами матрицы, например, сульфаты, щелочи и прочно фиксироваться в компаунде.

Калориметрические исследования процесса твердения исследованных составов показали, что удельное тепловыделение компаунда с кубовым раствором АЭС существенно ниже, чем содержащего модельный раствор среднеактивных отходов, — 16,6 и 76,8 Дж/г соответственно. При этом максимальная тепловая мощность процессов — 12 и 15,9 мВт/г соответственно (рис. 2, 3).

Как следует из рис. 3, процессы гидратации и твердения могут быть разделены на три стадии, что согласуется с классическими представлениями [13]. Первый этап (около 0,5 ч) харак-



Р и с. 2. Изменение удельной теплоты цементных смесей со среднеактивными отходами (1) и кубовым раствором АЭС (2) в процессе твердения



Р и с. 3. Изменение удельной тепловой мощности твердения цементных смесей со среднеактивными отходами (1) и кубовым раствором АЭС (2) в течение 1 (а) и 160 ч (б)

теризуется резким ростом тепловыделения (3—5 мин) с дальнейшим спадом. В процессе гидролиза трехкальциевого силиката — одного из основных минералов в цементе выделяется гидроксид кальция, образуется пересыщенный раствор, из которого в течение нескольких минут начинают осаждаться первые новообразования. Затем наступает вторая стадия гидратации, для которой характерно образование очень мелких гидросиликатов кальция. Данная стадия характеризуется пониженным тепловыделением и длится около 4—5 ч. Указанные стадии проходят для обоих составов почти идентично, с немного меньшей интенсивностью у состава с кубовым раствором АЭС. Далее в компаунде с нитратсодержащими среднеактивными отходами наблюдается рост тепловыделения (тепловая мощность возрастает с 0,15 до 0,4 мВт/г смеси), связанный с прохождением третьей стадии гидратации цемента, в ходе которой начинается кристаллизация гидроксида кальция из цементного раствора. Третья стадия гидратации состава с кубовым остатком АЭС с точки зрения тепловых эффектов столь явно не выражена — мощность тепловыделения почти монотонно снижается, достигая нуля через 70 ч после затворения смеси.

Указанные различия в тепловых параметрах процесса твердения компаундов, содержащих использованные модельные растворы, свидетельствуют о значительном влиянии содержащихся в них компонентов на образование структуры матричного материала. Соли борной кислоты, содержащиеся в кубовом растворе АЭС, существенно тормозят процессы гидратации и твердения цемента, причем в значительно большей степени, чем нитрат натрия. Это подтверждается увеличенным в 2—3 раза относительно состава с раствором среднеактивных отходов временем затвердевания борсодержащего компаунда — около 3 сут. В то же время результаты прочностных испытаний образцов свидетельствуют о том, что за 28 сут указанные процессы нивелируются, что приводит к набору компаундами равной прочности. Дальнейшая выдержка образцов в воздушно-влажных условиях до 160 сут приводит к достижению прочности 145—150 кг/см² уже на 70-е сут твердения.

Более низкое тепловыделение борсодержащего компаунда по сравнению с нитратсодержащим при твердении позволяет прогнозировать

существенно меньший разогрев в отсеках при прочих равных условиях, что, в свою очередь, дает возможность увеличить долю портландцемента в сухой смеси при необходимости дальнейшего улучшения качества отвержденных отходов.

Таким образом, полученный цементный раствор с отходами АЭС соответствует предъявляемым требованиям по растекаемости и водоотделению, затвердевший из него компаунд — нормативным требованиям по прочности, водостойкости и морозостойкости.

Авторы благодарят С.И. Ровного за активное участие в подготовке статьи.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Козлов П.В., Слюнчев О.М., Ровный С.И., Масанов О.Л. Цементирование как способ отверждения жидких радиоактивных отходов. — Цемент и его применение, 2009, вып. 6, с. 67—72.
2. Raafat I., Roy M., Licastro H. Slag cement-low level radioactive waste forms at Savannah River Plant. — *At. Ceram. Soc. Bull.*, 1986, v. 65, № 12, p. 1578—1583.
3. Baisong Chen, Zhuying Chen, Jishu Ceng. Study on Cement Monolith Solidification for Immobilizing Intermediate Level Wastes from Reprocessing Plants. IAEA-TECDOC-568. Vienna: IAEA, 1990.
4. Kraemer R.H., Kroebel R.H. A containerless waste disposal concept by in-situ solidification of MLW/LLW in salt caverns. — In: Tucson '84, 1984, p. 75—84.
5. Козлов П.В., Слюнчев О.М., Ровный С.И. Композиция для отверждения жидких радиоактивных отходов. Патент РФ № 2360311, приоритет от 18 января 2008 г. — Бюл. «Изобретения. Полезные модели», 2009, № 18, с. 10—14.
6. Козлов П.В. Разработка технологии иммобилизации жидких содесодержащих САО в цементную матрицу с последующим хранением компаунда в отсеках большого объема. Автореф. дис. на соискание ученой степени канд. техн. наук. Санкт-Петербург, Радиовый институт им. В.Г. Хлопина, 2009. 18 с.
7. Козлов П.В., Слюнчев О.М., Бобров П.А. и др. Теплофизические свойства цементного компаунда как фактор технологии цементирования ЖРО. — Вопросы радиационной безопасности, 2008, № 1, с. 37—47.
8. Козлов П.В., Беланова Е.А., Слюнчев О.М. и др. Оптимизация параметров отверждения ЖРО в матрицы на основе портландцемента и золы уноса ТЭЦ с целью повышения прочности фиксации цезия и стронция. — Там же, № 2, с. 36—43.
9. Козлов П.В., Слюнчев О.М., Старовойтов Н.П. Состав и свойства цементной матрицы для иммобилизации жидких радиоактивных отходов. — Цемент и его применение, 2010, вып. 2, с. 85—89.
10. Захарова К.П., Химченко О.М., Суханов Л.П. и др. Разработка технологического режима цементирования солевых концентратов на Волгодонской АЭС. — Атомная энергия, 2007, т. 103, вып. 5, с. 309—314.

11. Никифоров А.С., Куличенко В.В., Жихарев М.И. Обезвреживание жидких радиоактивных отходов. М.: Энергоатомиздат, 1985. 184 с.

ных отходов атомных станций. — Хим. технология, 2009, т. 10, № 5, с. 307—314.

13. Баженов Ю.М. Технология бетона. Учебник. М.: АСВ, 2003. 500 с.

Поступила в Редакцию 24.03.2011

12. Авраменко В.А., Братская С.Ю., Войт А.В. и др. Применение проточной гидротермальной технологии переработки концентрированных жидких радиоактив-

УДК 621.039.58

ДИФФУЗИЯ ДИПОЛЬНЫХ МОЛЕКУЛ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ В ПАРАХ ВОДЫ

Сорокин А.А., Алипченков В.М., Киселев А.Е., Стрижов В.Ф. (ИБРАЭ РАН, г. Москва)

Моделирование переноса радиоактивных продуктов деления в первом контуре реактора при тяжелой аварии является необходимым условием для оценки последствий радиационного загрязнения окружающей среды. При недостаточном съеме тепла твэлы сильно разогреваются, что приводит к перегреву теплоносителя в активной зоне (вода под давлением в ВВЭР) и его переходу из жидкого состояния в пар. В этом случае диффузия продуктов деления в перегретом водяном паре будет являться основным механизмом, определяющим их осаждение и конденсацию на поверхности технологических каналов и тем самым амплитуду возможного источника радиоактивных продуктов деления при разгерметизации первого контура.

Однако особенности диффузии дипольных молекул в полярном газе, которым является водяной пар, не учитываются в моделях современных кодов ASTEC (Франция), MELCOR (США). Также нет и экспериментальных данных о диффузии большинства дипольных молекул продуктов деления в парах воды для условий, соответствующих параметрам в первом контуре во время аварии. Важно отметить, что некоторые молекулы продуктов деления имеют достаточно большой дипольный момент. Соответственно такие молекулы вследствие диполь-дипольного взаимодействия имеют дополнительное притяжение к полярным молекулам воды. Это, в свою очередь, приводит к увеличению сечения их столкновений с молекулами газовой среды. В результате коэффициент диффузии дипольных молекул продуктов деления в полярной среде газа теплоносителя уменьшается по сравнению с коэффициентом диффузии без учета этого эффекта. Как следствие, уменьшается скорость их

осаждения на поверхности технологических каналов, что в итоге приводит к увеличению выхода радиоактивных паров и аэрозолей в помещения защитной оболочки в случае аварий с разгерметизацией первого контура. Данный качественный анализ показывает необходимость и важность дополнительного исследования этого эффекта.

В настоящей статье приведена теоретическая оценка бинарных коэффициентов диффузии некоторых дипольных молекул продуктов деления в парах воды с учетом эффекта диполь-дипольного взаимодействия, в частности, представлены результаты для молекул CsI, CsOH, HI и Cs₂MoO₄, которые являются основными компонентами продуктов деления при переносе радиоактивных иода и цезия в первом контуре.

В приближении Чепмена—Энскога выражение для коэффициента бинарной диффузии D_{AB} малой примеси A (компонент продуктов деления) в несущем газе B (перегретые пары воды) имеет вид [1, 2]

$$D_{AB} = \frac{3}{16} \frac{(2\pi kT/M_{AB})^{1/2}}{N\pi\sigma_{AB}^2\Omega^{(1,1)}}, \quad (1)$$

где k — постоянная Больцмана; T — температура газа; $M_{AB} = mM/(m + M)$; m , M — масса молекулы примеси и молекулы несущего газа соответственно; N — концентрация молекул в смеси; σ_{AB} — характеристическая длина взаимодействия (диаметр столкновения) молекул примеси и несущего газа; $\Omega^{(1,1)}$ — приведенный интеграл столкновения молекул, зависящий от приведенной температуры $T^* = kT/\epsilon_{AB}$; ϵ_{AB} — характеристическая энергия взаимодействия молекул. В дальнейшем для удобства записи верхние ин-