

УДК 621.039.73

**РАЗРАБОТКА УНИФИЦИРОВАННОГО ТЕХНОЛОГИЧЕСКОГО ПРОЦЕССА
ЦЕМЕНТИРОВАНИЯ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ***Варлаков А.П. (МосНПО «Радон», г. Москва)*

Жидкие отходы подлежат переработке, которая заключается в концентрировании радионуклидов с последующим отверждением концентратов и кондиционированием. Кондиционирование является суммой операций, конечной целью которых является перевод радиоактивных отходов в форму, обеспечивающую безопасное транспортирование и (или) захоронение. Для отверждения низко- и среднеактивных жидких отходов наибольшее распространение получили такие методы переработки, как цементирование, битумирование, упаривание до солевого плава. Почти все они направлены на переработку солевых жидких отходов типового состава, образующихся на предприятиях в значительном количестве. В меньшем объеме на предприятиях накапливаются без переработки в течение многих лет пульпы ионообменных материалов, представляющие собой смесь различных ионообменных смол и других фильтрующих материалов, осадки в емкостях-хранилищах жидких отходов и ил бассейнов, смеси масел с органическими жидкостями, соевыми концентратами и поверхностно-активными веществами. Например, в МосНПО «Радон» поступают отходы научно-исследовательских центров в виде водных солевых концентратов, содержащих большое количество поверхностно-активных веществ и осадков, смеси масел, органических растворителей, экстрагентов, часто с соевыми отходами. Переработка и кондиционирование таких смешанных отходов являются технически сложными задачами, решить которые позволяет их совместное цементирование с типовыми жидкими соевыми отходами.

Методы цементирования отличаются составом цементных композиций и способом приготовления цементных компаундов. Состав цементных композиций для кондиционирования жидких отходов зависит от их вида. Цементный компаунд предлагается готовить непосредственно в контейнере и смесителях. Приготовление в контейнере может быть проведено либо вращением герметично закрытого контейнера, либо с использованием мешалок, в смесителе — в пор-

ционном и непрерывном режиме, что определяет их конструктивные особенности.

В настоящей работе рассматривается возможность цементирования жидких отходов различного состава унифицированным методом. Под унификацией понимается рациональное сокращение вариантов состава цементных композиций, способа приготовления цементных компаундов путем приведения к единой форме на основании схожести технологических признаков, свойств цементных композиций, функционального назначения и особенностей оборудования.

Для этого были изучены методы цементирования разных видов жидких отходов в целях выявления сходства параметров приготовления цементного раствора при условии надежного (безаварийного) проведения технологического процесса. В результате была определена возможность использования единого состава цементной композиции, вида оборудования, обеспечивающих максимальное включение различных отходов в конечный продукт, который отвечает регламентированным требованиям [1, 2].

Надежное цементирование в значительной степени определяется соблюдением комплекса параметров приготовления цементного раствора, который включает приемлемое качество перемешивания, допустимое отклонение водоцементного отношения $\pm \Delta B/C$ (раствороцементного $\pm \Delta P/C$) от заданного, время схватывания, расслаивание и растекаемость.

Качество перемешивания компонентов цементного раствора считается приемлемым, если в объеме смесителя не образуются застойные зоны плохо перемешанного материала, вызывающие его остановку.

Отклонение водоцементного отношения служит критерием, по которому оценивают качество приготовления цементного раствора. Отклонение ниже допустимого водоцементного отношения может привести к критическому снижению растекаемости цементного раствора, что приведет к затруднению его выгрузки из смесителя вплоть до аварийной остановки, пре-

вышение — к увеличению растекаемости, при которой происходит неприемлемое расслаивание.

Время схватывания не должно быть меньше продолжительности технологического цикла — времени от начала до окончания перемешивания цементного раствора или его слива в контейнер.

Расслаивание бывает двух видов: отслаивание жидкой фазы на поверхности цементного раствора и осаждение гетерогенных отходов, например, ионообменной смолы. В первом случае оно не влияет на надежность приготовления цементного компаунда, однако в контейнере при твердении жидкая фаза не должна отслаиваться, так как это снижает качество конечного продукта. При осаждении гетерогенных отходов могут произойти закупорка сливного устройства смесителя и его аварийная остановка.

Растекаемость — один из основных параметров, по которому может быть определена возможность использования соответствующего метода и оборудования для приготовления цементного раствора. Растекаемость считается удовлетворительной, если цементный раствор свободно вытекает из смесителя. Существует прямая зависимость между растекаемостью и водоцементным отношением (см. рисунок). Растекаемость определяет минимальное водоцементное отношение, которое может быть использовано на данной установке. При имеющейся точности дозирования традиционного оборудования для жидких отходов и сыпучих компонентов 2—3% отклонение водо- или рас-

творцементного отношения от заданного может составлять $\pm 0,025$ – $0,031$. При этом для всех цементных растворов их растекаемость, как видно на рисунке, может изменяться в диапазоне 30—40 мм.

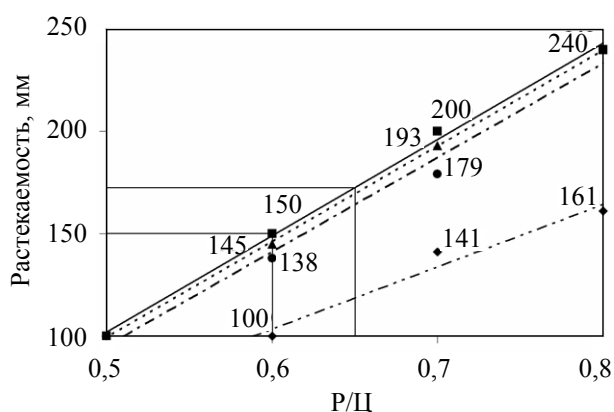
Для оценки параметров, отвечающих за надежность технологических процессов, проведены эксперименты на установках, в которых цементные растворы готовили непосредственно в контейнере с помощью мешалки и в смесителях периодического и непрерывного действия.

Установка с приготовлением цементного компаунда в контейнере периодического действия [3]. На установке используется стандартная 200-литровая бочка с одноразовой рамной мешалкой. Исследованы технологические процессы при подаче цементной смеси в жидкие отходы, предварительно помещенные в бочку, и жидких отходов в предварительно подготовленную цементную смесь.

Установки со смесителем объемом 500, 1500 л периодического действия с комбинированной и пропеллерной мешалкой соответственно [4]. Смеситель установок представляет собой емкость с коническим днищем со сливным устройством в нижней части и вертикально расположенной мешалкой. Мешалки имеют пропеллер, закрепленный в нижней части вала, в комбинированной мешалке на этом же валу в верхней части крепятся дополнительные лопасти в виде длинных прутков.

Установка с комбинированным смесителем, работающая как в непрерывном, так и в периодическом режиме [5]. Установка имеет в своем составе смеситель объемом 60 л с рамной мешалкой и размещенный под ним электромагнитный вихревой смеситель с объемом смесительной камеры 3 л. Емкость с мешалкой используется для предварительного перемешивания компонентов цементного раствора. В электромагнитном смесителе происходят окончательное перемешивание, механическая и магнитная активация цементного раствора ферромагнитными частицами, хаотично двигающимися под действием вращающегося электромагнитного поля.

Установка с дисковым смесителем непрерывного действия. Смеситель представляет собой камеру с вращающимся ротором. Компоненты, подаваемые через штуцеры в его верхней части, попадают на приемные диски, отбрасы-



Зависимость растекаемости цементных растворов состава вода, портландцемент, бентонит (■), раствор NaNO_3 концентрацией 300 г/л, портландцемент, бентонит (▲), жидкие отходы МосНПО «Радон» концентрацией 250 г/л, портландцемент, бентонит (●), Калининской АЭС концентрацией 500 г/л, портландцемент, бентонит (◆) от водоцементного отношения (цифры на прямых — экспериментально достигнутая растекаемость)

ваются на периферию смесительной камеры, где происходит перемешивание компонентов цементного раствора. Готовый раствор непрерывно выдается через штуцер в нижней части смесителя.

В ходе испытаний установлены граничные минимальные технологические параметры, при соблюдении которых достигается удовлетворительное качество перемешивания (табл. 1). В установках со смесителями периодического действия, в том числе и при приготовлении цементного компаунда непосредственно в контейнере можно использовать цементные растворы с более низкой растекаемостью. Минимальная растекаемость для установок с приготовлением цементного раствора в контейнере и емкостным смесителем объемом 500 л составляет 110—130 мм. Для надежного проведения технологического процесса необходимо учитывать отклонение водоцементного отношения до $\pm 0,03$, которое определяется точностью и характеристиками (габаритные размеры, производительность, метод дозирования) дозирующего стандартного оборудования. При работе установок со смесителями непрерывного действия следует точно соблюдать синхронность дозирования компо-

нентов, поскольку при ее нарушении происходит остановка смесителей из-за критического снижения растекаемости цементного раствора и невозможности его перемешать.

Синхронность дозирования компонентов нарушается, как правило, в результате неконтролируемого дискретного изменения подачи цемента. Для надежности технологического процесса необходимо повышать минимальное граничное водоцементное отношение и растекаемость (от 180 мм), постоянно контролировать и корректировать количественное соотношение компонентов и точность работы дозирующего оборудования до 1% с соблюдением водоцементного отношения до $\pm 0,01$.

Выявление сходства состава цементных композиций (цемента и добавок к нему) проведено на основе анализа цементирования различных жидких отходов: АЭС с РБМК и ВВЭР, отработанных масел, ионообменных смол и фильтрперлита, осадков, с высоким содержанием поверхностно-активных веществ [6—11]. В работах были использованы жидкие отходы некоторых АЭС, научных и промышленных объектов. В качестве основного компонента (вяжущего) цементной композиции использовали

Таблица 1. Граничные минимальные технологические параметры и характеристики цементных растворов, приготовленных на воде

Параметр	Установка						
	с емкостным смесителем объемом, л		с комбинированным смесителем	с приготовлением цементного раствора в контейнере	с дисковым смесителем		
	500	1500					
	Режим приготовления раствора						
	Периодический		Периодический	Непрерывный	Периодический		Непрерывный
		1*			2		
Водоцементное отношение	0,51—0,54	0,60—0,63	0,62—0,65	0,74—0,75	0,45—0,48	0,57—0,60	0,74—0,75
Растекаемость, мм	110—130	170—190	190—210	210—230	90—100	150—170	210—230
Схватывание, мин	10	15	20	2	15	15	1
Расслаивание**	В/Ц 0,8—0,9, ИОС 8—10%	В/Ц 0,8—0,9	В/Ц 0,85—0,95, ИОС 9—12%		В/Ц 0,8—0,9, ИОС 14—16%	В/Ц 0,8—0,9, ИОС 10—12%	В/Ц 0,8—0,9
Точность дозирования цемент—отходы, %	3—3	3—3	3—3	1—1	3—3		1—1
±ΔВ/Ц (Р/Ц)	0,03	0,03	0,03	0,01	0,03		0,01

*Порядок приготовления цементного раствора: 1 — цемент дозируется в жидкие радиоактивные отходы; 2 — жидкие радиоактивные отходы дозируются в цемент.

**Водоцементное отношение, при котором происходит отслаивание воды на поверхности цементного раствора свыше 2%, и максимальное содержание ионообменных смол исходной влажностью 50%, при котором не происходит расслаивание цементного раствора при минимальном граничном водоцементном отношении.

портландцемент, шлакопортландцемент, металлургические шлаки, тонкомолотый цемент, сходный по химическому составу с портландцементом, глиноземистый цемент. Для улучшения того или иного свойства цементного компаунда вводили добавки: бентонитовую глину, клиноптилолит, трепел, пластификаторы и некоторые другие. При цементировании жидких борсодержащих отходов для ускорения схватывания и твердения цементного компаунда использовали NaOH , Na_2SiO_3 , $\text{Ca}(\text{OH})_2$, CaCl_2 . Состав и характеристики цементных растворов (растекаемость и сроки схватывания), необходимые для выбора оборудования, приведены в табл. 2.

Анализ исследований позволил определить для цементирования различных отходов сходные составы композиций, обеспечивающие без расслаивания цементного раствора максималь-

ное включение отходов в конечный продукт при сохранении регламентированных свойств. Для всех указанных отходов в качестве единого вяжущего материала, обеспечивающего необходимые регламентированные свойства конечного продукта, является портландцемент. Кроме того, в смеси с портландцементом для регулирования растекаемости раствора и увеличения механической прочности цементного компаунда можно использовать молотый металлургический шлак или тонкомолотый цемент. Для снижения скорости выщелачивания радионуклидов рекомендуется использовать бентонитовую глину. Суперпластификаторы необходимы для повышения растекаемости при низком водоцементном отношении. При цементировании борсодержащих отходов с концентрацией борной кислоты выше 20—25 г/л следует применять добавки для

Т а б л и ц а 2. Состав композиций и характеристики цементных растворов

Отходы	Содержание солей, г/л	Максимальное содержание солей, % по массе*	Раствороцементное (водоцементное) отношение	Вид цемента	Добавка, % общей массы сухих компонентов				Растекаемость, мм	Время схватывания, сут
					Бентонит	Пластификатор	Другие	Антивспениватель		
РБМК	600—800	20—25	0,6—0,85 (0,4—0,6)	Портландцемент	5—10	1—2	—	—	120—220	0,5
		22—26	0,62—0,86	Шлак	5—15	1—2	—	—	130—220	0,5
		22—26	0,62—0,86	Тонкомолотый	5—10	1—2	—	—	110—200	0,4
ВВЭР	800—1000	26—32	0,80—1,20 (0,4—0,6)	Портландцемент	5—10	—	$\text{Ca}(\text{OH})_2$ 10—30	—	140—250	3—7
		26—32	0,85—1,25	Шлак	5—15	—	NaOH	—	180—250	2—5
		26—32	1,25	Тонкомолотый	—	1—2	$\text{Ca}(\text{OH})_2$ 10—30	—	120—130	—
Масло	До 300 (отходы РБМК)	4—5	0,5—0,6	Портландцемент	10—15	—	—	—	110—130	0,2
Поверхностно-активные вещества	400—500 (РБМК)	15 (7)	0,6—0,8 (0,3—0,5)	Портландцемент	5	—	Тонкомолотый цемент 15—25	0,1—0,5	120—150	1
			0,8—0,9	Тонкомолотый	5	—	—	—	140—160	1
Ионообменная смола	0	(18—25)	0,55—0,75	Портландцемент	5—10	—	—	—	120—140	1
	500—600 (РБМК)	(15—18)	0,45—0,6				—		100—110	1
	500—600 (ВВЭР)	(15—18)	0,45—0,6	—	—	—	$\text{Ca}(\text{OH})_2$ 10—30	—	120—130	2—5
Осадки	До 100 (РБМК)	(12—18)	1—1,5	»	5—10	1—2	—	—	100—120	1—2

*Других отходов.

ускорения схватывания и твердения цементного компаунда: $\text{Ca}(\text{OH})_2$, если вяжущим является портландцемент, и NaOH , если вяжущим служат шлаки. При цементировании жидких отходов с высоким содержанием поверхностно-активных веществ следует использовать тонкомолотый цемент и антивспениватель.

Схватывание цементного раствора не влияет на выбор оборудования, так как сроки схватывания при максимальном содержании отходов значительно выше определенных для надежного проведения технологических процессов (см. табл. 1). Поэтому основным качеством, по которому может быть определена возможность использования соответствующего метода и оборудования для приготовления цементного раствора, является растекаемость. Принимая за критерий надежности технологического процесса допустимую растекаемость, зависящую от количественного состава и в значительной степени от водоцементного отношения, оценим методы приготовления цементного раствора и оборудование для разработанных цементных композиций с максимальным включением каждого вида отходов.

Периодический процесс приготовления цементного компаунда на установке с емкостным смесителем объемом 500 л с комбинированной мешалкой и на установке с приготовлением в контейнере с помощью мешалки при дозировании цемента в жидкие отходы является предпочтительными среди исследованных, обеспечивая наибольшую надежность технологического процесса для всех видов отходов благодаря более низкой граничной растекаемости и большому допустимому отклонению водоцементного отношения.

Установки, работающие в непрерывном режиме приготовления цементного раствора, позволили проводить технологические процессы с максимальным включением отходов в цементный компаунд только при цементировании солевых жидких отходов, в том числе и с повышенным содержанием поверхностно-активных веществ, использовании композиций, дающих возможность получать цементный раствор с повышенной растекаемостью в пределах диапазона, указанного в табл. 2.

В МосНПО «Радон» реализован унифицированный технологический процесс цементирования различных видов жидких радиоактивных отходов (солевых водных, содержащих осадки, поверхностно-активных веществ, отработанных

гранулированных фильтрматериалов, органических жидкостей и смешанных отходов), объем которых сравнительно мал, совместно с традиционными жидкими солевыми отходами на установке с емкостным смесителем периодического действия объемом 500 л и комбинированной мешалкой. В качестве вяжущего материала, обеспечивающего необходимые регламентированные свойства конечному продукту, используется портландцемент с добавками бентонитовой глины, пластификатора, тонкомолотого цемента, антивспенивателя, а также специальный композиционный материал на основе тонкомолотого цемента.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Сбор**, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности. НП-019—2000. М., Госатомнадзор России, 2000.
2. **Отходы** радиоактивные цементированные. Общие технические требования. ГОСТ Р 51883—2002. М.: ИПК Изд-во стандартов, 2002.
3. **Дмитриев С.А., Варлаков А.П., Карлин С.В. и др.** Установка для цементирования жидких радиоактивных отходов. Патент RU № 2374706, МКИ6 G 21 F 9/16, заявл. 14.04.2008, № 2008 113 970. — Бюл. «Изобретения и полезные модели», 2009, № 29.
4. **Варлаков А.П., Невров Ю.В., Карлин С.В. и др.** Смесительное устройство для приготовления цементного раствора на основе радиоактивных отходов. Патент № 2218619, МКИ6 G 21 F 9/16, заявл. 11.06.2002, № 2002115435/06. — Там же, 2003, № 34.
5. **Соболев И.А., Дмитриев С.А., Лифанов Ф.А. и др.** Устройство для цементирования жидких радиоактивных отходов. Патент РФ № 2132095, МКИ6 G 21 F 9/16, заявл. 03.12.97, № 97120065/25. — Бюл. «Изобретения», 1999, № 17.
6. **Поляков А.С., Масанов О.Л., Захарова К.П. и др.** Цементирование радиоактивных солевых концентратов. — Атомная энергия, 1994, т. 77, вып. 6, с. 468—470.
7. **Быховская Т.А., Захарова К.П., Карпова Т.Т. и др.** Влияние добавки глины на свойства цементных компаундов, используемых для локализации радиоактивных отходов. — Там же, 1995, т. 79, вып. 1, с. 23—26.
8. **Sobolev I.A., Barinov A.S., Varlakov A.P. et al.** Cementation of radioactive concentrates with high salt content from WWR and RBMK. — In: 6th Annual Scientific and Technical Conf. of the Nuclear Society «International Cooperation for Nuclear Development ICND-95». Kiev, 3—7 July, 1995, v. 2, p. 299.
9. **Баринов А.С., Варлаков А.П., Карлин С.В., Ковальский Е.А.** Свойства цементной матрицы с высоким содержанием сухого остатка ЖРО. — Вопросы материаловедения, 1997, № 5(11), с. 86—89.
10. **Dmitriev S.A., Savkin A.E., Varlakov A.P. et al.** Treatment of liquid radioactive concentrates of the first in the world

NPP. — In: Waste Management'05 Conf. Tucson, February 27—March 3 2005, CD-ROM, Session 42, Paper 5.

конф. «Обращение с радиоактивными отходами». Москва, ВНИИАЭС, 29 ноября — 1 декабря, 2008, с. 93—97.

Поступила в Редакцию 7.04.10

11. Варлаков А.П., Горбунова О.А., Дмитриев С.А., Бариннов А.С. Цементирование маслосодержащих радиоактивных отходов. — В сб.: 5-я Межд. научно-техн.

УДК 539.125.5+546.27:615.771.7

НЕЙТРОН-ЗАХВАТНАЯ ТЕРАПИЯ УЛЬТРАХОЛОДНЫМИ НЕЙТРОНАМИ

Арзуманов С.С., Бондаренко Л.Н., Загрядский В.А., Марковский Д.В., Морозов В.И., Стрепетов А.Н., Чувилин Д.Ю. (РНЦ «Курчатовский ин-т, г. Москва)

Лучевая терапия является одним из основных методов лечения онкологических заболеваний. До 70% онкологических больных нуждаются в том или ином виде лучевой терапии.

Методы лучевой терапии развиваются по пути оптимизации и создания новых технологий, характеризующихся избирательным поражением опухолевых тканей и щадящим воздействием излучения на нормальные ткани организма. Одним из перспективных видов, отвечающих таким требованиям, является нейтрон-захватная терапия, характеризующаяся высокой линейной передачей энергии тяжелых частиц и соответственно более высокой по сравнению с традиционно используемыми видами излучения относительной биологической эффективностью.

Нейтрон-захватная терапия злокачественных опухолей основана на поглощении нейтронов стабильным изотопом бора ^{10}B или гадолиния ^{157}Gd и выделении значительной энергии продуктами реакции [1, 2]. На первом этапе в опухоль вводится препарат, содержащий, например, ^{10}B . Затем опухоль облучают нейтронами. При поглощении нейтрона ядром ^{10}B в результате реакции $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ образуются α -частица и ион ^7Li , пробеги которых в биологической ткани составляют ~ 10 мкм. При этом в пределах раковой клетки выделяется энергия 2,3 МэВ, что приводит к ее разрушению. В реакции на ^{157}Gd возникает высокоэнергетическое фотонное и электронное излучение (конверсионные и оже-электроны), которое локализуется в пределах 1—40 мкм от точки реакции.

Сегодня в лучевой терапии в качестве источников нейтронов используются ядерные реакторы, ускорители и генераторы. Кроме того,

для контактной нейтронной терапии исследуется возможность применения источников на основе ^{252}Cf . Указанные источники нейтронов можно ранжировать по разным основаниям, но реальными конкурентами для массового применения можно считать только ядерные реакторы и ускорители. Именно они позволили выполнить большинство медико-биологических исследований и лечение многочисленных больных.

Дальнейшее развитие лучевой терапии требует повышения ее избирательности. Для решения этой задачи исследуются новые радиобиологические подходы как к увеличению эффекта радиационного воздействия, так и к пространственно-временной оптимизации метода.

Непреодолимые проблемы нейтрон-захватной терапии. Нейтрон-захватная терапия предъявляет специфические требования к физическим параметрам пучков. Плотность потока нейтронов, которая сегодня принята как оптимальная, т.е. дающая необходимый терапевтический эффект за приемлемое время экспозиции пациента на пучке составляет $5 \cdot 10^8$ — 10^9 с $^{-1}$ ·см $^{-2}$ [1]. Из-за относительно малой длины пробега тепловыми нейтронами можно воздействовать только на поверхностные ткани. Для терапии глубокорасположенных опухолей используют эпитепловые нейтроны, что неизбежно приводит к радиационному поражению здоровых тканей в процессе их торможения и захвата на пути от поверхности тела до опухоли. Это хорошо видно на рис. 1, где показана глубина проникнове-