

ХРОНИКА, СООБЩЕНИЯ

Переработка и захоронение радиоактивных отходов в США

В июне 1965 г. делегация советских ученых и специалистов выезжала в США для ознакомления с работами по переработке и захоронению радиоактивных отходов. Советская делегация побывала на двух АЭС: «Дрезден» близ Чикаго и «Янки» в Новой Англии и в Ок-Риджской, Брукхейвенской и Аргоннской национальных лабораториях.

Очистка контурных вод атомных электростанций

Вода продувки первого контура кипящего реактора АЭС «Дрезден» после охлаждения до 49° С подвергается обработке на смешанных ионитовых фильтрах. В случае накопления в контуре радиоактивных веществ и взвесей свыше допустимых количеств вода может быть направлена на установку по переработке жидких отходов. Эта установка состоит из трех смешанных ионитовых фильтров диаметром 2 м (два работают, третий в резерве). Высота загрузки 0,9 м, объем шихты 3,4 м³, линейная скорость фильтрации 2 м/мин. Загрузка производится из запасного бака, содержащего смолу в количестве, достаточном для оснащения одного фильтра. Регенерацию ионитов осуществляют при продувке сжатого воздуха, что обеспечивает удаление отфильтрованных взвесей.

Кроме того, в установке имеются три диатомитовых фильтра: два производительностью 25 м³/ч — для протечек, дренажных вод и продувки, третий производительностью 12—25 м³/ч — для бассейновых вод (следует отметить, что бассейн выдержки покрашен эпоксидной смолой, стойкой к дистилляту). Корпус фильтра цилиндрический диаметром 0,9 м, высотой 2,5 м, высота свечей 1,3 м. Основание фильтрующего слоя намотано из проволоки трапециевидного сечения с зазором 50 мк. Отработанный диатомитовый слой удаляется гидравлически и после отжатия на центрифуге передается на захоронение.

Для очистки контурных вод на АЭС «Янки» тоже применяют смешанные ионитовые фильтры, установленные в байпасной петле, через которую пропускают 0,8—1,6 м³/мин (2,5—5% общего расхода воды). Бассейновые воды также перерабатывают на ионообменных фильтрах. В отличие от очистки воды на АЭС «Дрезден» смолу не регенерируют, в связи с чем за четыре года эксплуатации ее накопилось около 180 кг. Протечки (примерно 1,0—1,5 т/сутки), обмывочные и другие воды перерабатывают на выпарной установке производительностью 1,2 т/ч. Для борьбы с пенообразованием применяют кремнийорганические соединения, для брызгоулавливания — металлическую вату.

Кубовые остатки цементируют в бочки вместимостью по 200 кг и закапывают на глубину 8 м. Активность одной бочки составляет около 0,6 мкюри; в год отходами наполняют примерно 500 бочек. Работники Дрезденской станции считают нецелесообразным применение диатомитовых фильтров, хотя, с нашей точки зрения, преимущества захоронения кубовых остатков сомнительны.

Переработка отходов среднего и низкого уровня активности

Для переработки отходов низкой удельной активности (от 10⁻⁸ до 10⁻⁴ кюри/л), как правило, применяют различные схемы, включающие сочетание двух из таких методов, как ионный обмен (смолы, диатомит, вермикулит), коагуляция, выпарка. Три ступени очистки (коагуляция, ионный обмен, выпарка), как это принято в СССР, в США нигде не применяются. Оригинальных решений нет.

Для переработки отходов средней удельной активности (выше 10⁻⁴ кюри/л) в Брукхейвенской и Аргоннской национальных лабораториях применяют упарку нейтрализованной жидкости, что дает коэффициент очистки 10⁺⁴—10⁺⁵. Кубовый остаток с удельной активностью 10⁻² кюри/л отправляют на цементацию и захоронение в специально отведенном пункте. В Ок-Ридже средняя удельная активность отходов этой категории составляет 1,3·10⁻² кюри/л. Пока отходы собирают, нейтронизируют и перекачивают в траншеи; уровень активности в этих траншеях измеряется автоматически и дистанционно. Поскольку этот метод захоронения признан непригодным, в Ок-Ридже заканчивается строительство упарной установки.

Экспериментальные работы

Фиксация отходов в асфальте. Разработка метода фиксации в асфальте проводится в Ок-Риджской национальной лаборатории. Асфальтированию подлежат пепел от сжигания горючих отходов, шламы и осадки, получающиеся в процессе очистки растворов низкой удельной активности, кубовые остатки от упарки, продукты концентрирования при использовании флокулянтов и других методов.

Асфальт применяется дорожный, содержащий 65% битума и разжижающийся при температуре 150—200° С. Коэффициент вымывания невысок и составляет всего лишь 7·10⁻⁶ г/см²·сутки.

В лабораторных исследованиях радиационного воздействия на различные сорта асфальта было показано, что доза γ -излучения Со⁶⁰, равная 10⁶ рад, не привела к ухудшению свойств асфальта и возрастанию степени вымываемости радиоэлементов. При увеличении дозы до 10⁸ рад асфальт с температурой плавления около 300° С разбухал, однако это не вызвало увеличения вымываемости. Более мягкий асфальт (с температурой размягчения ниже 200° С) практически не изменялся при дозе 10⁸ рад, оставалась постоянной и степень вымывания различных радиоэлементов.

В лабораторных функционировать небольшая установка, состоящая из емкости объемом 1 л с мешалкой и рубашкой для обогрева, холодильника для улавливания паров и емкости для слива жидкого плава. Производительность установки 150—200 мл асфальта за одну плавку. Из проведенных опытов сделан вывод о возможности применения такого метода в укрупненном масштабе. Предполагается получение отливок в контейнерах емкостью 200 л с последующим захоро-

нением. Положительным свойством таких асфальтовых отливок признается их нерастворимость и простота получения. Укрупненных установок для получения асфальтовых блоков в настоящее время нет. Аналогичные работы проводятся в Моле (Бельгия) и Харуэлле (Великобритания).

Метод пенной флотации. Этот метод позволяет извлекать следы радиоактивных элементов из растворов низкой удельной активности после их предварительной обработки. Так, для эффективного извлечения Sr нужно снизить содержание Ca и Mg в пересчете на CaCO_3 до 5 мг/л. Принцип метода заключается в том, что к предварительно обработанным растворам добавляется поверхностно-активное вещество. Растворы подаются в колонку, в которой при продувании воздуха в виде мелких пузырьков образуется пена, отделяемая в верхней части колонки. Радиоактивные примеси захватываются пеной и удаляются вместе с ней. Пена разбивается в центрифуге, и воздух снова направляют в колонку. Метод обеспечивает 30-кратное (в Великобритании 100-кратное) сокращение объема и коэффициент очистки от Sr примерно 10^4 .

В качестве поверхностно-активного вещества в США применяют додецилбензилсульфонат (концентрация 120 мг/л), который регенерируется и многократно используется в процессе.

Метод проверен на установке с колонкой высотой 2,5 м и сечением $0,6 \times 0,6$ м. Полученные результаты хорошо совпадают с лабораторными исследованиями.

Отверждение радиоактивных отходов (кальцинация и остекловывание). В декабре 1964 г. в Айдахо начала работать установка по кальцинации радиоактивных отходов в кипящем слое производительностью 230 л/ч для растворов алюминатного типа. На этой установке достигнуто 10-кратное сокращение объема. Отвержденные отходы пневматически транспортируют в бетонированные емкости, облицованные нержавеющей сталью. Стоимость переработки 250 долл./м³. Недостатками метода являются необходимость хранения отвержденного продукта в герметичных емкостях ввиду недостаточной фиксации радиоактивных веществ в кальцинированных отходах и сложность системы очистки воздуха, вызываемая образованием аэрозолей в кипящем слое.

Для отверждения высокоактивных растворов, образующихся при переработке твэлов, американскими учеными теперь признается наиболее перспективным метод остекловывания. На лабораторной и опытной установках, работающих в Врукхейвенской национальной лаборатории, остекловыванию подвергаются имитаторы азотнокислых высокорadioактивных отходов, содержащих нитрат натрия, после предварительной упарки более разбавленных растворов. На этой установке применен трехстадийный процесс получения стекла. На первой стадии (смешивание) к азотнокислому раствору прибавляются фосфорная кислота и флюсовые добавки с таким расчетом, чтобы в конце процесса образовалось прочное фосфатное стекло. На второй стадии (упарка раствора) происходит удаление значительной части азотной кислоты и воды при температуре 150° С. На третьей стадии (плавка) завершается удаление азотной кислоты, разлагаются нитраты и происходит образование стекла при температуре 1100° С.

Летучесть рутения в этом процессе составляет всего 0,7% и цезия — 0,2%, что объясняется связыванием этих элементов в прочные фосфатные соединения, образующиеся на ранней стадии смешивания эквимолекулярных количеств фосфорной кислоты и окислов. Процесс непрерывный, со скоростью подачи

раствора 700 см³/ч. Выпарной аппарат содержит змеевик из нержавеющей стали с обогревом паром и автоматической подачей упаренной жидкости по принципу перелива. В установке применен платиновый тигель, большой срок службы которого оправдывает дороговизну материала. Этот вывод представляется сомнительным, так как фосфатные стекла вследствие более низкой температуры плавления, чем у силикатных стекол, позволяют использовать для тигля менее жаропрочные и коррозионностойкие материалы.

В лабораторной установке разгрузочное устройство негерметизировано, в производственной установке предполагается использовать для перекрытия разгрузки метод замораживания.

В ближайшие полгода предполагается провести опыты с производственными растворами и изучение цилиндрических отливок 152,4; 203,2 и 304,8 мм из стекла с удельной активностью 5000 кюри/л.

Кроме того, в Ок-Риджской национальной лаборатории обсуждались и другие методы остекловывания на основе фосфатных композиций. В частности, рассматривался непрерывный процесс получения фосфатного стекла с добавлением 1,5 М NaH_2PO_2 и 0,25 М PbO на 1 л отходов, состоящих в основном из AlNO_3 в азотнокислом растворе. Отличие данной схемы заключается в том, что смешанный раствор подается вместе с фосфатом в цилиндрическую печь-контейнер диаметром 20,3 см, где происходит одновременное упаривание, кальцинация и плавка. Скорость подачи соответствует подъему стекла 2,5 см/ч. После заполнения контейнера до 75% рабочего объема вентиль подачи раствора закрывается, а контейнер отсоединяется от системы подачи раствора, герметизируется и заменяется другим. Нагрев осуществляется обычной печью сопротивления до 1000° С, хотя испытан и индукционный нагрев. Предлагается получать стекло с удельной активностью 300—4000 кюри/л, что может вызывать разогрев отливок стекла до 700—900° С. Отходящие при процессе сушки, кальцинации и плавки газы направляются через конденсационное устройство, где улавливается азотная кислота. Рутений и цезий удерживаются стеклом практически полностью.

По мнению авторов этого процесса, преимущество заключается в осуществлении его в том сосуде, который направляется на захоронение. Применяемые фосфатные композиции плавятся при 800—900° С, что позволяет использовать для тиглей обычные нержавеющей стали вместо жароупорных. Этот метод собираются в ближайшее время осуществить в Ханфорде.

Захоронение жидких отходов в землю. Известно, что до недавнего времени многие американские ученые активно защищали возможность заливки жидких отходов разной удельной активности в траншеи, считая, что окружающие и подстилающие сланцы практически непроницаемы и не позволяют активности распространиться в окружающую среду. Однако первые же опыты показали, что радиоактивные вещества не только быстро проникают в грунт, но и распространяются вдоль водонепроницаемого горизонта на значительные расстояния, проникая в гидросеть данного района.

Уже через несколько месяцев после заливки первых траншей в ряде нижележащих точек были обнаружены измеримые концентрации Ru^{106} , хотя признаков переноса Sr^{90} и Cs^{137} не наблюдалось за счет сорбции грунтами. Местоположение первых траншей было признано неподходящим; для новых были выбраны участки, больше соответствующие условиям ионообменной колонки. Однако только в лабораторной или промышленной колонке можно заранее определить как объемы,

так и направление потоков. Для почвы же трудно надежно предсказать, как, с какой скоростью и куда пойдет просачивание радиоактивных растворов. И в этом случае они распространялись по водонепроницаемым пластам и попадали в гидросеть данного района.

Американские специалисты де Лагуна и Манесшмидт заявили, что недовольны результатами этих работ ввиду переоценки сорбирующей способности нижележащих слоев грунта. В связи с этим в последние годы в Ок-Риджской лаборатории интенсивно разрабатывают другие методы переработки и надежного захоронения отходов низкой удельной активности. В то же время считается, что метод использования траншей для размещения отходов еще полностью не исчерпал свои возможности. Поэтому следует признать, что осторожная позиция советских ученых в отношении этого метода была вполне оправданной.

Новый метод захоронения жидких радиоактивных отходов в смеси с цементом в глубокие скважины с разрывом пластов, разрабатываемый в последние годы в Ок-Риджской лаборатории, не требует наличия под землей готовых полостей; цементный раствор с отходами растекается по трещинам, которые либо имелись раньше, либо образовались в процессе закачки, застывает в них и прочно фиксирует радиоактивные вещества.

Скважина проходится с помощью струи воды с песком. Диаметр конической скважины в верхней части составляет приблизительно 140 см, внизу — 7,6 см, ее глубина равна ~ 260 м. В скважину вставляется стальная труба, заливаемая снаружи цементом.

Перед захоронением отходы перекачиваются насосами низкого давления из баков, расположенных под землей, в емкости для смешения с затвердевающей смесью. (Смешение осуществляется за счет перекачки пульпы из одной емкости в другую.) Затвердевающая смесь состоит из 18 000 частей цемента, 22 000 частей золы, 5800 частей глины, 2900 частей гундита и 18 частей сахара. Последний добавляется для увеличения времени затвердевания. Для хранения этих компонентов на поверхности около скважины установлено четыре бака. Перед закачкой на каждый литр отходов добавляется примерно 600 г этой смеси. Закачка может производиться при давлении до 300 атм, обыкновенно применяют 120 атм. Перед прекращением закачки через скважину прокачивают воду, в течение 20 ч, чтобы промыть трубу для последующего использования.

В Ок-Ридже, где трещины располагаются параллельно поверхности земли, при пробных закачках наблюдалось некоторое всучивание почвы в центральной части площади закачки (примерно на 2 см). Четыре года спустя поверхность вернулась в исходное положение. За один прием закачивали от 160 до 800 м³. За две недели до приезда советской делегации было закачено 270 м³ отходов с удельной активностью приблизительно 50 мкюри.

Радиационная обстановка на станции закачки является удовлетворительной. В камере насосов мощность дозы излучения на высоте 15 см от пола равна 100 мр/ч, около головок скважин — от 70 до 500 мр/ч.

Как отмечено выше, в Ок-Ридже принято решение отказаться от слива растворов низкой удельной активности в траншеи и перейти на очистку этих растворов выпаркой. Кубовые остатки от такой выпарки предполагаются закачивать 3—4 раза в год в глубокие скважины, при этом, однако, опасаются затруднений с подбором композиции смеси в связи с высокой концентрацией в них солей.

Выводы

На основе изложенного можно сделать выводы, что за последние 5—6 лет в технической политике США в отношении обращения с радиоактивными отходами произошли важные изменения:

1. Широко пропагандируемый ранее слив отходов низкой и средней удельной активности в различного рода канавы, колодцы, траншеи признан ненадежным с точки зрения предупреждения распространения активности в окружающую среду. В некоторых случаях принято решение отказаться от таких способов захоронения радиоактивных отходов.

2. КАЭ США отказалась от сброса радиоактивных отходов в моря и океаны. Это решение было принято не только в виду нерентабельности такого метода захоронения, но и под несомненным давлением общественного мнения.

3. Сравнительно недавно (6—7 лет назад) отвержение радиоактивных отходов методами кальцинации и остекловывания занимало мало места в программе работ США по радиоактивным отходам. После Второй Женевской и особенно после Монакской конференций эти работы получили, однако, широкое развитие. В настоящее время в Айдахо эксплуатируется промышленная установка по кальцинации отходов и во второй половине 1965 г. будет пущена установка по остекловыванию.

4. В последние годы разработан и практически опробован метод захоронения отходов низкой удельной активности в смеси с цементом в трещинах почвы. Захоронение в глубинные геологические формации не прорабатывается.

Закачка отходов с цементом через глубокие скважины является надежным методом захоронения, так как после затвердевания цементной массы радиоактивные вещества достаточно надежно фиксированы в подземных трещинах. В то же время этот метод, связанный с подготовительными операциями и большим расходом материалов, относительно дорог (около 15 долл/м³).

В целом методы переработки отходов средней и низкой удельной активности, используемые в США, не отличаются от принятых в Советском Союзе. Во всех атомных центрах США применяются методы соосаждения, сорбции и упарки в различных комбинациях. Унифицированной схемы нет, и на каждом объекте защищаются преимущества «своей» технологии.

Советской делегации был оказан радушный прием, и вся работа протекала в условиях теплого гостеприимства.

Б. С. Колючев