

УДК 661.185:614.876

© 2007

ФОРМИРОВАНИЕ ЗАЩИТНЫХ ПЛЕНОК ИЗ ЛОКАЛИЗУЮЩИХ ПЕН

Н.В. Арсентьева, Н.М. Емельянов, Ю.В. Казакевич, С.И. Ровный
Россия, г. Озерск, ФГУП "ПО "Маяк"

Рассмотрены вопросы формирования поверхностных локализирующих пленок на основе поливинилового спирта из вспененных композиций с целью повышения эффективности локализации радиоактивных загрязнений. Показано, что одним из важных факторов, противодействующих формированию толстых защитных пленок, является капиллярное разрежение в пене, увеличивающееся со временем. Экспериментально подтверждено, что при снижении времени контакта поверхности с пеной возможно увеличение толщины защитных пленок более чем втрое и повышение эффективности локализации.

При проведении работ по ремонту, демонтажу оборудования и сооружений предприятий ядерного топливного цикла, выводу из эксплуатации объектов часто возникает необходимость временной локализации поверхностных радиоактивных загрязнений. В условиях высоких радиационных полей или труднодоступных местах процесс нанесения защитных покрытий может быть упрощен за счет использования вспененных композиций, содержащих пленкообразующее вещество. При обработке поверхностей локализирующей пеной и последующем ее разрушении [1] формируются защитные пленки, свойства которых определяются характеристиками поверхности, пленкообразователя и пены. Пенная обработка может быть выполнена с малыми затратами времени и ручного труда, что приводит к повышению уровня безопасности работ и снижению дозовых нагрузок на персонал.

Ряд выполненных в этом направлении работ [2, 3] показал принципиальную возможность использования вспененных композиций на основе поливинилового спирта и поверхностно-активных веществ для локализации радиоактивных загрязнений как на металлических поверхностях, так и на пористых материалах. Обработка загрязненных поверхностей локализирующими пенами, несомненно, приводит к снижению остаточной нефиксированной загрязненности, однако, во многих случаях эф-

фективность пенных обработок, особенно первичных, следует признать недостаточной. На эффективность локализации влияет слишком много факторов [2], не все из которых могут быть изменены и зафиксированы в условиях реального использования пен. Повышение эффективности локализации может быть достигнуто не только оптимизацией состава пленкообразующего раствора, но и учетом закономерностей формирования защитных пленок.

Проблемам формирования, разрушения, синерезиса и устойчивости пен посвящено достаточно много работ [4, 5], однако в исследуемых пенообразующих растворах отсутствовали пленкообразующие вещества и, естественно, вопросы формирования пленок при разрушении пен не возникали вообще. В рамках поставленной задачи – надежной, эффективной локализации поверхностных радиоактивных загрязнений – эти закономерности могут играть важную роль. В предварительных исследованиях было установлено, что локализирующие пены, в основном, подчиняются закономерностям поведения классических пен и, следовательно, последние могут быть использованы для выявления путей повышения эффективности локализации радиоактивных загрязнений.

ГИДРОДИНАМИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Эффективность локализации радиоак-

тивных загрязнений определяется качеством сформировавшейся защитной пленки, которое, в свою очередь, зависит от многочисленных характеристик пены, пенообразующей жидкости, загрязняющих радионуклидов, обрабатываемой поверхности и условий обработки [2]. В качестве минимальных требований обеспечения надежной локализации загрязнений следует отметить: качество пленкообразователя, позволяющее формировать плотные непроницаемые пленки; удовлетворительную смачиваемость и адгезию пленок к обрабатываемой поверхности; приемлемую устойчивость пен, позволяющую заполнять большие объемы с использованием штатных средств пеногенерации. В реальных условиях сложно реализовать оптимальные параметры, но понимание основных закономерностей формирования защитных пленок позволит более рационально подходить к выбору параметров локализации.

Проведенными исследованиями было показано, что при прочих равных условиях на эффективность локализации радионуклидов наибольшее влияние оказывает толщина защитной пленки [2]. Удельная масса пенообразующей жидкости на вертикальной непористой поверхности и, соответственно, толщина локализуемой пленки будет определяться действием трех сил: адгезии жидкости к поверхности, гравитационной силы и капиллярного разрежения в пене (рис. 1).

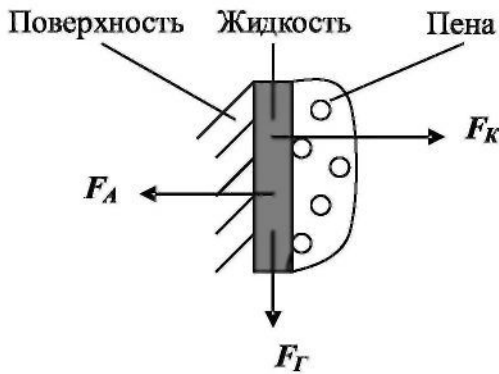


Рис. 1. Силы, определяющие удельную массу жидкости на непористой поверхности:
 F_A – сила адгезии; F_G – гравитационная сила;
 F_K – сила капиллярного разрежения в пене

Гравитационная сила может быть определена как сила, действующая на единицу поверхности жидкой пленки

$$F_G = \frac{mg}{S} = l\rho g, \quad (1)$$

- где m – масса жидкости;
- g – ускорение свободного падения;
- S – площадь пленки;
- l – толщина пленки;
- ρ – плотность жидкости.

Гравитационная сила препятствует формированию толстых пленок на вертикальных поверхностях.

Сила адгезии может быть представлена как отношение работы адгезии к расстоянию, на котором взаимодействие поверхности и пенообразующей жидкости пренебрежимо мало [6]

$$F_A = \frac{\sigma(1 + \cos\theta)}{X}, \quad (2)$$

- где σ – поверхностное натяжение на границе жидкость-газ;

- θ – краевой угол смачивания;
- X – расстояние, на котором взаимодействие поверхности и пенообразующей жидкости пренебрежимо мало.

Адгезионное взаимодействие способствует формированию более толстых защитных пленок.

Под капиллярным разрежением в пене понимается разность давлений в газовой фазе и жидкости. В рамках капиллярной модели пен [4] капиллярное разрежение может быть представлено как

$$\Delta P = \frac{k\sigma\sqrt{K}}{2,5r}, \quad (3)$$

- где ΔP – капиллярное разрежение;
- k – коэффициент, зависящий от дисперсности пены;

- K – кратность пены;
- r – радиус пузырька пены.

В данном случае пена выступает как пористое тело, способное впитывать пенообразующую жидкость из поверхностной пленки. Повышение капиллярного разрежения приводит к снижению толщины защитной пленки. С термодинамической точки зрения равновесие этих сил и определит остаточную толщину жидкой пленки на вертикальной поверхности

$$l = \frac{\sigma \frac{(1 + \cos \Theta)}{X} - \frac{k\sigma \sqrt{K}}{2,5r}}{g\rho} \quad (4)$$

Из приведенного уравнения видны физико-химические характеристики пенообразующей жидкости, влияющие на толщину локализуемой пленки. В формуле не нашла отражения концентрация пленкообразующего вещества в жидкости, но ее влияние во многих случаях можно оценить через плотность раствора. Понятно, что повышение концентрации пленкообразователя будет приводить к увеличению толщины защитной пленки.

В отличие от пенообразующей жидкости, в пене происходят существенные изменения во времени, связанные с синерезисом, коволюцией и механическим разрушением пены. Эти процессы приводят к повышению кратности, увеличению размера пузырьков и уменьшению объема пены. Толщина пленки в соответствии с уравнением (4) зависит от кратности пены, которая за время ее существования может изменяться от минимальной до критической величины, при которой прекращается синерезис. Минимальная и критическая кратность пены связаны между собой соотношением [4]

$$K_k = \left(\frac{\rho g h r}{\sigma} + 1 \right) K_{\min} \quad (5)$$

где K_k – критическая кратность пены;
 h – высота слоя пены;
 r – радиус эквивалентного пузырька;
 K_{\min} – минимальная кратность, определяемая типом и полидисперсностью пены.

В реальных условиях кратность пены увеличивается от некоторой начальной величины до критической за счет неизбежного синерезиса.

Скорость синерезиса зависит от многих факторов и, в рамках капиллярной модели пен, может быть описана уравнением [4]

$$\frac{dV_t}{dt} = k_1 (V_0 - V_t)^2, \quad (6)$$

где V_0 – начальный объем жидкости в пене;
 V_t – объем жидкости ко времени t ;
 k_1 – коэффициент, зависящий от начального объема и свойств пенообразующей жидкости.

Влияние физико-химических свойств жидкости на скорость синерезиса можно оценить по уравнению Пуазейля для вертикального цилиндрического канала постоянного сечения

$$v = \frac{\rho g r^2}{8\mu}, \quad (7)$$

где v – скорость истечения жидкости,

r – радиус канала,

μ – динамическая вязкость жидкости.

Для пенообразующих растворов, содержащих пленкообразователь, основное влияние на скорость синерезиса будет оказывать их вязкость.

Состав пенообразующего раствора и его характеристики будут оказывать влияние на вспениваемость, скорость синерезиса и разрушения пен. В общем виде для жидкости конкретного состава изменение кратности пены во времени будет аналогичным приведенному на рис. 2.

Для верхнего слоя пены кратность увеличивается за счет неизбежного синерезиса. В нижних слоях пены этот же процесс приводит к временному снижению кратности. Глубина и форма снижения кратности будут зависеть от начальной кратности пены, скорости синерезиса и расстояния точки наблюдения от верхнего слоя пены. Величина равновесной кратности пены будет обусловлена, в основном, ее дисперсностью и структурой.

С учетом высказанных ранее соображений о силах, действующих в системе поверхность-жидкость-пена и изменении кратности пены во времени, удельная масса накопленной на вертикальной поверхности жидкости должна также изменяться во времени. Характер изменения удельной массы накопленной жидкости должен соответствовать приведенному на рис. 3.

При малом времени контакта поверхности с пеной, когда кратность пены невелика и, соответственно, мало (уравнение (3)) капиллярное разрежение, преобладает процесс накопления жидкости за счет адгезионных сил. С увеличением времени контакта повышается кратность, капиллярное разрежение, а удельная масса жидкости на поверхности уменьшается за счет перетекания ее в пену. Равновесная толщина пленки будет соответствовать критической кратности пены. В этих условиях действием гравитационной силы можно пренебречь, и равновесие будет определяться соотношением силы адгезии и капиллярного разрежения в пене.

Максимальная величина удельной массы накопленной на вертикальной поверхности



Рис. 2. Зависимость кратности пены от времени ее существования: 1 – верхний слой пены; 2 – слой пены на некоторой глубине

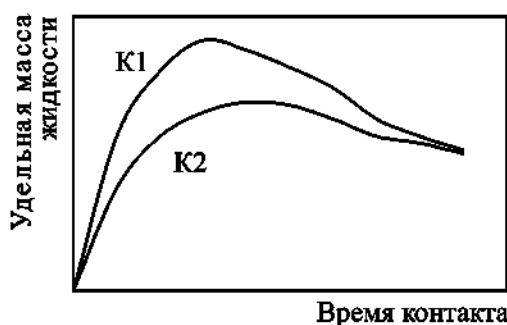


Рис. 3. Влияние кратности пены и времени контакта ее с поверхностью на удельную массу накопленной на вертикальной поверхности жидкости: K1, K2 – кратность пены, $K1 < K2$

жидкости не может быть больше величины максимально возможного нанесения в отсутствие пены, поскольку возможные излишки будут стекать. Темпы накопления и снижения удельной массы жидкости будут определяться начальной кратностью пены и вязкостью жидкости. При низкой начальной кратности пены темп накопления жидкости будет более высоким, при повышении вязкости накопление и снижение удельной массы будут более медленными. Следует иметь в виду, что по высоте пенного столба вследствие синерезиса будет существовать градиент кратности пены и, соответственно, градиент капиллярного разрежения. Вследствие этого величина удельной

массы будет изменяться по высоте. Пренебrecь этим эффектом можно при достаточно длительном существовании пены.

В условиях практического использования пенообразующих растворов конкретного состава можно регулировать лишь начальную кратность пены и время контакта ее с поверхностью. Экспериментальное подтверждение влияния этих факторов на эффективность локализации позволит оптимизировать использование локализующих пен.

МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЙ

Для оценки закономерностей формирования защитных пленок и эффективности локализации продуктов деления на нержавеющей стали 12X18H10T использовали растворы, содержащие 7 % поливинилового спирта и 1 % поверхностно-активного препарата ОП-10. Выбор этого состава был обусловлен приемлемой для работы пеногенератора вязкостью и возможностью сравнения результатов с ранее полученными. Используемые растворы имели плотность 1,014–1,015 г/см³, поверхностное натяжение 28–29 мН/м, динамическую вязкость 60–80 мПа·с. Для исследований применяли образцы диаметром 24 мм с общей поверхностью около 10 см².

Для формирования пены использовали лабораторный пеногенератор, работающий по принципу сеточных аппаратов и позволяющий изменять кратность пены в широких пределах при относительно постоянной дисперсности и полидисперсности пены. В исследованиях производительность пеногенератора по пене поддерживали на уровне 1,5–2,0 л/мин. О толщине локализующей пленки судили по величине удельной массы жидкости или сухой пленки. Кратность пены и удельные массы пленок определяли гравиметрическим методом. Для загрязнения образцов использовали нитратный раствор продуктов деления, содержащий изотопы Sr-90, Cs-137, Ru-106, Ce-144. Сушку образцов при подготовке и после пенной обработки проводили при комнатной температуре в течение 16–18 ч. О начальной загрязненности судили по величине плотности потока β -излучения, за критерий эффективности локализации принимали остаточную нефиксированную

загрязненность, оцениваемую методом стандартного сухого мазка. Измерения проводили радиометром МКС-01р с погрешностью не более 10 %.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В предварительных исследованиях влияния начальной кратности и высоты слоя пены на основе поливинилового спирта на локализацию продуктов деления на нержавеющей поверхности были получены многочисленные результаты, позволяющие сопоставить толщину пленки и остаточную снимаемую загрязненность [2]. Усредненные результаты, полученные в условиях естественного разрушения пен (время контакта с поверхностью 9–13 мин) представлены на рис. 4.

На первом этапе для проверки влияния начальной кратности пены и времени контакта ее с поверхностью на удельную массу накапливаемой жидкости использовали метод погружения образцов из нержавеющей стали в пену на определенное время. Результаты оценок при высоте слоя пены 5 см, площади образцов 10,4 см², и динамической вязкости пенообразующей жидкости 76 мПа·с приведены на рис. 5.

Из приведенных данных видно, что увеличение времени контакта приводит к снижению удельной массы жидкости на образцах. Для данной пенообразующей жидкости и образцов установлена максимальная возможная величина удельной массы на вертикальной поверхности. Эта величина составляет около 60 г/см². Большие величины удельной массы жидкости возможны при накоплении в нижней части образцов капель жидкости. Возможно приведенные величины удельных масс несколько завышены, поскольку процесс погружения и извлечения образцов способствует разрушению пены и, соответственно, увеличению удельной массы. Этот эффект наиболее значим при малых временах выдержки, когда кратность пены невысокая.

Приведенные на рис. 5 данные подтверждают высказанное ранее предположение о впитывании пенообразующей жидкости с поверхности стали пеной. Период накопления жидкости на поверхности в соответствии с рис. 3 не мог быть зафиксирован в опыте, по-

скольку при погружении образца в пену сразу формируется пленка жидкости. Полученные результаты не противоречат уравнению (4) и общим закономерностям поведения пен:

- при одинаковом составе пенообразующей жидкости и равной дисперсности пены при большей начальной кратности формируются более тонкие пленки жидкости;

- те же причины приводят к близким величинам критической кратности пены и, следовательно, к близким удельным массам жидкости при больших временах контакта;

- более высокая начальная кратность пены обеспечивает большую величину капиллярного разрежения и, соответственно, большую скорость снижения удельной массы жидкости на поверхности.

При практическом использовании локализирующих пен снижение времени контакта их с обрабатываемой поверхностью наиболее реально осуществлять разрушением сжатым воздухом. Результаты исследования локализации продуктов деления на нержавеющей образцах в условиях разрушения пены сжатым воздухом приведены в табл. 1. В опытах в стакан, заполненный пеной с известной кратностью, помещали загрязненные образцы и через некоторое время разрушали пену воздухом. Образцы сушили при комнатной температуре, определяли удельную массу пленки и остаточную снимаемую загрязненность.

Разрушение пены сжатым воздухом, равно как и само существование пены как термодинамически неустойчивой системы, является трудно контролируемым процессом и, следовательно, в условиях опытов сложно получить четко выраженные зависимости. Тем не менее, анализ полученных результатов показывает, что уменьшение времени контакта образцов с пеной приводит к повышению эффективности локализации продуктов деления. Этот эффект обусловлен как увеличением толщины защитной пленки, так и снижением времени существования жидкой фазы и, соответственно, меньшим влиянием диффузионных процессов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ условий формирования защитных пленок из локализирующих пен показал, что

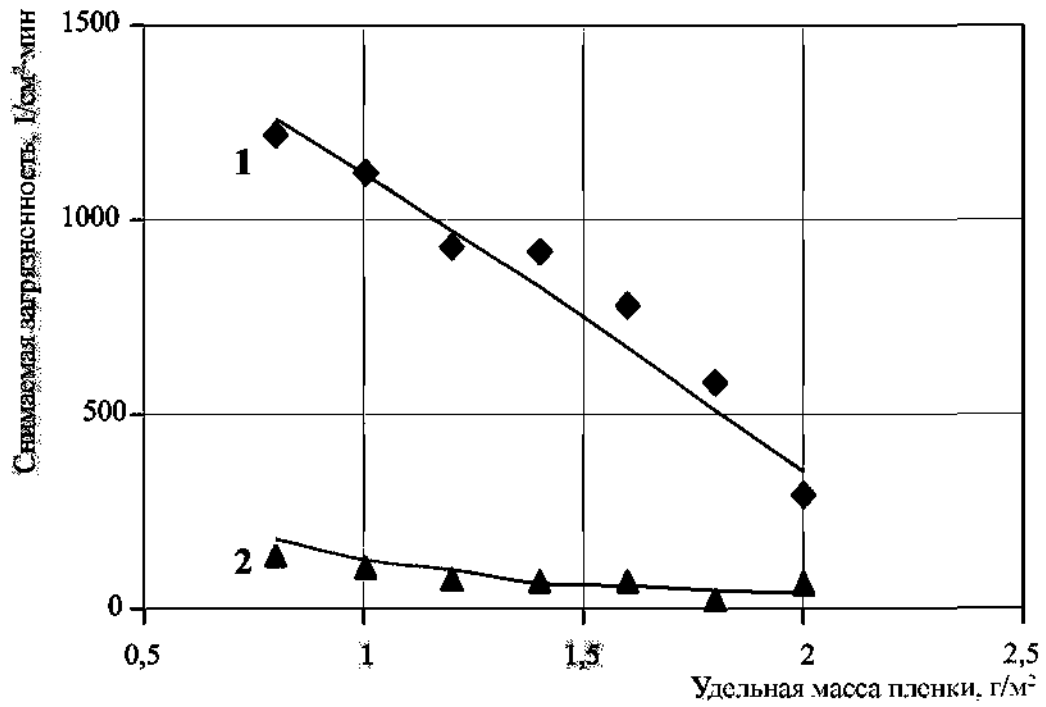


Рис. 4. Влияние величины удельной массы пленки на остаточную снимаемую загрязненность нержавеющей стали: 1 – начальная загрязненность 72000 1/см²·мин, 2 – 7200 1/см²·мин

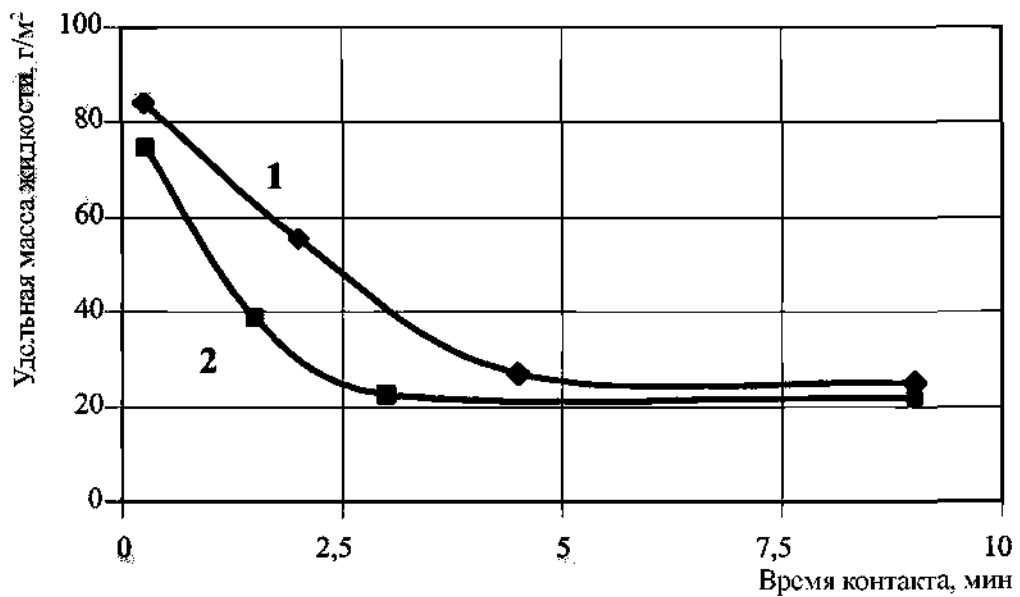


Рис. 5. Зависимость удельной массы жидкости на нержавеющей стали от времени контакта с пеной и ее кратности: 1 – кратность пены 93; 2 – 152

Таблица 1

Влияние времени контакта образцов с пеной начальной кратностью 125 на параметры локализации при разрушении пены сжатым воздухом

Время контакта до разрушения пены, мин	Толщина пленки, г/м ²	Начальная загрязненность, л/см ² ·мин	Остаточная снимаемая загрязненность, л/см ² ·мин
0,3	6,3	26700	100
1,2	5,2	29200	180
2,0	4,2	24500	270
9,3*	1,2	22550	320

Примечание. * Естественное разрушение пены.

одним из важных факторов накопления на вертикальной поверхности малой удельной массы пенообразующей жидкости является капиллярное разрежение в пене, величина которого со временем повышается вследствие неизбежного синерезиса и приводит к переносу жидкости с поверхности в пену. Повышение кратности пены и увеличение времени контакта последней с обрабатываемой поверхностью приводят к снижению толщины защитной пленки.

Экспериментально показано, что достаточно эффективным и практически реализуемым способом повышения эффективности локализации радиоактивных загрязнений на непористых поверхностях является разрушение пены непосредственно после ее нанесения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Патент РФ № 2194321. Способ локализации поверхностных радиоактивных загрязне-

ний / Н.В. Арсентьева, Н.М. Емельянов, С.Ю. Кладченко, С.И. Ровный. Заявлено 27.06.2000.

2. Ровный С.И., Арсентьева Н.В., Емельянов Н.М., Казакевич Ю.В. Вспененные композиции для улучшения радиационной обстановки при выводе из эксплуатации ядерных объектов // Атомная энергия. – 2002. – Т. 93, вып. 5. – С. 372–376.

3. Арсентьева Н.В., Емельянов Н.М., Казакевич Ю.В., Ровный С.И. Локализация продуктов деления вспененными композициями на строительных материалах // Четвертая Российская конференция по радиохимии. Тезисы докладов. – Озерск, 2003. – С. 216–217.

4. Канн К.Б. Капиллярная гидродинамика пен. – Новосибирск: Наука, 1989. – 166 с.

5. Тихомиров В.К. Пены. Теория и практика их получения и разрушения. – М.: Химия, 1983. – 263 с.

6. Зимон А.Д. Адгезия жидкости и смачивание. – М.: Химия, 1974. – С. 416.