

Выщелачивание радиоизотопов из твердых материалов

Более 10 лет в различных странах разрабатываются методы перевода жидких радиоактивных отходов в твердые формы. При выборе способов подготовки к захоронению отходов разных составов и уровней активности наряду с экономическими и технологическими соображениями особую роль играет фактор безопасности, который в значительной мере определяется степенью закрепления радиоизотопов в материалах, подлежащих захоронению. Разрабатываемые в различных странах методы предусматривают включение отходов в водостойчивые силикатные и фосфатные стекла, керамику, цементы, битумы, полиэтилен. Результаты изучения степени закрепления радиоизотопов в таких материалах неоднократно обсуждались на международных симпозиумах и совещаниях. Однако отсутствие единой методики исследований затрудняло сравнение результатов, полученных различными авторами, и не давало возможности правильно определить условия безопасного захоронения тех или иных твердых материалов.

В августе 1969 г. в Вене состоялось созданное Международным агентством по атомной энергии совещание, в работе которого приняли участие консультанты из Бельгии, Великобритании, СССР, США, Франции, ФРГ и ЧССР. Задача совещания сводилась к разработке единой методики оценки степени закрепления радиоизотопов в различных материалах, предлагаемых для захоронения радиоактивных отходов.

При выработке предложений участники совещания руководствовались существующими представлениями о механизме делокализации радиоизотопов при контакте твердого материала с водой. Длительные наблюдения за поведением в воде различных типов твердых материалов показали, что скорость выщелачивания радиоизотопов не является постоянной величиной. В начальный период степень перехода радиоизотопов в воду определяется растворимостью соединений радиоизотопов и компонентов твердого тела, находящихся на поверхности контакта с водой. По мере обеднения поверхности радиоизотопами скорость выщелачивания уменьшается и в дальнейшем определяется сложным процессом, связанным со скоростью проникновения воды к свежим слоям материала, диффузией радиоизотопов по поверхности микропор, образованных за счет выщелачивания растворимых компонентов, и скоростью обмена образовавшегося в порах раствора с растворителем. При наличии изменений структуры твердого материала в результате длительного контакта с водой зависимость скорости выщелачивания от времени хранения может иметь более сложный характер. Это обусловило специальные требования к образцам материала, подвергаемого испытанию, и к условиям проведения испытаний. Одним из основных требований является максимальное приближение режима приготовления опытных образцов к режиму приготовления промышленных материалов. Материал должен подвергаться лабораторным испытаниям в специальных формах, приготовленных так, чтобы в контакте с водой находилась одна (верхняя) поверхность образца. Во избежание случайных результатов были

определены минимальные размеры лабораторных образцов в зависимости от их активности, количество воды, периодичность ее замены и температура. Для получения сравнительных результатов в качестве растворителя рекомендована деминерализованная вода.

В результате дискуссии принято решение для выражения скорости выщелачивания использовать величину активности радиоизотопов, перешедших в воду в течение суток с 1 см^2 поверхности образца, отнесенную к удельной активности твердого материала. При отнесении активности материала к единице его веса скорость выщелачивания имеет размерность $\text{г/см}^2 \text{ сутки}$, к единице объема — см/сутки . Учитывая, что для крупных опытных и промышленных блоков легче определять активность на единицу объема, предложено использовать размерность см/сутки . Результаты эксперимента должны изображаться графически в виде функции скорости выщелачивания от продолжительности контакта с водой.

Участники совещания пришли к единодушному мнению, что реальная опасность при захоронении твердых материалов может быть определена лишь с учетом конкретных геологических условий в месте захоронения. Предложенная на совещании методика лабораторных испытаний дает возможность оценить максимальную степень заражения. Для получения такой оценки деминерализованная вода должна быть заменена водой, характерной для предполагаемого места хранения.

Несмотря на сложный характер механизма выщелачивания радиоизотопов, опыты со многими типами отвержденных отходов показали, что при длительном хранении удаление в воду ионов может быть приблизительно представлено первым законом Фика, т. е. соотношение между долей вымытой активности и корнем квадратным от времени является линейной функцией. Это позволило рекомендовать определение коэффициента суммарного процесса выщелачивания, который предложено называть степенью выщелачивания и который аналогично коэффициенту диффузии имеет размерность $\text{см}^2/\text{сутки}$. Степень выщелачивания L при долговременном хранении может и не быть величиной постоянной. Однако ее использование позволяет оценить общее количество активности, которое может перейти в воду за определенный период времени. Для этого на совещании была предложена формула, учитывающая значение степени выщелачивания, активность радиоизотопов в начале хранения твердого материала A_0 , период их полураспада λ и поверхность контакта материала с водой F :

$$\sum a_n = \frac{2A_0 \sqrt{LF}}{\sqrt{\pi}} \left[\frac{1}{2} \int \frac{e^{-\lambda t}}{t} dt - \int \sqrt{t} e^{-\lambda t} dt \right].$$

Принятые на совещании рекомендации и методика лабораторных испытаний будут в ближайшее время изданы Международным агентством по атомной энергии.

В. В. КУЛИЧЕНКО