

$$\begin{aligned}
l\partial\Phi/\partial t &= (M^2/H^2)\partial^2\Phi/\partial\xi^2 + (k_\infty - 1)\Phi + \lambda C - \beta\Phi; \\
k_\infty - 1 &= (M^2/H^2)\pi^2 - b_1(Y - Y^*)/\Phi^* - b_2(Z - Z^*)/\Phi^*; \\
\partial C/\partial t &= -\lambda C + \beta\Phi; \Phi(0, t) = \Phi(1, t) = 0; \Phi^* = Y^* = Z^* = \sin \pi\xi; \\
T\partial Y/\partial t &= -Y + \Phi; \partial^2 Z/\partial t^2 + \varepsilon\gamma\partial Z/\partial t + \varepsilon^2 Z = \varepsilon^2 Y.
\end{aligned} \tag{12}$$

Здесь l — время жизни мгновенных нейтронов; C/l — концентрация ядер-излучателей запаздывающих нейтронов (учитывается одна группа); λ — постоянная распада этих ядер; β — относительный выход запаздывающих нейтронов в результате акта деления. В точечной модели, соответствующей системе (12), временной хаос выявлен в работе [1]. Он существует, например, при $l = 10^{-4}$ с, $\lambda = 0,1$ с $^{-1}$, $\beta = 0,0065$, $T = 4$ с, $\varepsilon = 2,6$, $\gamma = 0,86$, $b_1 = 0,00325$, $b_2 \in [0,1 - 0,32]$. При этих параметрах и уменьшении M^2/H^2 в системе (12) возникает пространственно-временной хаос (при $b_2 = 0,15$ и $0,3$ соответственно, если $M^2/H^2 < 0,0002$ и $< 0,0006$).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. March-Leuba J. Nonlinear dynamics and chaos in boiling water reactors. — In: Noise and Nonlinear Phenom. Nucl. Syst. Proc. NATO. Adv. Res. Workshop, Valencia, May 23—27, 1988 — New York, London, 1989, p. 371—385.
2. Шабалин Е.П. Стохастическая динамика импульсного реактора периодического действия. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 1991, № 4, с. 3—9.
3. Постников Н.С. Динамический хаос в реакторе с нелинейными обратными связями. — Атомная энергия, 1993, т. 74, вып. 4, с. 328—334.
4. Постников Н.С. Механизмы и критерии возникновения динамического хаоса в нелинейных моделях ядерного реактора и кусочно-линейных системах. — Там же, 1998, т. 85, вып. 3, с. 193—201.
5. Постников Н.С. К исследованию автоколебаний в нелинейных моделях динамики ядерного реактора. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 1994, вып. 1, с. 32—40.
6. Постников Н.С. Стохастичность акустических автоколебаний в ядерных реакторах с газообразным циркулирующим топливом. — Атомная энергия, 1997, т. 83, вып. 1, с. 60—65.
7. Гапонов-Грегов А.В., Рабинович М.И. Автоструктуры. Хаотическая динамика ансамблей. — В кн.: Нелинейные волны. Структуры и бифуркации. М.: Наука, 1987.

Поступило в Редакцию 22.02.99

УДК 621.039.743

РАЗРАБОТКА ТЕХНОЛОГИИ И ОБОРУДОВАНИЯ ДЛЯ ИЗВЛЕЧЕНИЯ АКТИНОИДОВ ИЗ ВОДОЕМОВ-ХРАНИЛИЩ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Шингарев Н.Э., Поляков А.С., Рагинский Л.С., Мухин И.В.
(ГНЦ РФ — ВНИИНМ им. А.А. Бочвара)

Основная задача при переработке ила водоемов-хранилищ радиоактивных отходов — надежная локализация актиноидов, определяющих токсичность отходов в течение миллионов лет. Растворение иловой фракции водоемов-хранилищ возможно только в жестких условиях смесью HNO_3 с HF при нагревании [1]. Накопление большого количества вторичных отходов переработки (фторсодержащих от выщелачивания, сорбентов, экстрагентов) создает, в свою очередь, большие трудности по их утилизации. Известны методы фиксации осадков на месте залегания, однако отверждение большого объема в полевых условиях (равномерное распределение связывающего реагента во всем объеме ила) и изоляция отвержденных материалов от поверхностных

и грунтовых вод представляют серьезные технические проблемы. Кроме того, в условиях «вечного» хранения такой метод не может обеспечить надежную защиту, так как при проницаемости 10^{-7} см/с (обычные значения для гидроизолирующей глины без учета сорбции-десорбции радионуклидов) метровый защитный слой глины может быть пройден примерно за 100 лет, что неприемлемо при захоронении актиноидов.

С учетом этих соображений наиболее надежным способом локализации радиоактивного ила представляется его извлечение, переработка в целях надежной фиксации актиноидов и последующее захоронение.

Для отверждения ила могут быть использованы процессы кондиционирования [2]: битумирование, цементирование или остекловывание. Независимо от способа отверждения на начальной стадии необходимо максимально снизить объем отходов, содержащих актиноиды, что может быть осуществлено при реализации процессов классификации, сгущения и обезвоживания ила. Путем регулирования гидрофобных взаимодействий в системе существует возможность управлять свойствами как отдельных компонентов, так и иловой суспензии в целом путем воздействия на каждый компонент. С этой целью могут быть использованы водорастворимые и не растворимые в воде поверхностно-активные вещества: мономерные, полимерные флокулянты, полиэлектролитные комплексы и т.д. Для минимизации пылеуноса целесообразно гранулирование ила. Полученные гранулы могут быть направлены на переработку для концентрирования трансурановых элементов или прокатку и плавку с получением минералоподобных материалов.

Ил водоемов-хранилищ радиоактивных отходов представляет собой обводненную суспензию влажностью 98—99%. Твердая фаза состоит преимущественно из гидроксидов алюминия, железа, никеля, диоксида марганца (~ 40% по массе) и супесчаного грунта (~ 60%). pH водной фазы 9—9,2.

Флокуляция ила необходима для интенсификации осветления и концентрирования коллоидных взвесей, содержащих актиноиды. Изучение промышленных флокулянтов различных классов показало высокую эффективность полиакриламида — стандартного флокулянта в процессах водоподготовки (табл. 1, рис. 1, 2). Как видно из полученных данных, скорость осаждения суспензии существенно увеличивается при введении полиакриламида. Гидролизированный полиакриламид действует менее эффективно, для него характерно образование более крупных флокулов осадка и более высокие объемы отстоянной пульпы. При расходе флокулянта 4 мг/г_{тв} достигается максимальная скорость осаждения суспензии и дальнейшее увеличение концентрации полиакриламида нецелесообразно. При использовании полиакриламида и гидролизированного полиакриламида наблюдается эффективное флокулирование коллоидных фракций ила.

Т а б л и ц а 1. Зависимость скорости осаждения v^* и удельной площади сгущения ила S от концентрации полиакриламида

Полиакриламид				Гидролизированный полиакриламид			
C , мг/г	v , мм/мин	$S \cdot 10$, м ² /(кг/ч)	Удельный объем пульпы, %	C , мг/г	v , мм/мин	$S \cdot 10$, м ² /(кг/ч)	Удельный объем пульпы, %
0	1,17	4,91	23	0	1,2	4,91	23
0,13	2,2	2,53	26	0,2	1,2	4,77	30
1,3	9,58	0,56	31	1,3	1,94	3,91	39
2	15	0,38	29	2	3,46	1,61	41
4	23,9	0,22	28	4	3,7	1,52	42
12	24,9	0,21	27	12	3,88	1,44	36

* $v = H/t$; $S = t/HC$, где H — высота осветленного слоя; t — продолжительность отстаивания; C — концентрация твердой фазы в исходной пульпе.

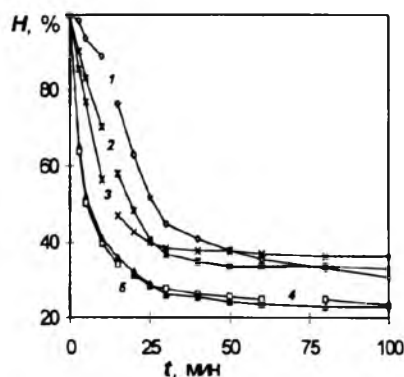
Флотация позволяет как сгустить ил, так и выделить растворенные формы актиноидов. Известны высокоэффективные реагенты при флотационном отделении растворимых актиноидов: алкил- и диалкилфосфорные кислоты (лаурилфосфорная кислота, техническая ди-2-этилгексилфосфорная кислота, моноизооктилметилфосфоновая кислота) [3].

Учитывая наличие большого количества гидроксидов, в качестве флотореагентов нами были использованы промышленное техническое мыло и карбоновые кислоты.

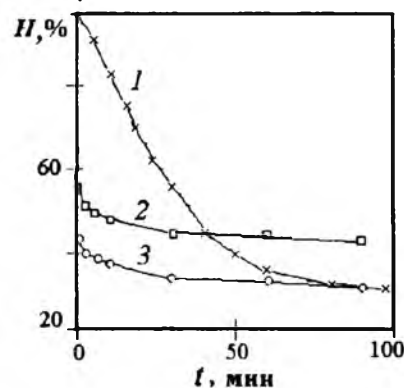
Наиболее высокая степень очистки ила от актиноидов (> 99,9%) наблюдается при использовании длинноцепочечных карбоновых кислот. Гидроксидная фракция ила эффективно флотируется в интервале pH 7—9,5. Расход флотореагентов составляет ~ 0,5—1 г на 1 л перерабатываемого ила.

Необходимо отметить, что в процессе флотации наблюдали концентрирование щелочно-земельных элементов в пенном продукте, что позволит использовать этот метод для выделения ^{90}Sr .

Определено влияние флокулирования модельных суспензий на фильтрацию сгущенного ила (табл. 2, рис. 3). Как видно из представленных результатов, оптимальная концентрация полиакриламида при фильтрации составляет ~ 8 мг/л.



Р и с. 1. Зависимость осаждения ила от времени при концентрации полиакриламида 0 (1), 4 мг/г (4) и гидролизованного полиакриламида 4 (2), 8 мг/г (3)

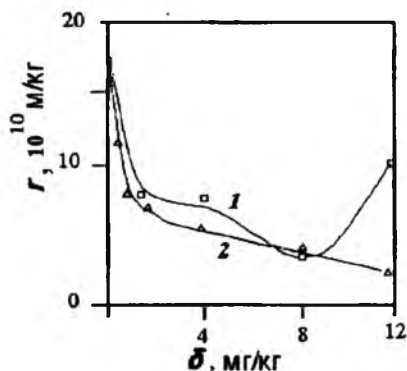


Р и с. 2. Зависимость осаждения ила от времени для катионного флокулянта ВПК-402 (1), Аронфлок N-167 (2), Аронфлок A-117 (3)

Т а б л и ц а 2. Зависимость скорости концентрации полиакриламида от скорости фильтрации иловой суспензии

Полиакриламид		Гидролизированный полиакриламид	
C, мг/г	$v_{1/2}$, м/ч	C, мг/г	$v_{1/2}$, м/ч
0	0,58	0	0,58
0,1	0,52	0,1	0,6
0,2	0,6	0,2	0,6
0,66	0,62	0,66	0,62
2	0,8	2	1,56
4	1,02	4	1,67
8	1,46	8	1,62
12	0,97	12	1,56

Обезвоженный иловый концентрат представляет собой вязкую массу, транспортировка которой из аппарата в аппарат сложная. Для удобства обращения, транспортировки и хранения, минимизации пылеобразования при сушке и обжиге, удобства дозирования ил целесообразно гранулировать.



Р и с. 3. Зависимость удельного сопротивления осадка от удельного расхода полиакриламида (1) и гидролизованного полиакриламида (2)

Процесс гранулирования включает следующие стадии: дозирование флокулянта при интенсивном перемешивании; медленное перемешивание полученной суспензии в течение 15 мин при одновременной корректировке pH раствора для формирования гранул; отделение гранул на сетке из нержавеющей стали с размером пор 0,1 мм; промывку и сушку гранул при 80—100 °С.

Были получены гранулы размером 1—3 мм, влажностью 80—85%. При прокаливании гранул при 200—600 °С формируются прочные минеральные композиции, включающие радионуклиды. Гранулированные порошки могут быть направлены на хранение или дальнейшую переработку. При введении шихты специального состава могут быть получены стеклоподобные материалы.

Оборудование, которое можно применять для переработки радиоактивного ила, должно отвечать следующим требованиям, обусловленным высокой радиоактивностью перерабатываемой системы и большими объемами, поступающими на переработку [4, 5]:

высокая надежность во время всего периода работы;

модульный принцип ремонта оборудования — замена узла в целом с последующим захоронением;

исключение ручных операций и контакта персонала с перерабатываемыми материалами, дистанционное управление и контроль за работой всего оборудования;

непрерывный режим работы оборудования;

минимальные габариты в связи с необходимостью захоронения.

Таким образом, основным критерием, который определяет способ обращения с илом водоемов-хранилищ отходов, содержащих актиноиды, является сопоставление эффективности и стоимости различных методов переработки ила и прилегающего грунта для надежного захоронения актиноидов. При анализе вариантов обращения с водоемами-накопителями целесообразной представляется переработка ила на месте для надежного отверждения и захоронения.

В результате проведения цикла научно-исследовательских работ показана возможность компактирования суспензий, моделирующих ил водоемов-хранилищ, в гранулированный продукт, объем которого в 15—20 раз меньше объема ила.

Процесс может быть реализован при различных методах сгущения и предварительной фиксации радиоактивных гидроксидных суспензий в виде гранулированных гидроксидов и оксидов.

Гранулирование сгущенного ила может быть проведено разными методами:

смешиванием с наполнителем (шихтой), увеличивающим вязкость смеси, корректирующим химический состав для надежной иммобилизации актиноидов при последующем отверждении;

гидрогранулированием флокулированного осадка гидроксидов;

смешиванием с полимеризуемым реагентом с последующим формированием гранул и отверждением.

Изучена возможность гидрогранулирования осадка. Гидроксиды и основные соли металлов, содержащиеся в иле, представляют собой объемные сильно обводненные дисперсные системы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Белов В.А., Матюха В.А., Сафин Б.Р. и др. Извлечение урана и плутония из илов открытых хранилищ радиоактивных отходов. Тезисы докл. первой Рос. конф. по радиохимии. Дубна, 17—19 мая 1994, с. 111.

2. Никифоров А.С., Куличенко В.В., Жихарев М.И. Обезвреживание жидких радиоактивных отходов. М.: Энергоатомиздат, 1985.
3. Mezov E.A., Samatov A.V., Troyanovski L.V. Actinide and lanthanide extraction from nitric acid solution by flotation. — J. Radioanal. Nucl. Chem. Art., 1990, v. 143, № 2, p. 323—328.
4. Разработка и применение пульсационной аппаратуры. Под ред. С.М. Карпачевой. М.: Атомиздат, 1974.
5. Карпачева С.М., Рябчиков Б.Е. Пульсационная аппаратура в химической технологии. М.: Химия, 1983. 224 с.

Поступила в Редакцию 15.02.99

УДК 539.1.074

МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ СРЕДНЕГО ЗАРЯДА В ИМПУЛЬСЕ И ОЦЕНКА ПРЕДЕЛЬНОЙ ИМПУЛЬСНОЙ ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ КАМЕР ДЕЛЕНИЯ

Малышев Е.К., Филатов А.И., Малышев М.Е., Шепель В.С. (ВНИИТФА)

Метод измерения среднего заряда в импульсе нейтронных ионизационных камер деления основан на принципе одновременного экспериментального определения среднего тока и соответствующей ему скорости счета импульсов, обусловленных продуктами деления ядер радиатора под действием нейтронного излучения. В соответствии с ГОСТом 26995—86 [1] средний заряд в импульсе находится как частное от деления этих двух величин. Однако для ионизационных камер метод измерения среднего заряда в импульсе отличается от аналогичного метода для счетчиков Гейгера следующими дополнительными операциями, обусловленными собственными α -шумами камер и сложным спектром импульсов от нейтронов:

измерением тока, обусловленного собственными α -шумами камеры I_{α} ;

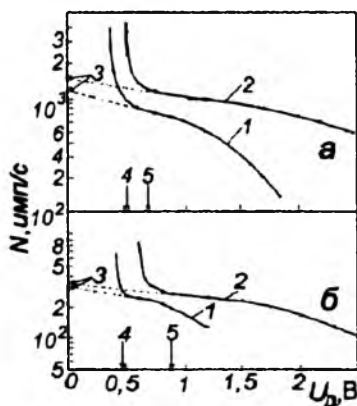
измерением суммарного α -нейтронного тока $I_{\alpha n}$ при облучении камеры нейтронами;

расчетом составляющей тока I_n , обязанной только действию нейтронов, по формуле $I_n = I_{\alpha n} - I_{\alpha}$;

снятием интегрального спектра амплитуд импульсов при том же положении источника нейтронов, что и при измерении $I_{\alpha n}$;

графической линейной экстраполяцией интегрального спектра, построенного в полулогарифмическом масштабе $\ln N = f(A)$, к нулевому уровню дискриминации для определения суммарного числа нейтронных импульсов $N_n(0)$, создающих ток I_n .

Только после этих операций рассчитывается средний заряд в импульсе по формуле $Q = I_n / N_n(0)$. Так метод был изложен в нормативной документации на конкретные типы камер деления. Погрешность метода, оцененная разработчиками, не превышает 28%. Столь большая методическая погрешность связана с полулогарифмическим представлением интегрального спектра амплитуд импульсов в координатах $\ln NA$, при котором линейная экстраполяция спектра к нулевому уровню дискриминации дает неоднозначный результат для $N(0)$ при разных коэффициентах усиления аппаратуры (рис. 1). Это свидетельствует о необходимости корректировки метода для снижения методической погрешности.



Р и с. 1. Амплитудные интегральные спектры КНТ 15 (а), КНТ 54-2 (б) в координатах $\ln NA$ для коэффициента усиления 500 (1) и уровня дискриминации (4), 1000 (2) и уровня дискриминации (5); 3 — суммарное число нейтронных импульсов при нулевом уровне дискриминации