

примесей химических инициаторов полимеризации, отличаются от полимеров, полученных обычными химическими способами, более высокими качествами. Кроме того, отсутствие в реакционной среде химических инициаторов полимеризации делает процесс радиационной полимеризации более управляемым, регулируемым. Было показано, что радиационная твердофазная полимеризация позволяет полимеризовать момеры, не полимеризующиеся никакими другими методами, а также получать кристаллические стереорегулярные полимеры (например, из триоксана и других циклических мономеров), обладающие специфическими свойствами, обусловленными особенностями их строения.

Б. Л. Цетлин (Институт элементоорганических соединений АН СССР) сообщил о методе газофазной радиационной прививки полимеризации, позволяющей осуществлять прививку таких мономеров, как акрилонитрил, стирол, метакрилат, метилметакрилат и других, из газовой (паровой) фазы на искусственные и синтетические волокна, а также на минеральные материалы, на которые осуществлять прививку никакими другими методами не удается. Модифицированные таким способом волокнистые материалы обладают повышенной терм- и огнестойкостью, влагоустойчивостью и устойчивостью к действию микроорганизмов и гниению и хорошими адгезионными свойствами. Радиационная прививка на неорганическую основу открывает путь к получению совершенно новых материалов, например минерало-органических ионообменных сорбентов, отличающихся большой скоростью сорбции, малой набухаемостью, высокой радиационной стойкостью.

М. Т. Филиппов (Научно-исследовательский институт Государственного комитета химической промышленности при Госплане СССР) сделал сообщение о радиационном сульфохлорировании некоторых органических

соединений, внедрение в промышленность которого позволит существенно упростить технологию ряда химических производств.

Конструкциям радиационных установок и их эксплуатации был посвящен доклад В. Б. Осинова (Всесоюзный научно-исследовательский институт радиационной техники Государственного комитета по использованию атомной энергии СССР). Докладчик подробно и доходчиво рассказал об устройстве экспериментальных установок для радиационно-химических исследований. Особое внимание присутствующих было обращено на различные способы обеспечения защиты персонала, обслуживающего радиационные установки, от действия понижающих излучений, на организацию дозиметрического контроля и устройство систем сигнализации, делающих эксплуатацию установок совершенно безопасной.

Представленные доклады были заслушаны с большим вниманием и вызвали живой интерес участников совещания.

После обсуждения докладов участники совещания ознакомились с печами Рубежанского и Лисичанского химических комбинатов. В ходе обсуждения сделанных сообщений и при посещении химических заводов работники химических предприятий обратили внимание представителей научно-исследовательских институтов на технологические трудности в некоторых химических производствах, возможность устранения которых с помощью радиационных методов целесообразно было бы исследовать.

Совещание приняло развернутое решение, в котором предлагаются конкретные организационные меры по ускорению внедрения радиационных методов в химическую промышленность Донецкого экономического района.

*Н. Спослов*

## Исследование в области переработки и захоронения радиоактивных отходов

В соответствии с двухсторонним соглашением в апреле 1964 г. в Великобританию выезжала делегация советских ученых по вопросам, связанным с переработкой и захоронением радиоактивных отходов. Программа визита предусматривала ознакомление с переработкой и захоронением твердых и жидких отходов средней и низкой удельной активности, остекловыванием высокоактивных отходов, удалением отходов в моря и океаны\* и с изысканиями новых методов переработки радиоактивных отходов.

В Харуэлле создан Национальный центр по приему и переработке твердых радиоактивных отходов средней и низкой удельной активности. Такие отходы состоят из оберточной бумаги, обтирочных материалов, битой посуды, старого оборудования и материалов, трупов животных и т. д. и поступают на установку в железных 100-литровых контейнерах. После ручной сортировки в перчаточных камерах твердые отходы передают на сжигание горючей части и прессование негорючих остатков.

Для сжигания построены две печи с газовыми форсунками, зола от которых направляется на захоронение. Прессование осуществляют на горизонтальных 80-тонных гидравлических прессах закрытой конструкции, обеспечивающей почти полную герметичность. При сжигании объем отходов сокращается до 80 раз, а при прессовании от 6 до 40 раз в зависимости от вида отходов.

Захоронение осуществляется в бочках из-под нефтепродуктов. Перед наполнением отходами в бочку вставляют стержень с резиновой рубашкой, надувают ее сжатым воздухом и оставшееся свободное пространство заполняют баритобетоном. После застывания бетона рубашку разуплотняют и легко извлекают стержень. В освободившееся пространство загружают концентрированные твердые отходы, после чего контейнер заливают бетоном до верхнего торца бочки и отправляют на захоронение в море. Производительность установок составляет 10 м<sup>3</sup> отходов в сутки.

Для выдержки относительно высокоактивных твердых отходов создано хранилище с цилиндрическими бетонными колодцами глубиной от 3 до 5 м и диаметром до 40 см. Кроме того, для отходов, содержащих короткоживущие изотопы, создан блок выдержки — бетонный параллелепипед с горизонтально расположенными стальными трубами. По мере выдержки кон-

\* Вопросы удаления радиоактивных отходов в море освещены в «Атомной технике за рубежом», № 8, 28 (1964).



тейнеры с отходами перемещают из одного конца труб в другой за счет вновь поступающих контейнеров. Колодцы в которые загружены загрязненные расщепляющиеся материалы, закрыты пробками, окрашенными в красный цвет. В местах, наиболее часто подвергающихся радиоактивным загрязнениям, пол оклеен дорожками из грубого полотна, легко и часто сменяемыми. Этот прием вряд ли можно считать удачным, так как применение специальных легко дезактивируемых пластиков более эффективно.

Практику пресования с целью уменьшения объема следует признать удачной, так как это позволяет в несколько раз более продуктивно использовать объемы хранилищ для твердых отходов.

В Центре размещен цех дезактивации оборудования (для повторного его использования). Все работы здесь проводятся вручную. При очистке наружных поверхностей широко используется водяная струя с песком, подаваемая под напором  $\sim 7$  атм. Для облегчения дезактивации боксов лабораторных шкафов их покрывают красками без шпаклевки, что позволяет легко удалить это покрытие в местах наибольшего загрязнения с помощью обычных металлических мочалок. Обрабатывается до 40 000 изделий в год (от мелких щипцов до контейнеров весом 10 т).

Все жидкие отходы в Харуэлле делят на четыре категории:

1) ливневые воды с крыш и дорог собирают в емкости, проверяют на отсутствие активности, после чего сбрасывают в Темзу;

2) обычные канализационные воды (до  $1000 \text{ м}^3/\text{сутки}$ ) направляют в осадительные бассейны и после контроля (при отсутствии активности) также сбрасывают в Темзу; в случае наличия активности выше допустимого уровня эти воды подвергают переработке;

3) воды холодильников и бойлеров ядерных установок также поступают в отстойники и после проверки либо идут на очистку, либо сбрасываются;

4) заведомо активные воды (специальная канализация лабораторий, воды обмытки оборудования и др.) направляют на переработку.

Воды с суммарной активностью ниже  $10^{-6}$  кюри/л в Харуэлле относят к отходам низкой удельной активности, а выше  $10^{-7}$  считают высокоактивными отходами.

Жидкие отходы низкой активности направляют в два бассейна по  $1800 \text{ м}^3$ , где подщелачивают NaOH до pH = 9,5—10 и выдерживают в течение примерно трех дней при постоянно работающих мешалках. После этого порции растворов со взвешью (примерно  $60 \text{ мг/л}$ ) передают в три небольшие аппарата с мешалками для обработки реактивами. В первом из них к отходам добавляют тринатрийфосфат ( $\sim 100 \text{ мг/л}$ ), во втором — сульфат железа ( $7,5$ — $15 \text{ мг/л}$ ), после третьего аппарата, который служит для контроля, взвеси направляют в два сгустителя Дора емкостью по  $400 \text{ м}^3$ . Осветленный слив поступает в один из двух бассейнов емкостью по  $1500 \text{ м}^3$ , работающих поочередно, где отходы нейтрализуют до pH = 7—8,5. Такой обработкой удается удалить 90%  $\alpha$ -активных веществ и до 70%  $\beta$ -излучателей.

Официальные допустимые уровни сброса радиоактивных веществ в Темзу составляют  $1 \cdot 10^{-9}$  кюри  $\beta$ -излучателей,  $4,5 \cdot 10^{-13}$  кюри Ra<sup>226</sup>,  $1 \cdot 10^{-11}$  кюри Sr<sup>90</sup> в 1 л воды. Установлен внутренний допустимый уровень сброса, равный  $1 \cdot 10^{-11}$  кюри суммарной  $\beta$ -активности в 1 л воды. Разрешается сбрасывать до 20 кюри/месяц, но не более 5 кюри/сутки. Контроль осуществляется Управлением по охране Темзы.

Шламы после сгущения с активностью  $10^{-8}$ — $10^{-9}$  кюри/л передают на песчаные фильтры и затем вручную загружают в контейнеры для захоронения в море.

Вся установка смонтирована на открытом воздухе и может перерабатывать отходы до  $6000 \text{ м}^3/\text{сутки}$ . Работой установки английские ученые вполне удовлетворены и считают этот вопрос для себя решенным. Обращает на себя внимание тщательность выполнения строительно-монтажных работ. Так, например, трубопроводы с теплоизоляцией закрыты алюминиевыми гофрированными чехлами; бетонный барьер сгустителя сделан так точно, что слив идет равномерно по всей окружности и т. п.

Установка для переработки отходов средней удельной активности смонтирована в отдельно стоящем просторном здании легкого типа с небольшой пожаробезопасной пристройкой, в которой органические растворители отделяются путем отстоя. Для приема отходов предусмотрено 24 бака по  $\sim 10 \text{ м}^3$ , сгруппированных в шести хранилищах прямоугольной формы по  $40 \text{ м}^3$ . Три хранилища выполнены из пержаевого стекла, а три — из стекловолокна, армированного металлическим каркасом.

Для переработки отходы из хранилищ передают в три последовательно соединенных емкости. В первой из них к отходам добавляют CaHPO<sub>4</sub> и Cu<sub>2</sub>Fe(CN)<sub>6</sub>. После отстоя в течение суток осветленную жидкость передают во вторую емкость, где в случае необходимости повторяют операцию очистки от цезия. Третий бак используется только как промежуточная емкость для выдержки. Шламы выгружают в отстойные колонки из стекла, а осветленные растворы передают в выпарную колонку или на сорбционную обработку.

Опыт Харуэлла показывает, что обработка дикальцийфосфатом дает наилучшие результаты для отходов исследовательского центра, где состав радиоизотопов может быть различным и непостоянным. В среднем удается удалить 99%  $\alpha$ -излучателей и около 89% смеси  $\beta$ -излучателей. Оптимум pH лежит около 11,5, а отношения PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>/Ca<sup>+2</sup> = 1,6 с минимальным количеством Ca<sup>+2</sup> = 50 мг/л.

Последние работы показали, что комбинация обработки фосфатом и ферроцианидом меди заметно улучшает очистку от радиоактивного цезия. Дополнительная понообменная очистка позволяет почти полностью избавиться от  $\alpha$ -излучателей и снизить содержание  $\beta$ -излучателей до 0,3—0,5% от первоначального. Обычно в качестве понообменника применяют вермикулит в корзиночных центрифугах, что позволяет работать при более высокой скорости потоков, чем в обычных колонках. Отработанный вермикулит отправляют в контейнерах с бетонной защитой на захоронение в море.

Для упарки растворов используют колонку производительностью  $1 \text{ м}^3/\text{ч}$ , обогреваемую змеевиком и паровой рубашкой. Пенообразование в аппарате понижено за счет подачи пара на уровне кипящего раствора. Для борьбы с капельно жидким уносом в верхней части колонки укреплен патрон с расположенными в несколько рядов сетчатыми фильтрами из нержавеющей стали. Коэффициент очистки составляет  $10^3$ — $10^6$ .

Английские ученые позже других начали работы по остекловыванию высокоактивных отходов. К настоящему времени в Харуэлле создана опытная установка, которая в 1964 г. перешла на работу с активными отходами.

Установка, расположенная в отдельном помещении первого этажа, состоит из трех последовательно соединенных стальных полых цилиндров диаметром 15



и высотой 150 см. Первые цилиндры из нержавеющей стали были заменены сосудами из жаропрочной стали. Первый из них помещен в печи сопротивления, разделенной по высоте на шесть секций и смонтированной в камере из огнеупорного кирпича с кожухом из мягкой стали. Защита установки позволяет проводить опыты с активностью до 1000 кюри. Отходы в виде пульпы вместе с флюсом подают в нагретую до 1050° С печь, где проходят все три стадии процесса остекловывания: упарка, сушка и кальцинация и «проварка» стекломассы.

Пары и летучие примеси поступают во второй аналогичный цилиндр, в верхнюю часть которого ввернут цилиндрический двухслойный фильтр. Первый слой (из стекловолокна) предназначен для улавливания аэрозолей, второй (из гранулированной окиси железа) — рутения. После второго цилиндра пары, охлажденные до 250—300° С, проходят через третий цилиндр, где укреплен еще один волоконный фильтр для очистки паров от остатков аэрозолей, и попадают в конденсатор, а окислы азота улавливаются в спиральном скруббере, орошаемом тем же конденсатом. Небольшое количество неконденсируемых газов промывается в щелочном скруббере и после абсолютного фильтра выбрасывается в атмосферу.

Из 1000 кюри осколков, поступающих в эту установку, 160 кюри приходится на долю рутения. В стекломассе первого тигля остается 40 кюри рутения и 806 кюри остальных осколков. Фильтры второго цилиндра улавливают 120 кюри рутения и 34 кюри других осколков. В третьем цилиндре идет лишь доочистка (активность, улавливаемая фильтром, составляет 0,66 кюри рутения и 1 кюри других элементов).

Пульпу подают в первый цилиндр со скоростью 61 мл/мин, и по заполнении его примерно до 1 м высоты процесс прекращается. После остывания этот цилиндр со стекломассой поднимают краном через отверстие в потолке и, загрузив в контейнер, направляют на захоронение. Операция заполнения первого цилиндра длится около 52 ч. На освобожденное место первого цилиндра перегружают второй цилиндр; на его место в свою очередь устанавливают новый цилиндр со свежими фильтрами. При нагреве верхней части перегруженного цилиндра отработавший фильтр отделяется, падает на дно и в дальнейшем процессе остекловывания заплывается в общую массу. Этот остроумный прием решает вопрос удаления основного количества уловленной активности.

Управление работой установки довольно просто и централизовано на пульте. Все узлы могут осматриваться с помощью телевизора, в том числе и внутренность камеры при перестановке цилиндра. Установка достаточно герметична; в помещение, где она расположена, можно входить в обычных халатах и в матерчатых туфлях.

Дальнейшие работы направлены на замену добавки флюсов стеклом в виде шариков и на увеличение диаметра цилиндров с целью повышения производительности. Показано, что увеличение диаметра цилиндра до 30 см позволит ускорить подачу до 220 мл/мин. Этого будет достаточно, чтобы двумя линиями переработать все высокоактивные отходы завода в Уиндскейле.

В настоящее время на опытной установке используют отходы, полученные от переработки ядерного горючего с выгоранием 600 Мет-сутки/т, в дальнейшем намечено перейти к обработке отходов от горючего с выгоранием 3000 Мет-сутки/т. Установку увеличенной производительности предполагается ввести в промышленную эксплуатацию в 1966 г.

В исследованиях по дальнейшему усовершенствованию процессов переработки отходов обращает на себя внимание метод замораживания с целью уплотнения пульпы. Этот процесс основан на образовании кристаллов воды, оказывающих большое давление на твердые частицы суспензии, что способствует их агломерации и коагуляции. Процесс на опытной установке осуществляют в аппаратах емкостью 1 м<sup>3</sup>. Медленное охлаждение пламя до —10° С и последующее размораживание приводят к 10-кратному уплотнению осадка. Центрифугирование позволяет сократить его объем еще в три — пять раз.

Метод флокуляции разрабатывается для ускорения процесса осветления. Созданный аппарат позволяет подобрать такую скорость подачи суспензии снизу, которая оказывается ниже скорости падения флокулы. Добавкой полисахаридов с концентрацией 5 мг/л удается ускорить процесс седиментации в два раза, а введением полиакриламида (0,01 мг/л) — в пять раз.

В лабораториях Харуэлла проверяется возможность ускорения фильтрации с помощью пресс-фильтров, работающих при различных давлениях. Увеличением давления до 20—25 атм удалось довести коэффициент концентрирования твердых взвесей в жидкой среде до 10. При изучении влияния давления на скорость фильтрации найдено, что последняя сначала медленно уменьшается, затем резко пикообразно возрастает до начальной величины и снова падает до конечного значения. Весь процесс протекает 2 ч. Причина подъема скорости фильтрации к концу процесса не установлена.

В лабораторном масштабе разрабатывается процесс очистки малозасоленных растворов от радиоактивных изотопов методом флотации. Малозасоленный очищаемый раствор с удельной активностью меньше 10<sup>-3</sup> кюри/л пропускают с определенной скоростью через стеклянную колонку высотой около 1 м и диаметром 6 см. В поток непрерывно добавляют поверхностно активные вещества (тетрафенил бора для извлечения цезия и соединения, способные образовывать со стронцием прочные комплексы) и вдувают мелкими пузырьками воздух. Образующаяся пена захватывает радиоактивные изотопы и переливается через боковую сливную трубку в небольшую центрифугу, где разрушается. Образовавшийся жидкий радиоактивный концентрат, объем которого не превышает 1% от исходного, может быть подвергнут дальнейшей переработке или передан на хранение. Путем установки четырех последовательно соединенных колонок можно получить коэффициент очистки ~10<sup>10</sup>.

По сообщению английских ученых, этот метод разрабатывается с целью сокращения суммарной активности отходов, удаляемых из Уиндскейла в море.

Проводятся также работы по включению отходов в цементные или цемента-вермикулитовые композиции. Процесс весьма прост, дешев, не требует нагрева, но образующийся материал не обеспечивает достаточной стойкости против выщелачивания водой. Полученные блоки не обладают также и механической прочностью.

Более перспективным направлением можно считать включение активных шламов в битум. Для этого пламя в соотношении 1 : 1 смешивают с битумом, разогретым до 180° С. Битум достаточно хорошо противостоит водному выщелачиванию, но также недостаточно механически прочен.

Ведутся работы по подбору композиций, обладающих лучшими механическими свойствами.