

УДК 621.039.54

Влияние моно-2-этилгексилфосфорной кислоты на экстракционную переработку рафината регенерации отработавших твэлов ВВЭР ди-2-этилгексилфосфорной кислотой

СМЕЛОВ В. С., КОНДРАТЬЕВ Б. А., ЧУБУКОВ В. В., ДОБРОМЫСЛОВА С. Н.

При техническом синтезе ди-2-этилгексилфосфорной кислоты (Д2ЭГФК) в качестве побочного продукта образуется моно-2-этилгексилфосфорная кислота (М2ЭГФК) [1], которая, обладая более высокими экстракционными характеристиками [2], может вызвать определенные осложнения при извлечении и разделении трансплутониевых, редкоземельных и других (стронций, цезий) элементов. Технологическая схема этого процесса ранее была проверена на растворах, полученных в результате экстракционной регенерации отработавших твэлов ВВЭР [3—5]. В настоящей работе исследовано влияние М2ЭГФК на процесс комплексной переработки упаренного рафината регенерации отработавших твэлов ВВЭР. Использовали 99%-ную М2ЭГФК, которая, как и 97%-ная Д2ЭГФК, не содержала ди-2-этилгексилпирофосфорной кислоты.

Экстрагенты имели следующие характеристики: плотность М2ЭГФК и Д2ЭГФК 1,012 и 0,975 г/см³ соответственно, показатель преломления соответственно 1,4460; 1,4418. Концентрация Д2ЭГФК во всех опытах равнялась 0,6 моль/л, в качестве разбавителя применяли сульфированный синтин [6]. Концентрация М2ЭГФК в органическом растворе варьировалась от 0,024 до 1,04 моль/л.

Распределение элементов между органической и водной фазами определяли радиометрическим методом с помощью гамма-датчика типа УСД1-1 с кристаллом NaI(Tl) колодезного типа (погрешность измерения $\pm 5\%$); использовали индикаторные количества ¹³⁷Cs, ²²Na, ⁸⁵Sr, ¹³³Ba, ⁵¹Cr, ⁵⁹Fe, ⁶⁰Co, ¹⁴⁴Ce и ²⁴¹Am; ⁴⁵Ca определяли с помощью торцового бета-счетчика типа БФЛ-25, концентрацию ионов водорода в водных растворах — потенциометрически на рН-метре ЛПМ-60м с точностью $\pm 0,04$ ед. Радионуклиды вводили в соответствующие водные растворы, которые для установления равновесия выдерживали в течение суток. Все опыты проводили в статических условиях на модельных растворах при отношении объемов органической и водной фаз 1:1 и температуре 295 ± 1 К. Экспериментально найденное время установления экстракционного равновесия 15 мин.

Технологическая схема экстракционного извлечения и фракционного разделения щелочноземельных, трансплутониевых и редкоземельных элементов из упаренного рафината регенерации отработавших твэлов ВВЭР [3—5] состоит из следующих основных операций: совместной экстракции металлов Д2ЭГФК из ацетатного буферного рас-

вора (рН $\approx 4,5$); реэкстракции щелочноземельных элементов разбавленной азотной кислотой (конечная кислотность реэкстракта 0,4—0,15 моль/л); реэкстракции трансплутониевых элементов 0,8 моль/л молочной кислотой, содержащей 0,05 моль/л натриевой соли диэтилтриаминпентауксусной кислоты (ДТПА) при рН $\approx 2,8$; реэкстракции редкоземельных элементов 3 моль/л азотной кислотой.

Из таблицы видно, что при экстракционном извлечении металлов из упаренного рафината регенерации отработавших твэлов ВВЭР присутствие в органическом растворе М2ЭГФК существенно

Коэффициенты распределения металлов при экстракции М2ЭГФК на отдельных операциях переработки рафината регенерации отработавших твэлов ВВЭР с помощью Д2ЭГФК

Металл	М2ЭГФК, моль/л						
	0,024	0,06	0,14	0,25	0,52	0,74	1,04
Совместная экстракция металлов							
Na	0,62	0,63	0,69	—	0,83	1,05	1,26
Cs	0,63	0,63	0,74	0,74	1,32	1,78	2,45
Ca	410	400	430	470	450	400	440
Sr	60	69	65	74	69	81	85
Ba	31	37	47	46	39	47	42
Cr (III)	0,19	0,25	0,26	0,28	0,31	0,39	0,50
Fe (III)	60	67	76	93	96	80	87
Co (II)	25	29	36	50	50	49	48
Ce (III)	45	63	115	130	110	135	120
Am (III)	420	410	480	400	450	450	430
Реэкстракция щелочноземельных элементов							
Ca	0,21	0,33	0,39	0,48	0,52	0,56	0,6
Sr	0,038	0,072	0,11	0,16	0,19	0,25	0,3
Cr (III)	490	400	470	410	410	460	400
Co (II)	5,2	7,6	8,3	9,3	10	—	12,1
Ce (III)	460	420	420	410	490	440	480
Am (III)	480	420	450	470	400	410	420
Реэкстракция трансплутониевых элементов							
Ca	45	—	50	57	69	—	52
Ba	2,8	3,5	3,5	4,1	6,2	6,9	9,5
Cr (III)	440	420	400	460	470	490	400
Fe (III)	66	63	60	65	56	79	55
Ce (III)	79	89	100	125	200	225	250
Am (III)	0,031	0,31	1,4	1,7	3,2	7,1	14,1
Реэкстракция редкоземельных элементов							
Ba	0,005	0,008	0,01	0,013	0,015	0,02	0,023
Cr (III)	6,6	7,7	8,9	9,3	9,5	10,5	12,5
Fe (III)	6,0	6,3	5,7	6,6	6,4	5,6	5,5
Ce (III)	0,007	0,008	0,013	0,016	0,031	0,063	0,12
Am (III)	0,0063	0,008	0,01	0,013	0,018	0,028	0,046

влияет на коэффициенты распределения натрия, цезия, хрома, кобальта и церия; в исследованном интервале изменения концентраций МЭГФК они увеличиваются в несколько раз.

На стадии рекстракции щелочноземельных элементов наличие в органическом растворе МЭГФК приводит к заметному ухудшению процесса (в случае концентрирования стронция), который становится затруднительным при концентрации МЭГФК $> 0,25$ моль/л. Еще в большей степени МЭГФК ухудшает рекстракцию трансплутониевых элементов: присутствие в органическом растворе более 0,05 моль/л МЭГФК не позволяет осуществить эту операцию.

На рекстракцию редкоземельных элементов МЭГФК оказывает заметно меньшее влияние. Так, при концентрации МЭГФК 0,024 моль/л коэффициент распределения церия равен 0,007, а при 0,52 моль/л — 0,031. Аналогичные результаты в тех же условиях получены для бария и америдия.

Таким образом, присутствие МЭГФК более 0,05 моль/л в органическом растворе при комплексной переработке упаренного рафината от экстракционной регенерации отработавших твэлов ВВЭР с использованием ДЭГФК весьма нежелательно.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Петров К. А., Либман Б. Я., Новокрещенов Г. А. Авт. свид. № 174180. Кл. СО7 F 9/11. 27.08.65.
2. Kosjakov V., Gureev G., Yakovlev G.— In: Proc. Symp. of Transplutonium Elements. ANL, USA, May, 1963, Rep. N 72-2.
3. Шевченко В. Б. и др.— Атомная энергия, 1974, т. 37, вып. 5, с. 379.
4. Шевченко В. Б. и др.— В кн.: Труды III Симп. СЭВ «Исследования в области переработки облученного топлива». Т. II. Прага, 1975, с. 144.
5. Шевченко В. Б. и др.— Радиохимия, 1976, т. 18, № 5, с. 784.
6. Николотова З. И., Карташова Н. А. Справочник по экстракции. Экстракция нейтральными органическими соединениями. Под ред. А. М. Розена, М., Атомиздат, 1976, с. 20.

Поступила в Редакцию 22.04.81

УДК 621.039.76

Комплексный оперативный контроль радиоактивных аэрозолей в выбросах АЭС

МОСКВИН Л. Н., ЛЕОНТЬЕВ Г. Г., НЕКРЕСТЬЯНОВ С. Н.

Тенденция снижения уровней предельно допустимых выбросов радионуклидов в атмосферу [1] требует постоянного совершенствования методов контроля газовых сред. Традиционный подход, заключающийся в дальнейшем улучшении методик определения отдельных нуклидов в точках выброса [2], не позволяет одновременно резко повысить чувствительность и оперативность радиометрических и спектрометрических анализов.

Для типовых АЭС с РБМК наибольшую сложность представляет оперативный контроль радиоактивных аэрозолей, образующихся вследствие незапланированной утечки теплоносителя через неплотности первого контура (радиоактивность газов, эжектируемых в соответствии с технологической схемой одноконтурных АЭС, обусловлена преимущественно радионуклидами благородных газов, измерение активности которых, за исключением ^{85}Kr , не вызывает принципиальных затруднений).

Рассмотрим случай протечки водного теплоносителя в воздух помещений, соединенных с конкретными вентиляционными системами (каналами выброса), не имеющими фильтров. Исходные допущения при этом: основным источником радиоактивных аэрозолей является первичный теплоноситель; протечка не превышает критического значения, при котором теплоноситель конденсируется

в помещении с образованием отдельной фазы, вследствие чего все радионуклиды, находящиеся в теплоносителе, оказываются диспергированными в воздухе; воздух в газовых коммуникациях перемешивается равномерно; сорбция и осаждение радиоактивных аэрозолей в вентиляционных каналах не зависят от состава нуклидов, и влиянием указанных процессов на соотношение радионуклидов в воздухе можно пренебречь. Эти предпосылки справедливы для широкого диапазона значений протечек при практически реализуемых кратностях воздухообмена в помещениях АЭС [3].

С учетом принятых допущений удельная радиоактивность долгоживущих нуклидов в выбросах и теплоносителя связана линейной зависимостью $a_i = R a_{0,i}$, где a_i , $a_{0,i}$ — удельная активность i -го нуклида соответственно в канале выброса и теплоносителя; R — фактор разбавления (R -фактор). При условии справедливости сделанных предположений для определения содержания i -го нуклида в выбросе достаточно знать R -фактор и удельную активность нуклида в первичном теплоносителе.

Для того чтобы найти R -фактор, можно использовать базовый реперный нуклид (B -репер), обладающий оптимальными характеристиками по удельной радиоактивности в теплоносителе и удобству спектрометрии.