

Дезактивация радиоактивных отходов производства Fe⁵⁵

Б. С. ПАВЛОВ-ВЕРЕВКИН

УДК 621.039.73

Опубликованные работы по дезактивации сбросных вод ядерных энергетических установок и радиохимических предприятий посвящены в основном лишь наиболее опасным изотопам: Sr⁹⁰, Cs¹³⁷, Ce¹⁴⁴, Ru¹⁰⁶, U и еще немногим изотопам. Значительно меньше исследований по дезактивации воды от биологически активных веществ — C¹⁴ [1], Na²⁴ [2], P³² [1, 3, 4], S³⁵ [1]. Сведений о дезактивации сбросных вод от Fe⁵⁵ в литературе нет, хотя в последние годы получили широкое распространение источники мягкого рентгеновского излучения на основе этого изотопа [5, 6].

Изотоп Fe⁵⁵ с периодом полураспада 2,9 года в результате К-захвата превращается в стабильный изотоп Mn⁵⁵. Энергия возникающего при этом характеристического излучения равна 5,9 кэв. Величина ПДК Fe⁵⁵ в воде открытых водоемов составляет 3·10⁻⁸ кюри/л, что соответствует 2,4·10⁻¹³ М [7].

Исходя из малой растворимости гидроокиси железа, можно ожидать высокую эффективность коагуляционной дезактивации растворов, содержащих Fe⁵⁵, с гидроокисями различных металлов-коагулянтов. Для произведения растворимости гидроокиси железа приводятся различные величины, равные 1,1·10⁻³⁶ ÷ 3,8·10⁻³⁸ [8]. Даже при наибольшей из этих величин остаточная концентрация Fe⁺³ в случае осаждения гидроокиси железа при pH = 7 может составлять всего только 1,1·10⁻¹⁵ М, или 1,3·10⁻¹⁰ кюри/л, что примерно в 200 раз ниже ПДК Fe⁵⁵.

Проведенные эксперименты показали, что коагуляционной дезактивацией можно очистить растворы от Fe⁵⁵ до уровня ПДК. Однако остаточные концентрации Fe⁵⁵ значительно выше, чем ожидаемая на основе величины произведения растворимости гидроокиси железа [9]. Как видно из рис. 1, остаточная удельная активность растворов не зависит от их исходной активности и составляет в среднем около 1·10⁻⁹ кюри/л, т. е. примерно в 30 раз ниже ПДК Fe⁵⁵.

Указанное расхождение можно объяснить двумя причинами: более высокой величиной произведения растворимости гидроокиси железа, чем приведенная в справочниках (эта причина отмечена в работе [10]) или повышенном растворимости гидроокиси железа вследствие высокой ионной силы дезактивируемых растворов (0,6), величина которой зависит от общего содержания сбросных вод.

Нами было показано, что при дезактивации растворов Fe⁵⁵ оказывают влияние обе причины. Найденное значение произведения растворимости гидроокиси железа, равное 3,5·10⁻³⁴, на два порядка выше наибольшей величины, приведенной в справочнике [8].

Эти результаты показывают, что остаточная удельная активность дезактивированных растворов с увеличением ионной силы растворов повышается (рис. 2). Обращает на себя внимание выпуклая форма кривой, выражающей зависимость остаточной удельной активности от ионной силы I. На основании этого можно сделать важный вывод для технологии дезактивации таких растворов. Очевидно, что остаточная удельная активность возрастает медленнее прямой пропорциональности ионной силе. Поэтому, хотя при разбавлении раствора вдвое его ионная сила уменьшается тоже вдвое, остаточная активность снижается не так заметно и общее количество Fe⁵⁵, оставшегося в растворе, возрастает. Таким образом, предварительное разбавление отходов, содержащих Fe⁵⁵, с целью получения более низкой удельной активности после коагуляции нецелесообразно и правильнее проводить коагуляцию в неразбавлен-

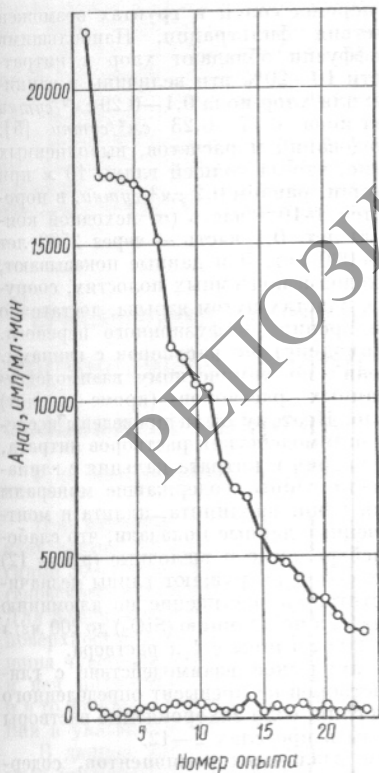


Рис. 1. Независимость остаточной активности $A_{ост}$ от начальной концентрации $A_{нач}$ изотопа Fe⁵⁵ в растворе, очищенном коагуляцией (1 икп/мл·мин соответствует 2,5·10⁻⁹ кюри/л).

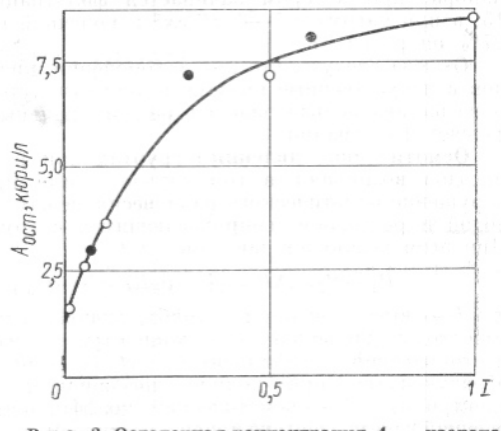


Рис. 2. Остаточная концентрация $A_{ост}$ изотопа Fe⁵⁵ в растворах, очищенных коагуляцией, в зависимости от их ионной силы (содержания):

○ — раствор KNO₃, ● — раствор K₃[Fe(CN)₆].

ных растворах, так как остаточная удельная активность раствора ниже ПДК, а общее количество радиоактивного изотопа, сбрасываемого в открытые водоемы, меньше, чем в случае предварительного разбавления.

Поступило в Редакцию 18/II 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ф. В. Раузен, З. Я. Соловьева. «Атомная энергия», 18, 629 (1965).
2. В. В. Громов. «Атомная энергия», 17, 73 (1964).
3. К. А. Большаков и др. в кн. «Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958). Докл. советских ученых. Т. 4. М., Атомиздат, 1959, стр. 195.

4. В. Н. Гуськова. В кн. «Труды по радиационной гигиене». Т. 2. М., «Медицина», 1964, стр. 39.
5. Л. Д. Данилин и др. «Атомная энергия», 21, 112 (1966).
6. Л. Д. Данилин, Л. А. Дружинин, А. И. Павлова-Веревкина. «Радиохимия», 8, 712 (1966).
7. Санитарные правила работы с радиоактивными веществами и источниками ионизирующих излучений. М., Атомиздат, 1960.
8. Справочник химика. Т. 3. М.—Л., «Химия», 1965.
9. Б. С. Павлов-Веревкин. «Радиохимия», 11, 124 (1969).
10. И. М. Коренман. «Ж. общей химии», 25, 1859 (1955).

Подземное захоронение вредных отходов

П. Ф. ДОЛГИХ, В. Г. БАХУРОВ

УДК 621.039.762

В последние годы уделяется значительное внимание образованию подземных полостей в пластичных горных породах способом внутренних взрывов [1, 2]. Такие полости могут быть использованы для захоронения различного рода жидких отходов (кубовые остатки, пульпы и т. п.) и сыпучих вредных веществ.

Выяснение условий локализации загрязнений в таком случае представляет особый интерес. В связи с этим было предпринято настоящее исследование применительно к захоронению сложных солевых растворов.

Фильтрационная проницаемость. Сооружение подземных полостей в пластичных породах способом внутренних взрывов связано со значительным уплотнением окружающей среды. В зоне уплотнения объемный вес грунта увеличивается на 30—40% по абсолютной величине, а пористость на такую же величину уменьшается [1]. Следовательно, и фильтрационные свойства будут резко снижены.

Фильтрация в глинах начинается с определенной величины градиента напора. Например, по данным Роза [3] в уплотненных глинах при нагрузке 2 кг/см^2 и конечной влажности 32,5% начальный градиент напора, при котором начинается фильтрация, равен 15, а при нагрузке $5—6 \text{ кг/см}^2$ и конечной влажности 27% он равен 31.

Отсюда следует, что при захоронении жидких отходов в искусственные подземные полости путем свободного налива нельзя ожидать распространения отходов за счет фильтрации.

Осмотические явления в грунтах при захоронении отходов возникают в том случае, когда происходит нарушение осмотического равновесия между грунтовой водой и раствором, соприкасающимся с грунтом [4]. При этом возникает давление (ΔP)

$$P_1 - P_2 = \Delta P = \gamma h = i \varphi RT (C_1 - C_2),$$

где h — высота водяного столба, эквивалентная осмотическому давлению; C — концентрация соли; i — изотонический коэффициент $i = \nu f_0$ (ν — число ионов, образующихся при полной диссоциации молекулы электролита, f_0 — осмотический коэффициент, учитывающий взаимодействие ионов в растворе); φ — «коэффициент полупроницаемости»; R — газовая постоянная; T — абсолютная температура.

При наличии разности осмотических давлений возникает осмотическая фильтрация, направленная в сторо-

ну более высокой концентрации соли. В рассматриваемом случае захоронения концентрированных растворов может возникнуть осмотическая фильтрация воды к емкости, а не наоборот.

По данным работы [4], величина осмотической фильтрации для глуховецкого каолина выше гравитационной до $1,3 \cdot 10^3$ раз, а для огланлинского бентонита до $1 \cdot 10^5$ раз. Следовательно, осмотические явления могут играть положительную роль и способствовать уменьшению возможности фильтрации солевых растворов из емкости.

Диффузионный перенос солей в грунтах возможен в условиях отсутствия фильтрации. Наибольшими коэффициентами диффузии обладают хлор и нитрат-ионы. При влажности 10—20% эти величины в глинистых грунтах равны: для хлор-иона $0,1—0,29 \text{ см}^2/\text{сутки}$ [5—9], для нитрат-иона $0,17—0,23 \text{ см}^2/\text{сутки}$ [5]. На основании исследований и расчетов, выполненных ранее, было выяснено, что за толщину глины 10 м при коэффициенте диффузии, равном $0,2 \text{ см}^2/\text{сутки}$, в поровом растворе появится $1 \cdot 10^{-4}$ часть (от исходной концентрации) через 500 лет; 0,1 часть — через 2500 лет и 0,5 часть через 15 000 лет. Эти данные показывают, что захоронение отходов в подземных полостях, сооруженных в глинистых пластах путем взрыва, достаточно надежно и с точки зрения диффузионного переноса.

Химическое взаимодействие растворов с глинами. В литературе сведений по химическому взаимодействию концентрированных растворов (кроме кислот) с глинами очень мало. Поэтому были проведены исследования для оценки взаимодействия растворов нитрата, сульфата и хлорида натрия и нитрата кальция с глинами. Для опытов взяли глины, содержащие минералы трех основных групп глин: каолинита, иллита и монтмориллонита. Полученные данные показали, что слабокислые (рН = 2), нейтральные и щелочные (рН = 12) растворы указанных солей разрушают глины незначительно. Причем достигается насыщение по алюминию в растворах до 500 мг/л , а по кремнию (SiO_2) до 200 мг/л при взаимодействии 200 г глины с 1 л раствора.

Следовательно, химическое взаимодействие с глинами для данных растворов не превышает определенного предела разрушения глин, если захороняемые растворы будут иметь рН среды в пределах 2—12.

Сорбция глинами различных компонентов, содержащихся в жидких отходах, имеет место, так как глины