

РАДИАЦИОННО-ЗАЩИТНЫЕ МЕТОДЫ ПЕРЕРАБОТКИ И КОНДИЦИОНИРОВАНИЯ РАО АЭС

Р.Н. Ястребинский, В.И. Павленко, А.В. Ястребинская
Белгородский государственный технологический университет им. В.Г. Шухова,
Белгород, Россия
E-mail: yrndo@mail.ru

Показана необходимость разработки целостной концепции переработки, хранения, транспортировки и захоронения радиоактивных отходов. Авторами разработаны способы переработки и утилизации жидких радиоактивных отходов (ЖРО) АЭС путем перевода их в твердые радиоактивные отходы (ТРО) низкой активности концентрированием радионуклидов из ЖРО внутри железоксидной матрицы радиационно-защитных ионообменников. Отработанные ионообменники прессуются в цементные блоки с последующей утилизацией в металлобетонные контейнеры.

Среди важнейших задач ядерного топливного цикла наиболее острой и неотложной является проблема обезвреживания радиоактивных отходов, их безопасное хранение. Эта проблема широко обсуждается в правительственных, научных и общественных кругах многих стран в связи с необходимостью обеспечения безопасной жизни на земле в условиях энергетического кризиса и интенсивного развития атомной энергетики [1]. Можно без преувеличения сказать, что дальнейшее её развитие будет, в конечном итоге, определяться решением проблемы надёжного захоронения радиоактивных отходов с гарантией предотвращения их контакта с биосферой.

При использовании атомных энергетических установок и работе экспериментальных реакторов на всех стадиях ядерного цикла, особенно в процессе переработки отработавшего ядерного топлива, образуются ЖРО. При этом в отходах предприятий по добыче руды и переработке урана присутствуют в основном естественные радионуклиды (природный уран и продукты его распада), а в отходах АЭС и при регенерации облучённых твэлов – искусственные радионуклиды (продукты деления и трансурановые элементы), имеющие высокую активность. ЖРО АЭС среднего уровня активности представлены в основном радионуклидами продуктов деления урана – ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{90}Sr , ^{40}K , ^{232}Th , ^{226}Ra , и ^{60}Co . Жидких отходов в ходе работы реактора РБМК образуется около 100 тыс. м³ в год [2].

С учетом темпов развития ядерной энергетики можно предположить, что за текущее десятилетие активность радиоактивных отходов, накопленных в результате работы АЭС, составит свыше 10^{19} Бк. Очевидно, хранение жидких отходов в баках ненадежно и дорого. В то же время различные предполагаемые программы обезвреживания, долгосрочного хранения и удаления радиоактивных отходов находятся пока в стадии исследований и разработок.

На большинстве АЭС ЖРО низкой активности просто сливаются в близлежащие водоёмы, при этом радионуклиды аккумулируются и концентрируются в донных осадках и водных организмах, попадая таким образом в пищевые

цепи, конечными звеньями которых могут быть люди и животные.

В настоящее время стратегия очистки жидких отходов атомной промышленности, а также водных бассейнов от радионуклидов, строится исходя из времени жизни радионуклидов концентрации, физико-химических свойств, обширности загрязнённых территорий, а также других факторов. Переработка ЖРО направлена на решение двух главных задач: очистки основной массы отходов от радионуклидов и концентрирование последних в минимальном объёме. Для этого используют, как минимум, три группы методов: термические, сорбционные и мембранные.

Все указанные методы без исключения не оригинальны и не специфичны для переработки радиоактивных отходов, а заимствованы из различных традиционных производств и модифицированы. В основном это методы, применяемые обычно в области очистки, подготовки и опреснения воды.

С проблемой обезвреживания ЖРО неразрывно связана проблема утилизации отработанных сорбционных материалов, являющихся после использования источником вторичного радиоактивного излучения. В связи с этим весьма перспективно создание сорбентов и ионообменников, обладающих наряду с высокими сорбционными характеристиками радиационно-защитным эффектом.

Для сбора, переработки и долговременной локализации радиоактивных отходов создана централизованная система, включающая территориальные спецкомбинаты и пункты захоронения (ПЗРО) [3]. Однако в настоящий момент учет поступающих на долговременное хранение отходов, оценка качества их подготовки и захоронения на большинстве ПЗРО России не отвечают современным научно-техническим требованиям. Одним из перспективных путей кондиционирования, переработки и утилизации ЖРО, обеспечивающих снижение их мощности экспозиционной дозы (МЭД), на наш взгляд, является перевод ЖРО в твердые радиоактивные отходы (ТРО) низкой активности путем

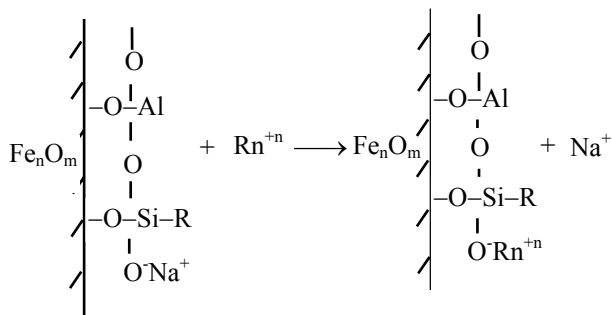
концентрирования радионуклидов из ЖРО внутри железооксидной матрицы радиационно-защитных сорбентов (ионообменников).

Сорбенты, полученные на основе железооксидных систем, могут найти широкое применение в различных областях современной техники и технологии благодаря наличию у них комплекса специализированных свойств. При разработке сорбентов определяющую роль в системе «вещество на носителе» играет нанесенный модификатор. Фиксацию на поверхности носителя химических соединений, находящихся в жидкой фазе, проводили с целью получения материала, сорбционные свойства которого преимущественно определяются природой фиксируемого соединения.

В качестве исходных железооксидных материалов могут быть использованы природные обогащенные высокодисперсные (15...35 мкм) магнетитовые и гематитовые концентраты бассейна КМА. Эффективными модификаторами железооксидных сорбентов являются синтезированные авторами полиалюмоэтилсиликонаты натрия (ПАЭСН).

Закрепление модификатора на поверхности оксидов железа происходит благодаря реакции ПАЭСН с гидроксильными группами поверхности оксидов. При последующей термообработке модифицированных железооксидных систем происходит реакция поликонденсации между силанольными группами ПАЭСН и гидроксильными группами Fe_nO_m , сопровождающаяся сшивкой полисилоксановых цепей между собой в единую модификационную сетку, в результате чего происходит закрепление модификатора на поверхности оксида железа.

Методами химического анализа и пламенной фотометрии установлено, что при сорбции радионуклидов из водных сред на модифицированных оксидах железа происходит обмен ионов Na^+ полисилоксановой оболочки поверхности адсорбента на катионы Rn^{+n} по схеме:



Здесь Rn^{+n} – радионуклид.

Железооксидные ионообменники предназначены для концентрирования широкого спектра радионуклидов: ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{90}Sr , ^{40}K , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{60}Co и по своим ионообменным свойствам превосходят сорбенты на основе ионообменных смол (КУ 2-8 (Россия), «Амберлит» (RandH), «Ионак» (ICC) (США), «Вофатит» (Германия) и др.) Полная динамическая обменная емкость (ПДОЕ): по двухвалентным ионам стронция и кобальта –

6,9 мэкв/г, по одновалентным ионам цезия и калия – 7,1 мэкв/г. При это кратность защиты от фотонного излучения в 5 раз выше, чем у традиционных ионообменников [4, 5].

Наибольшую актуальность разработка подобных сорбентов имеет для ядерной энергетики. Используемые для очистки сточных вод АЭС ионообменники на основе ионообменных смол и активированных углей имеют низкие прочностные и термические характеристики. Кроме того, они не обладают радиационно-защитным эффектом и после отработки становятся источниками радиоактивного излучения, что вызывает проблемы их утилизации и захоронения. В этом направлении наиболее перспективны и технологичны модифицированные железооксидные ионообменники. Благодаря высокой плотности они обеспечивают эффективный радиационно-защитный экран от фотонного излучения с энергией до 1,5 МэВ. Это позволит снизить радиационный фон «отработанных» сорбентов. Используемые модифицированные железооксидные ионообменники обладают высокими химической и радиационной стойкостью, термостабильностью, механической прочностью и скоростью массообмена.

Отработанные ионообменники прессуются с последующей утилизацией путем включения в цементные блоки. Полученные по данной технологии бетонные композиты обладают следующими характеристиками:

Предел прочности на сжатие	...350...400 кг/см ²
Плотность материала2650...2750 кг/м ³
Водопоглощение10...15 мас. %
Ослабление мощности экспозиционной дозы15...17 крат.
Выщелачиваемость ^{137}Csдо 10^{-4} г/см ² ·сут
Альфа-загрязненность поверхности материаладо 2 част./(см ² ·мин)

Конечной стадией кондиционирования ЖРО является утилизация образованных компаундов внутри транспортных металлокомпозиционных контейнеров с повышенными физико-механическими и радиационно-защитными характеристиками. Новый подход к решению создания долговечного и безопасного контейнера для хранения и транспортировки радиоактивных отходов основан на разработке нового типа радиационно-защитного композиционного материала на основе модифицированного высокодисперсного оксида железа и металлического алюминия. Разработка подобных материалов весьма актуальна для атомной промышленности в связи с их высокими прочностными характеристиками, коррозионной стойкостью, возможностью эксплуатации в условиях динамических, температурных и радиационных нагрузок, стойкости к высоким неоднократным перепадам температур (пожаробезопасности) и использованию экологически чистых компонентов [6].

Предварительное модифицирование поверхности оксидов железа позволяет достичь

повышенную совместимость с расплавом металлического алюминия и обеспечивать высокую однородность металлокомпозиата. При этом в 7,5 раз увеличивается прочность металлокомпозиата и в 2,3 раза – степень наполнения алюминиевой матрицы.

Основной особенностью разрабатываемого металлокомпозиционного материала являются: возможность его механической обработки, что обеспечивает высокие конструкционные свойства при сборке контейнера, стабильность геометрии при механических и термических нагрузках, отсутствие коррозии, а также возможность эксплуатации в условиях низких температур (например, в условиях Крайнего севера). Эти обстоятельства определяют преимущество подобных материалов контейнерной защиты по сравнению с бетонными контейнерами зарубежных производителей: «Surepak» фирмы «Vesthouse» (США), «Constor» (Германия), «Сожефобр» фирмы «Кожема» (Франция).

Разрабатываемые металлокомпозиционные материалы для транспортных контейнеров с РАО обладают следующими физико-механическими и эксплуатационными характеристиками:

Прочность на сжатие.....650 МПа
Прочность на изгиб.....250 МПа
Прочность на растяжение..... $190 \cdot 10^3$ МПа
Модуль упругости..... $1,27 \cdot 10^6$ МПа
Относительное удлинение.....не более 6,5 %
Термостойкость (с сохранением геометрических параметров)....от -90 до + 550 °С
Водопоглощение (30 сут).....0 %
Химическая стойкость (без потери массы).....рН = 4...10

Металлокомпозитные контейнеры достигают плотности 4000 кг/м^3 , что определяет их высокие радиационно-защитные свойства:

Линейный коэффициент ослабления гамма-излучения:

при $E=0,06 \text{ МэВ}$ (^{241}Am)не менее $6,0 \text{ см}^{-1}$
при $E=0,66 \text{ МэВ}$ (^{137}Cs)не менее $0,4 \text{ см}^{-1}$
при $E=1,20 \text{ МэВ}$ (^{60}Co)не менее $0,3 \text{ см}^{-1}$

Таким образом, разработанная технология переработки и кондиционирования жидких радиоактивных отходов обеспечивает концентрирование радионуклидов в меньшем объеме, химическую, тепловую и радиационную устойчивость, взрывобезопасность, а также механическую прочность получаемого продукта переработки.

ВЫВОДЫ

1. Разработанные модифицированные железоксидные ионообменники по своим ионообменным свойствам превосходят сорбенты на

основе ионообменных смол. При этом кратность защиты от фотонного излучения в 5 раз выше, чем у традиционных ионообменников. Отработанные ионообменники жестко фиксируют радионуклиды внутри радиационно-защитной матрицы при среднегодовой скорости выщелачивания ^{137}Cs не более $0,0001 \text{ г/см}^2 \cdot \text{сут}$.

2. Разработан новый тип радиационно-защитного композиционного материала на основе модифицированного высокодисперсного оксида железа и металлического алюминия. Материал обладает высокими прочностными характеристиками, коррозионной стойкостью, возможностью эксплуатации в условиях динамических, температурных и радиационных нагрузок, стойкостью к высоким неоднократным перепадам температур. Защитные металлобетонные контейнеры имеют преимущество по сравнению с известными бетонными контейнерами.

Исследования выполнены при поддержке Минобрнауки РФ, соглашение 14.В37.21.0298.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. В.П. Шведов, В.М. Седов, И.Н. Рыбальченко, И.Н. Власов. *Ядерная технология*. М.: «Атомиздат», 1979, 320 с.
2. М. Голински, К. Черномска. Обезвреживание жидких радиоактивных отходов низкого и среднего уровня активности // *Исследования в области обезвреживания жидких, твердых и газообразных радиоактивных отходов и дезактивации загрязненных поверхностей*: Материалы IV Научно-технической конференции СЭВ, Москва 20-23 декабря 1976 г. М.: «Атомиздат», 1978, в. 1, с. 15-26.
3. Й. Хирлинг, М. Деак. *Методы дезактивации АЭС исследовательских центров и горячего оборудования*. М.: «Атомиздат», 1989, 220 с.
4. Р.Н. Ястребинский. О проблеме обезвреживания жидких радиоактивных отходов АЭС и возможных путях ее решения // *Вестник БГТУ им. В.Г. Шухова*. 2005, №12, с. 100-102.
5. Р.Н. Ястребинский, П.В. Матюхин. Исследование механизмов модифицирования поверхности природных железорудных минералов алкилсиликонатами // *Известия вузов. Химия и химическая технология*. 2005, с. 140-142.
6. Р.Н. Ястребинский, В.И. Павленко, П.В. Матюхин, Н.А. Четвериков. Композиционный материал для защиты от гамма-излучения // *Вестник БГТУ им. В.Г. Шухова*. Белгород, 2011, №3, с. 27-29.

Статья поступила в редакцию 21.09.2012 г.

РАДІАЦІЙНО-ЗАХИСНІ МЕТОДИ ПЕРЕРОБКИ І КОНДИЦІОНУВАННЯ РАВ АЕС

Р.Н. Ястребінський, В.І. Павленко, А.В. Ястребінська

Показана необхідність розробки цілісної концепції переробки, зберігання, транспортування і поховання радіоактивних відходів. Авторами розроблені способи переробки і утилізації рідинних радіоактивних відходів (РРВ) АЕС шляхом переведення їх в тверді радіоактивні відходи (ТРВ) низької активності концентрацією радіонуклідів з РРВ усередині залізооксидної матриці радіаційно-захисних іонообмінників. Відпрацьовані іонообмінники пресуються в цементні блоки з подальшою утилізацією в металобетонні контейнери.

RADIATING AND PROTECTIVE METHODS OF PROCESSING AND CONDITIONING OF RADIOACTIVE WASTE OF THE NUCLEAR POWER PLANT

R.N. Yastrebinsky, V.I. Pavlenko, A.V. Yastrebinskya

Need of development of the complete concept of processing, storage, transportation and burial of radioactive waste is shown. Authors developed ways of processing and utilization of liquid radioactive waste of the nuclear power plant by transfer of liquid radioactive waste (LRW) to firm radioactive waste (FRW) of low activity by a kontsentrirvaniye of radionuclides from LRW in a zhelezooksidny matrix of radiating and protective ion exchangers. The fulfilled ion exchangers are pressed in cement blocks with the subsequent utilization in metalconcrete containers.