

Ю. В. Верюжський, О. М. Гринько,
В. В. Токаревський

Інститут проблем Чорнобиллю Союзу Чорнобиль України,
м. Київ, Україна

Радіаційна безпека спалювання радіоактивних відходів, забруднених цезієм

Розглядаються технології переробки радіоактивних відходів, забруднених нуклідами цезію, їх технологічні та фізико-хімічні особливості в разі використання пірогазифікаційних спалювальних установок, відмінності між забрудненням довкілля внаслідок аварій на Чорнобильській АЕС і АЕС «Фукусіма-1».

Ключові слова: пірогазифікаційні технології спалювання, масоперенесення цезію, фізико-хімічні властивості цезію, концентрація цезію у викидах, радіоактивність золи.

Ю. В. Верюжский, А. М. Гринько, В. В. Токаревский

Радиационная безопасность сжигания радиоактивных отходов, загрязненных цезием

Рассматриваются технологии переработки радиоактивных отходов, загрязненных нуклидами цезия, их технологические и физико-химические особенности при использовании пирогазификационных сжигательных установок, отличия в загрязнении окружающей среды в результате аварий на Чернобыльской АЭС и на АЭС «Фукусима-1».

Ключевые слова: пирогазификационные технологии сжигания, массоперенос цезия, физико-химические свойства цезия, концентрация цезия в выбросах, радиоактивность зола.

Основна мета переробки органічних радіоактивних відходів (РАВ) полягає у зменшенні їх об'єму та зменшенні надходження накопичених у відходах радіонуклідів до атмосфери і організму людини. Поки що єдиним рішенням ремедіації довкілля в цілому є контейнеризація довгоживучих РАВ. У разі контейнеризації основну роль відіграє довговічність радіаційного захисту бар'єрів безпеки на час, що перевищує тривалість розпаду радіонуклідів до безпечного рівня. Вважається, що цей рівень вилучення, встановлений для тієї чи іншої групи радіонуклідів, визначається нормативними документами стосовно поводження з РАВ, якщо радіонукліди в РАВ є штучними, тобто неприродними. Вилучення відповідної кількості радіонуклідів із РАВ є досить складною процедурою і на сьогодні економічно не вирішеною через великий об'єм органічних РАВ.

Забруднення радіоактивним цезієм відбувається внаслідок перенесення аерозолів атмосферними потоками. Осідаючи, аерозолі заповнюють тонким шаром будь-які матеріали, рослинність, воду, одяг, ґрунт, будинки, дороги тощо. При цьому найсерйознішу небезпеку становлять повітря і продукти їжі, забруднені радіоактивним цезієм. Проте проблеми очищення повітря від аерозолів з радіоактивним цезієм після ядерних аварій на АЕС з розгерметизацією контейнерів реактора не вирішуються. Будь-яка переробка РАВ повинна забороняти забруднення атмосфери радіоактивним цезієм у певних межах. У деяких країнах рівень забруднення визначається нормативними документами (зокрема в Україні), в деяких країнах — не визначається (наприклад, в Японії).

Аналіз літературних даних і постановка проблеми. Характерною ознакою ремедіації є комплексний підхід до переробки великих об'ємів багатоконпонентних РАВ, які утворюються під час інтенсивної дезактивації забруднених територій. Основними об'єктами ремедіації й реабілітації є забруднені будівлі, дороги, рілля й ґрунти. Подальше поводження з радіоактивними матеріалами в процесі реабілітації спричиняє значні труднощі. На поточний момент після дезактивації територій, устаткування та обладнання, забруднених внаслідок аварій на АЕС, вже накопичено значну кількість твердих РАВ. Тимчасове безпечне зберігання вилучених радіоактивних матеріалів і подальше захоронення очікуваних об'ємів РАВ вимагатимуть значних поточних і капітальних витрат.

Радіоактивні матеріали після дезактивації характеризуються складною сумішшю органічних (деревина, залишки рослин) і неорганічних (пісок, глина, бетон, кераміка, цегла, скло тощо) компонент. Лише комплексна технологія переробки багатоконпонентних відходів із захороненням концентрованих радіонуклідів у складі цементного компаунду дасть на виході чисту продукцію, тобто очищені ґрунт і щебінь. Об'єм та маса компаунду будуть значно меншими за об'єм та масу первинних РАВ. Отже, комплексна технологія зменшуватиме об'єми РАВ для захоронення, що надзвичайно важливо в аспекті зменшення вартості їх зберігання та захоронення.

У Чорнобильській зоні відчуження досліджені дві технології переробки радіоактивних відходів: комплексна мокра технологія (КМТ) для дезактивації радіоактивно забруднених ґрунтів і пірогазифікаційна технологія (ПГТ) термічної переробки змішаних РАВ, що найкраще підходить для випалювання органічних домішок і концентрування радіоактивності в золі (критерії прийнятності РАВ для зберігання забороняють захоронення органічних і горючих РАВ).

Практично всі технології переробки РАВ поділяються на два типи — мокрі та сухі. Мокрі технології (розчинення, вилуговування, цементування тощо) передбачають використання рідких речовин. Із застосуванням мокрих технологій радіоактивний цезій залишається в рідкому чи твердому стані. Сухі технології охоплюють термічну переробку (спалювання), плазмові технології, механічну обробку тощо. Із застосуванням сухих технологій радіоактивний цезій залишається як у газоподібному, так і в твердому стані.

Очищення ґрунтів та інших матеріалів із застосуванням мокрих технологій детально розглянуто в [1, 2, 3]. Спосіб дезактивації ґрунтів було розроблено для зменшення об'єму РАВ, які підлягають захороненню після ліквідації так званих пунктів тимчасової локалізації РАВ Чорнобильської зони відчуження, в яких зберігається більше ніж 800 тис. м³ радіоактивного ґрунту. Технічне рішення з дезактивації ґрунту базується на тому, що незалежно від його гранулометричного складу й питомої активності радіонукліди розподіляються по фракціях ґрунту нерівномірно і концентруються переважно у фракціях з малими розмірами частинок. Це створює передумови для дезактивації ґрунту видаленням фракцій з мінімальними розмірами частинок. Технічне рішення апробовано на пілотній установці (продуктивністю 100 кг ґрунту/год), розробленій і змонтованій у Чорнобильській зоні відчуження. Результати технологічного експерименту з дезактивації ґрунту — 89,2 % для ¹³⁴Cs і 87,7 % для ¹³⁷Cs. Результати апробації фероціанідних сорбентів для дезактивації технологічного розчину після дезактивації ґрунту показали ефект дезактивації розчину 93,7 % для ¹³⁴Cs і 93,0 % для ¹³⁷Cs [4, 5]. За попередніми маркетинговими дослідженнями, промислова установка для дезактивації ґрунтів продуктивністю 10 т ґрунту/год може бути створена з використанням обладнання, яке випускається промисловістю [6].

У цій статті розглядатимуться *сухі технології*, насамперед адиабатичні підходи до спалювання біомаси [7, 8, 9]. Установки, які звичайно використовуються для термічної переробки змішаних РАВ (спалювання, плазмові технології тощо), характеризуються високими температурами переробки і значним масоперенесенням радіонуклідів у системи очищення вихідних газів. Такі установки спроектовані й споруджені для переробки регулярних відходів АЕС.

Матеріали дослідження, експериментальна частина. Термічна переробка РАВ, які містять радіонукліди цезію, потребує низькотемпературної переробки та зниження температури вихідних газів, щоб запобігти забрудненню атмосферного повітря дрібнодисперсними частинками розміром 0,1–100 мкм. Розробка лабораторної установки продуктивністю 50 кг/год для демонстрації можливості низькотемпературної газифікації була підтримана грантами Українського науково-технологічного центру [10, 11]. Лабораторна модель пірогазифікаційної установки для спалювання РАВ із суміші різнорідних матеріалів відпрацьовувалася ДСП «Техноцентр» впродовж 10 років. Потім ДСП «Техноцентр» створив проєкт більш потужної установки — до 2 т/год [12] — з чотирьох блоків. Установка складається з таких функціональних вузлів: системи приймання та контролю техногенних РАВ, зокрема рідких; системи змішування й завантаження РАВ і домішок у шихту газифікатора; газифікаторів у вигляді трубчастих реакторів; системи подачі повітря-окислювача й домішок у газифікатор; системи видалення зольних продуктів; системи контролю і управління технологічними процесами;

системи доспалювання пірогазу; системи багатоступінчатого очищення димових газів; системи безперервного радіоактивного контролю, контролю викидів радіонуклідів і токсичних хімічних сполук в атмосферу; блока утилізації тепла.

Технічні параметри установки: продуктивність по твердих відходах — 0,5 т/год для одного реактора і 2 т/год для чотирьох реакторів; денна продуктивність — 12 т/год (один реактор) і 48 т/год (чотири реактори); експлуатаційний режим — 5 робочих днів на тиждень по три зміни на день; коефіцієнт скорочення об'єму твердих РАВ для перетворення на золу — до 90..99 разів; кількість золи — 50 кг/год (один реактор) і 200 кг/год (чотири реактори); склад органіки — до 75 % за масою; неорганічні інертні матеріали — до 80 %; хлорвмісні компоненти — до 2,5 %; розмір компонентів шихти — 60×60×60 мм; вологість шихти — до 60 %.

До складу спалюваного вхідного матеріалу входять деревина, папір, нафтопродукти, гумотехнічні вироби, графіт, пластикат рецептури 57–40, спецодяг тощо. Потужність дози випромінювання з поверхні вхідного матеріалу — до 10 мЗв/год, питома активність по випромінюванню β- і γ-розпаду — у діапазоні 1...20 кБк/кг, питома активність по випромінюванню α-розпаду — у діапазоні 0,1...2 кБк/кг.

Склад вихідних матеріалів містить зольний залишок, що концентрує основну частину радіонуклідів та інших металів, які утворюються в реакторі, продуктів системи доспалювання пірогазу і елементів системи газоочищення. Максимальна питома активність золи по випромінюванню β- і γ-розпаду — до 2 МБк/кг, питома активність по випромінюванню α-розпаду — до 0,2 МБк/кг.

Газоподібні РАВ, що утворюються пірогазифікаційною переробкою, — це піролізний газ, продукти доспалювання піролізного газу, викиди вентиляційних систем очищення. Газові викиди очищуються фільтрами. Уловлювані продукти очищення з радіонуклідами приєднуються до золи. Вторинні РАВ — лужні розчини з газоочищення — направляються у реактор спалювання на переробку або на цементування золи.

Основні результати розробки пірогазифікаційної установки: 1) можливість переробки гетерогенної суміші РАВ з високою вологістю (до 60 %); 2) високі значення коефіцієнтів зменшення об'єму і переходу радіонуклідів у золу; 3) коагуляція радіонуклідів та їх іммобілізація у нерозчинні мінералоподібні сполуки введенням спеціальних мінеральних домішок у шихту; 4) незначні коефіцієнти вилуговування іммобілізованих радіонуклідів.

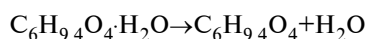
Для пірогазифікаційної переробки РАВ створено експериментальну установку, технічне рішення якої базується на схемі протитечії переробки шихти, відносно низькій температурі в зоні горіння, сорбції та коагуляції радіонуклідів у верхніх зонах, зокрема в зоні піролізу, різкому зниженні температури вихідних газів [13, 14]. Неорганічні компоненти суміші (бетон тощо) стабілізують процес переробки і після термодеструкції відділяються від золи промисловими домішками (на основі глини і кераміки) інтенсивно взаємодіють з радіонуклідами і змінюють їх фазовий склад з утворенням мінералоподібних сполук. Технологія забезпечує зменшення об'єму в 100–140 разів, коефіцієнт переходу в золу — понад 95 %. Проведено укрупнені дослідження (завантаження в експериментальну установку 0,5 т) з визначення коефіцієнта переходу радіонуклідів під час термічної переробки забрудненої деревини з Чорнобильської зони відчуження [15]. За результатами

досліджень визначено значення коефіцієнта компактування шихти (залежно від складу гетерогенної суміші РАВ — у межах від 50 до 200 разів) і коефіцієнта переходу радіонуклідів у золу (від 95 до 98 %), оцінено коефіцієнти масоперенесення до вузлів установки, зокрема системи газоочищення, та вентиляційні викиди.

Особливості пірогазифікаційної технології полягають у тому, що передбачаються п'ять зон спалювання, система поводження з радіоактивною золою, початковий контроль вихідних газів, доспалювання, газоочищення, забезпечення радіаційної безпеки, утилізація теплової енергії.

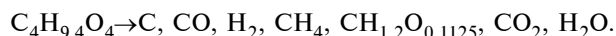
Умовно вважатимемо [16], що деревина має хімічний склад $C_6H_{9,4}O_4$ та утримує смоли з фенолів та поліароматичних сполук $CH_{1,2}O_{0,1125}$.

Послідовність зон починається із зони сушіння і підготовки шихти (перша зона, температура до 400 °С) з деградуванням деревини

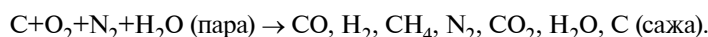


та адсорбцією радіонуклідів з газової фази на поверхні шихти і смоли.

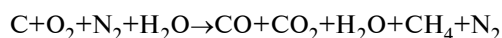
Піроліз відбувається в другій зоні, де температура дорівнює 400—600 °С. У процесі піролізу деревини за цієї температури утворюються продукти за схемою



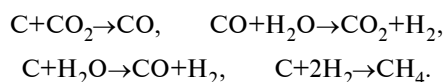
У разі газифікації деревини повітрям утворюються продукти



Газифікація вуглецю і відновлення мають місце в третій зоні з температурою 600—1000 °С. Тут відбуваються реакції газифікації



і реакція відновлення



Четверта зона — зона горіння з температурою 1000—1100 °С.

П'ята зона — зона охолодження золи, де температура спадає від 1100 °С до 200 °С.

Кінцевий етап роботи установки — накопичення золи, до складу якої входять кисневі, силікатні, іммобілізаційні сполуки Cs, Sr, інші радіонукліди, $CsAlSi_2O_6$, $Cs_2Si_4O_9$ та продукти переробки.

Контроль за вихідними газами (температура 160—260 °С, вихідні гази складаються з CO , CO_2 , O_2 , N_2 , H_2O + смоли, $H_2O_{\text{пар}}$), наявність допоміжної системи доспалювання газових викидів, потужної системи газоочищення (апарати мокрої очистки, фільтри, адсорбційні та абсорбційні колони) та дотримання вимог радіаційної безпеки є звичними вимогами щодо всіх існуючих установок спалювання РАВ.

Врахування фізико-хімічних властивостей цезію та його сполук. Одним з технологічних чинників є забезпечення максимального коефіцієнта концентрування цезію в золі (95—98 %) й мінімального масоперенесення цезію до вузлів установки, системи газоочищення, вентиляційних викидів

в атмосферу. Після Чорнобильської аварії вихід ^{134}Cs (період напіврозпаду 2,062 року) оцінювався в 47 ПБк, а ^{137}Cs (період напіврозпаду 30,1 року) — приблизно в 85 ПБк. Викид ^{137}Cs та ^{134}Cs внаслідок аварії на японській АЕС «Фукусіма-1» оцінюється в межах (15 ± 4) ПБк [17]. Площа забрудненої навколо АЕС «Фукусіма-1» території з дозою опромінення, вищою за 5 мЗв/рік, дорівнювала 436 км², а площа території з річною дозою 1...5 мЗв — 642 км². Лісові території не входили у зазначені території і входять до очікуваної зони відчуження площею 1343 км². Міграція цезію в ґрунтах є незначною. Небезпеку становить потрапляння цезію з ґрунту в ґрунтові води, які швидко переносять цезій. Через значні об'єми накопиченої в Японії органіки (9—13 млн. м³), що підлягає спалюванню, питання масоперенесення цезію, його надійного уловлювання, іммобілізації в нерозчинний продукт особливо актуальні у зв'язку з домінуючою роллю ізоотопів ^{134}Cs і ^{137}Cs . Основні відмінності між аварією на Чорнобильській АЕС і на АЕС «Фукусіма-1» полягають у відсутності значної кількості довгоживучого ізоотопу ^{90}Sr і трансуранових елементів, в першу чергу $^{238}, ^{239}, ^{240}, ^{241}Pu$ і ^{241}Am , у нуклідному векторі Фукусіми. Крім того, на поточний момент ^{134}Cs вже розпався і відсутній у РАВ Чорнобильського походження. Проблеми переробки Чорнобильських РАВ ускладнюються через наявність великої кількості довгоживучих радіонуклідів.

У процесі створення промислової установки або використання діючих, зокрема муніципальних, установок для спалювання сміття і лісових сполук треба враховувати комплекс факторів, які разом впливають на технологію процесу спалювання, концентрування цезію в золі і на керування його масоперенесенням в систему газоочищення. До таких факторів належать: фізико-хімічні властивості цезію та його сполук; склад домішок і властивості переробленої органіки; способи переробки і технологічна схема установки; оптимізація системи газоочищення; сучасні методи радіаційного контролю в системі установки і зовні.

Найважливішим у спалюванні відходів в установці є контроль забруднення атмосфери радіоізотопами цезію. Радіоактивність золи та інших елементів установки після попередньої обробки може бути захоронена у сховищах РАВ. Дані про ізоотопи цезію та відповідні хімічні реакції з ними наведено в [9]. Джерелом ізоотопів цезію після аварії на АЕС є відпрацьоване ядерне паливо, що утримує серед осколків поділу 13 ізоотопів цезію, зокрема 100 %-й стабільний ізоотоп ^{133}Cs . Найдовший період напіврозпаду мають три ізоотопи цезію: ^{134}Cs , ^{135}Cs ($T_{1/2} = 2,3 \cdot 10^6$ року) і ^{137}Cs . Радіонуклід ^{134}Cs утворюється не як осколок поділу, а внаслідок реакції нейтронного захоплення $^{133}Cs(n, \gamma)^{134}Cs$; ^{133}Cs може утворюватися під час β -розпаду $^{133}I \rightarrow ^{133}Xe \rightarrow ^{133}Cs$. У ядерному паливі, особливо в разі змінення температури, метал цезій перебуває, як правило, в нерозчинному вигляді в UO_2 . Внаслідок своєї великої рухомості цезій розміщується на границі таблетки UO_2 і стінки теплової границі твела із зовнішнім середовищем. Нагріте ядерне паливо в разі розгерметизації оточується атмосферою та водою, в результаті чого починається низка хімічних реакцій з утворенням оксидів, лугів, карбонатів, гідридів, галогенідів та інших сполук, кількість яких дуже велика.

Цезій бурно взаємодіє з водою (навіть з льодом) із запалюванням H_2 , енергійно реагує з галогенами, сіркою та іншими речовинами, утворює сплави з багатьма металами. Має високу реакційну здатність, з киснем спалахує, утворюючи кисневі сполуки: CsO (монооксид цезію); CsO_2

(надпероксид цезію) з температурою плавлення 450—490 °С та розкладом при температурі 597 °С; CsO₃ (озонід цезію); Cs₂O (оксид цезію) з температурою плавлення 360—400 °С та розкладом при температурі 690 °С; Cs₂O₂ (пероксид цезію) з температурою плавлення 594 °С та розкладом при температурі 650 °С; Cs₂O₃ (полуторний оксид цезію) з температурою плавлення 502 °С та розкладом при температурі 870 °С.

Деякі хімічні сполуки, поряд з металоорганічними, мають важливе значення в переході цезію в газову фазу. Такий перехід є найвагомим у забрудненні атмосфери установками спалювання.

Під час нагрівання багато кисневих сполук цезію розкладаються, і отримані продукти дають значний внесок у масоперенесення, особливо у вигляді пари цезію. Цезій легко утворює неорганічні та металоорганічні сполуки. З вологою цезій та його кисневі сполуки бурно реагують, утворюючи гідроксид та водень. Гідроксид цезію у вигляді CsOH·*n*H₂O має високу леткість, високу розчинність у воді (3800 г/л); температура плавлення моногідрата CsOH·H₂O — 180 °С, температура дегідратації — 400 °С. Нагріваючись з вуглецем, азотом, воднем він утворює карбіди (CsC), нітриди (CsN₃), гідриди (CsH, розкладаються при 360 °С), силіциди (CsSi).

Хлорид цезію (CsCl) — неорганічна бінарна сполука цезію з хлором, цезієва сіль хлорводневої кислоти; в кристалічному стані — безкольорова речовина з йонною структурою; нелетка, термічно стійка, добре розчиняється у воді та концентрованій соляній кислоті. Сульфат цезію (Cs₂SO₄) теж має низьку леткість, як і CsCl.

Цезій утворює карбонати, фосфати, нітрати, а також галогеніди. Останні мають високу температуру плавлення та кипіння:

Галогенід	CsF	CsCl	CsBr	CsI
Температура плавлення, °С	684	646	624	621
Температура кипіння °С	1253	1295	1297	1280

Склад і властивості переробленої органіки. Найкраща установка спалювання — це та, що забезпечує низький вихід аерозолів цезію з камери спалювання, дотримання норм радіаційної безпеки і рівень концентрації цезію в повітрі на вентиляційних викидах нижчий за допустиму норму. У табл. 1 і 2 наведено числові значення допустимих

рівнів (Д) цезію за НРБУ-97 [18] для працюючого персоналу (категорій А та Б) і населення (категорії В). Величина Д має два індекси: перший використовується для допустимого надходження ALI (н) і допустимої концентрації РС (к), другий індекс (а, б, в) має відношення до однієї з трьох категорій відповідно до [18, розділ 5].

Як видно з таблиць, установка спалювання забрудненої цезієм органіки повинна забезпечувати для населення концентрацію цезію на вентиляційних викидах у повітря нижчу, ніж 8·10⁻¹ Бк/м³.

Перероблювана органіка складається, в основному, із суміші деревини (стовбур, кора, гілля, коріння, будівельні матеріали) і листостеблової біомаси (листя, хвоя, лісна підстилка, солома тощо). Деревина містить клітковину, смоли, в основному — органічні речовини [19]; листостеблова біомаса — білки, жири, вуглеводи. Вологість вища за 30 % призводить до втрати в 2 рази енергетичної цінності, загнивання біомаси, зростання масоперенесення цезію. Для зниження вологості треба застосовувати зимову рубку та геліосушіння під накриттям. У середньому абсолютно суха деревина складається з чотирьох основних елементів: вуглецю (50±1) %, кисню (44±1) %, водню (6,1±0,3) % та азоту (до 0,4 %). Такий елементний склад практично однаковий для всіх порід дерев. Неорганічна складова деревини — це зола, що отримується спалюванням деревини. Кількість золи, як правило, становить від 0,2 % до 2 % за масою. До складу золи входять кальцій, калій, натрій, магній, у невеликій кількості — фосфор і сірка. Вони утворюють мінеральні речовини, більша частина яких є нерозчинною у воді, наприклад солі кальцію. Зазвичай у золі є понад 40 % солей кальцію, понад 20 % солей калію і натрію, до 10 % солей магнію. Розчинною у воді частиною є луги (поташ і сода). Кора за елементним складом мало відрізняється від деревини, але в ній трохи більше мінеральних речовин. Хімічні елементи утворюють такі складні органічні сполуки, як целюлоза (лінійний полімер — полісахарид C₆H₁₀O₅·*n*, де *n* — ступінь полімеризації в межах від 6000 до 14000), лігнін (високомолекулярна сполука ароматичної природи), геміцелюлози (група полісахаридів, яка включає пентозами і гексозани). Такі речовини становлять 90—95 % маси абсолютно сухої деревини. Вміст целюлози в деревині хвойних порід відрізняється більше (48—58 %), листяних порід — менше (39—47 %).

Таблиця 1. Числові значення допустимих рівнів ¹³⁷Cs для категорій А і Б

Персонал категорії А		Персонал категорії Б			Мінімальне значення активності на робочому місці МЗА, мкКі
Надходження через органи дихання D _{на} , Бк/рік	Концентрація радіонукліду в повітрі робочої зони D _{ка} , Бк/м ³	Надходження через органи дихання D _{нб} , D _{кб} , Бк/рік	Концентрація в робочій зоні D _{кб} , Кі/л		
			Повітря	Вода	
1·10 ⁵	6·10 ¹	0,1 D _{на} , 0,1 D _{ка}	1,9·10 ⁻¹³	1,5·10 ⁻⁸	10

Таблиця 2. Числові значення допустимих рівнів ¹³⁷Cs для населення категорії В

Група радіаційної безпеки при внутрішньому надходженні	Населення категорії В			
	Надходження через органи дихання D _{нв} , Бк/рік	Концентрація радіонукліду в повітрі D _{кв} , Бк/м ³	Надходження через органи травлення D _{нв} , Бк/рік	Концентрація радіонукліду в питній воді D _{кв} , Бк/м ³
В	2·10 ³	8·10 ⁻¹	5·10 ⁴	1·10 ⁵

Вміст лігніну в деревині вдвічі менший, ніж вміст целюлози. До складу деревини входять також екстрактивні речовини — смоли, барвники, дубильні речовини. Температура кипіння смол — від 92 до 250 °С.

Найважливіша база даних стосується скорочення об'ємів РАВ АЕС із суміші різномірних матеріалів. Дані з переробки аварійних, забруднених цезієм, органічних відходів нечисленні. Відмітимо найбільш важливі способи переробки таких РАВ. Перший — це спосіб прямого спалювання в шахтній печі, призначений для утилізації твердих РАВ. Другий — спалювання РАВ в обертаючому барабані роторної печі. Третій — використання явища піролізу з розщепленням вуглець-вуглецевих зв'язків при високій температурі за відсутності кисню або киснево-дефіцитної атмосфери, щоб уникнути окиснення й горіння без полум'я з подальшим допалюванням піролізного газу. Четвертий — пірогазифікаційний спосіб з комбінацією піролізу і газифікації та використанням багатозонної шахтної печі, що розглядався вище. П'ятий — спосіб, в якому використовується додаткове плазмове оплавлення зольного продукту для його іммобілізації перед захороненням в сховищі для відходів.

Всі способи мають свої переваги і недоліки. Для попередження генерації парів цезію в камері спалювання, забезпечення їх коагуляції, збільшення коефіцієнта концентрування цезію в золі, інтегрованого захоплення в газоочищенні найбільш придатне спалювання в шахтній або пірогазифікаційній печі.

Перероблювана органіка забруднюється аварійними нуклідами цезію внаслідок поверхневого надходження та кореневого живлення. Взаємодіючи із середовищем, цезій утворює гетерофазні багатокомпонентні сполуки (наприклад, CsCl від взаємодії аерозолів з морським повітрям). В Японії відпрацьовуються гідроструминний та вакуумний методи зниження рівня поверхневого забруднення.

Звернемо увагу на низьку вагову концентрацію цезію в органіці. Так, при питомій активності цезію в деревині 10 кБк/кг його ваговий вміст — усього $30 \cdot 10^{-10}$ г/кг деревини. Таким чином, залежно від рівня вилучення, встановленого для тєї чи іншої групи радіонуклідів, що містяться у РАВ, ваговий вміст на нижчому рівні вилучення ^{134}Cs і ^{137}Cs є дуже малим.

Масоперенесення також залежить від ступеня взаємодії з продуктами термопереробки і домішками в шихті. У разі невеликої кількості домішок глини у шихті, за рахунок зв'язування цезію в мінералоподібні сполуки алюмосилікатів (полуцит), на 3—5 порядків знижується парціальний тиск цезію.

Перший практичний досвід зі спалювання органіки, забрудненої аварійними радіонуклідами, був одержаний Сандійською національною лабораторією у США спільно з Інститутом проблем енергетики Білорусі при роботі із стабільним ізотопом ^{133}Cs [20]. Цей досвід показав можливість деконтамінації забрудненої території та особливості поводження цезію в процесі спалювання органіки, які збігаються з викладеними у статті даними.

Для ліквідації масоперенесення використовується шахтний пірогазифікаційний метод [21], що поєднує в собі низьку температуру газів, сушіння вологої шихти, коагуляцію цезію в піролізних струмках смоли, низьку температуру в зоні горіння, високий коефіцієнт (до 98 %) переходу цезію в золу, іммобілізацію цезію в нерозчинний мінералоподібний продукт (коефіцієнт вилуговування ^{137}Cs менший за 10^{-5} г/(см²·добу)), утилізацію тепла горіння.

На основі експериментальних робіт та досвіду поводження з РАВ Чорнобильського походження виконано техніко-економічне обґрунтування впровадження технологій зменшення об'ємів РАВ, які виникли під час дезактивації територій, забруднених внаслідок аварії на АЕС «Фукусіма Даїчі». Результати цих робіт опубліковані в рамках проекту Науково-технологічного центру України колективом Інституту проблем Чорнобилю [22].

Висновки

Як показали наші дослідження, пірогазифікаційна переробка радіоактивно забруднених матеріалів і РАВ у шахтній печі в протитечії шихта — продукту переробки дає змогу реалізувати низькотемпературну переробку (1000—1100 °С) зі зниженням температури вихідних газів (200 °С). Досягнуто високого коефіцієнта зменшення об'єму шихти (до 140 разів) і реалізовано можливість переробляти суміші з високою вологістю (до 60 %).

Встановлено, що введення неорганіки стабілізує процес термопереробки. Термодеструктурована неорганіка (бетон) після відсіву від золи може використовуватися як наповнювач під час бетонування сховищ РАВ. Введенням у шихту мінеральних добавок (каолініту, бентоніту тощо) відкривається можливість керувати масоперенесенням радіонуклідів, їх іммобілізацією в нерозчинний продукт. Взаємодія радіонуклідів з цими добавками безпосередньо під час термопереробки приводить до синтезу мінералоподібних сполук (алюмосилікатів, фосфатів, титанатів тощо) цезію і коагуляції дрібнодисперсних частинок золи.

Для зменшення масоперенесення цезію в газову фазу, щоб забезпечувати для населення концентрацію цезію на вентиляційних викидах у повітря нижчу, ніж $8 \cdot 10^{-1}$ Бк/м³, рекомендовано використовувати печі шахтного типу, багатозональні з висхідним потоком повітря, з сучасними фільтрами газоочищення. Підтримка окислювального середовища в зоні горіння, введення в шихту домішок до 1—2 % (за масою) CaCl₂, CaSO₄, глини (алюмосилікатів) знижують перехід цезію в газову фазу внаслідок формування нелетких сполук хлоридів та сульфатів цезію, сорбції цезію на поверхні глини з утворенням мінералів типу полуциту цезію. Суттєве значення має попереднє сушіння деревини й листостеблової біомаси (геліосушіння) для зниження вмісту вологи.

Автори вшановують пам'ять одного з відомих спеціалістів з переробки радіоактивних ґрунтів Г. О. Лобача.

Робота виконувалась за контрактом з Українським науково-технологічним центром на виконання обґрунтування зменшення об'єму відходів, які виникли під час дезактивації територій, забруднених в результаті аварії на АЕС «Фукусіма-1» в Японії.

Список використаної літератури

1. Лобач Г. А., Токаревський В. В. Комбинированная «мокрая» технология для дезактивации песчаных ґрунтов промышленной площадки ЧАЭС. 7-я науч.-практ. конф. «Ядерные установки: надежность и безопасность», 20—23 сентября 2005 г., Славутич, Украина. Тезисы докладов, С. 188.

2. Лобач Г. А., Токаревский В. В. Дезактивация грунтов, загрязненных в результате аварии на ЧАЭС : 1. Обоснование. *Вопросы химии и химической технологии*. 2005. № 6. С. 195—200.
3. Lobach G. A., Tokarevsky V. V. Complex Technique for Treatment of Radioactively Contaminated Plant Biomass Aimed at Agricultural Remediation of the Chernobyl Exclusion Zone. *WM'06 Conference, February 26 — March 2, 2006, Tucson, AZ*. 2006.
4. Лобач Г. А., Токаревский В. В., Крип И. М., Шимчук Т. В. Комбинированная технология для дезактивации песчаных грунтов с целью уменьшения объемов радиоактивных отходов перед захоронением. *Материалы междунар. науч. семинара «Радиоэкология Чернобыльской зоны» 27—29 сентября 2006 г. Славутич : Тезисы докладов*. 2006. С. 111.
5. Крип І. М., Лобач Г. О., Токаревський В. В., Шимчук Т. В. Фероціанідні сорбенти на глинистій матриці у процесах сорбції радіонуклідів. *Проблеми безпеки АЕС і Чорнобиля*. 2008. Вип. 9. С. 120—125.
6. Бернадіна Л. І., Лобач Г. О., Токаревський В. В. Спосіб дезактивації ґрунту. Заявка на патент України на винахід №а200803531. Пріоритет від 19.03.2008. Публікація про заявку в бюл. Держпатент України «Промислова власність» № 18 від 25.09.2009.
7. Veruzhsky Y., Grinko A., Geletukha G., Shimanovsky A., Tokarevsky V. Concept of radioactive biomass treatment on the territory of Chernobyl Exclusion Zone. *12th European Conference on Biomass for Energy, Industry and Climate Protection, 17—22 June, 2002, Amsterdam*. Pp. 144—148.
8. Grinko A. M., Tokarevsky V. V., Veriuzhsky Yu. V. Segregation of Radioactive Waste of Chernobyl Origin. *WM'06 Conference, February 26 — March 2, 2006, Tucson, AZ*. 2006.
9. Верюжский Ю. В., Гринько О. М. Розробка технології піропереробки горючих радіоактивних відходів з розділом (сепарацією) тривало- та короткоіснуючих нуклідів : УНТЦ проект № 3029. Технічний звіт по першому етапу. 2005. 64 с.
10. Veruzhsky Yu. V., Grinko A. M. Liquidation of the Chernobyl Disaster Aftermath : Development of a Technology for Pyrolytic Processing, Disposal and Compaction of Combustible Radioactive Technogenic Wastes. *STCU 651J — final report*. 2002. 74 p.
11. Veruzhsky Yu. V., Grinko A. M. Development of the Process for Pyrolytic Treatment of Combustible Radioactive Waste with Separation of Long-Lived and Short-Lived Nuclides. *STCU 3029 — final report*. 2007. 67 p.
12. Гринько О. М., Токаревський В. В., Новіков А. Д. Створення технології термопереробки і компактування РАВ з іммобілізацією радіонуклідів. *Міжнар. наук.-практ. конф. «Проблеми поводження з РАВ в Україні»*. К., 2008. С. 43—46.
13. Гринько А. М., Верюжский Ю. В., Токаревский В. В. Совершенствование технологии и оборудования пиропереработки РАО. *Сб. материалов 4-й междунар. конф. «Сотрудничество для решения проблемы отходов»*, 31 января — 1 февраля 2007, Харьков : «Экоинформ», 2007. С. 66—67.
14. Ажажа В. М., Гринько А. М., Верюжский Ю. В., Саенко С. Ю., Токаревский В. В. Создание новых технологий обращения с РАО. *Сб. материалов 4-й междунар. конф. «Сотрудничество для решения проблемы отходов»*, 31 января — 1 февраля 2007, Харьков : «Экоинформ», 2007. С. 62—64.
15. Гринько О. М., Токаревський В. В. Спосіб термічної переробки твердих горючих РАВ. Патент UA 52960 клас G21F9/28 і Патент UA 52961 клас G21F9/28 опубліковані у бюлетені №18, 2010; Патент UA 86306 клас G21F9/28 опубліковано у бюлетені №7, 2009.
16. Кривенко П. В., Пушкарьова К. К., Ракша В. О. Будівельне матеріалознавство. К., 2004. 703 с.
17. The Fukushima Daiichi Accident. Technical volume 5/5. Post-accident recovery. IAEA, 2015. 218 p.
18. Норми радіаційної безпеки України (НРБУ-97). Державні гігієнічні нормативи. К., 1998. 135 с.
19. Терентьева Э. П., Удовенко Н. К., Павлова Е. А. Химия древесины, целлюлозы и синтетических полимеров : Учеб. пособие. Ч. 2. СПб., 2015. 83 с.
20. Proceedings of the Chernobyl Phytoremediation and Biomass Energy Conversion Workshop, June 1998. PNNL-SA-29991. 521 p.
21. Гринько О. М., Новгородський М. В., Єфімов Ю. М., Одинець В. М. Розробка технології компактування горючих аварійних РАВ термопереробкою. *Матеріали наук.-техн. конф. «Проблеми поводження з РАВ в Україні»*, IX Міжнар. форум «Технології захисту». К., 2010. С. 83—88.
22. Tokarevsky V. Compaction of radioactive waste produced by decontamination of territories polluted due to the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. *ISTC/STCU Technical Review Committee Meeting of Fukushima Initiative “On the environmental assessment for long term monitoring and remediation in and around Fukushima”*. Hitotsubashi University Hall Tokyo, Japan. (Tokyo 5—6 November 2015). Tokyo, 2015. P. 10—27.

References

1. Lobach, G. A., Tokarevskyi, V. V. (2005), “Combined Wet Technology for Decontamination of Gritty Soils of ChNPP Industrial Site” [Kombinirovannaia “mokraia” tekhnologiya dlia dezaktivatsii peschanistykh gruntov promyshlennoi ploshchadki ChAES], 7-th Science and Practical Conference “Nuclear Facilities: Reliability and Safety”, Slavutych, Ukraine, 188 p. (Rus)
2. Lobach, G. A., Tokarevskyi, V. V. (2005), “Decontamination of Soils Contaminated after ChNPP Accident. Justification” [Dezaktivatsiia gruntov, zagriaznennykh v rezultate avarii na ChAES: Obosnovaniie], *Issues of Chemistry and Chemical Technology*, No. 6, pp. 195—200. (Rus)
3. Lobach, G. A., Tokarevskyi, V. V. (2006), “Complex Technique for Treatment of Radioactively Contaminated Plant Biomass Aimed at Agricultural Remediation of the Chernobyl Exclusion Zone”, WM'06 Conference, Tucson, AZ.
4. Lobach, G. A., Tokarevsky, V. V., Krip, I. M., Shymchuk, T. V. (2006), “Combined Technology for Decontamination of Gritty Soils in Order to Reduce Volumes of Radioactive Waste before Disposal” [Kombinirovannaia tekhnologiya dlia dezaktivatsii peschanistykh gruntov s tseliu umensheniia obiomov radioaktivnykh otkhodov perez zakhroneniem], Proceeding of the International Scientific Workshop “Radioecology of Chernobyl Zone”, Slavutych, Ukraine, 111 p. (Rus)
5. Krip, I. M., Lobach, G. O., Tokarevskyi, V. V., Shymchuk, T. V. (2008), “Ferrocyanide Sorbent on Clay Matrix during Radionuclide Sorption” [Feroctsiianidni sorbenty na hlynystii matrytsi u protsesakh sorbttsii radionuklidiv], *Safety Problems of NPPs and Chornobyl*, Ed. 9, pp. 120—125. (Ukr)
6. Bernadina, L. I., Lobach, G. O., Tokarevsky, V. V. (2009), “Method of Soil Decontamination. Ukraine Patent Application for Invention No. a200803531. Priority dated 19 March 2008” [Sposib dezaktivatsii hruntu. Zaiavka na patent Ukrainy na vynakhid No. a200803531. Priorytet vid 19.03.2008], Publication in Bulletin, State Patent of Ukraine “Industrial Property” No. 18 dated 25 September 2009. (Ukr)
7. Veriuzhsky, Yu., Grinko, A., Geletukha, G., Shimanovsky, A., Tokarevsky, V. (2002), “Concept of Radioactive Biomass Treatment on the Territory of Chernobyl Exclusion Zone”, 12th European Conference on Biomass for Energy, Industry and Climate Protection, Amsterdam, pp. 144—148.
8. Grinko, A. M., Tokarevsky, V. V., Veriuzhsky, Yu. V. (2006), “Segregation of Radioactive Waste of Chernobyl Origin”, WM'06 Conference, Tucson, AZ.
9. Veriuzhsky, Yu. V., Grinko, O. M. (2005), “Development of Pyrolytic Treatment of Combustible Radioactive Waste with Separation of Long- and Short-Lived Nuclides, STCU Project No. 3029” [Rozrobka tekhnologii piropereobky horiuchykh radioaktivnykh vidkhodiv z rozdilom (separatsiieiu) tryval- ta korotkoisnuichykh nuklidiv: UNTTs proekt No. 3029], Technical Report on the First Stage, 64 p. (Ukr)
10. Veriuzhsky, Yu. V., Grinko, A. M. (2002), “Liquidation of the Chernobyl Disaster Aftermath: Development of a Technology for Pyrolytic Processing, Disposal and Compaction of Combustible Radioactive Technogenic Wastes”, STCU 651J — final report, 74 p.
11. Veriuzhsky Yu. V., Grinko A. M. (2007), “Development of the Process for Pyrolytic Treatment of Combustible Radioactive Waste with Separation of Long-Lived and Short-Lived Nuclides”, STCU 3029 — final report, 67 p.

12. Grinko, O. M., Tokarevskyi, V. V., Novikov, A. D. (2008), "Creation of Technology for Thermal Treatment and Compaction of Radioactive Waste with Waste Immobilization" [Stvorennia tekhnolohii termopererobky i kompaktuvannia RAV z immobilizatsiieiu radionuklidiv], International Science and Practical Conference "Problems of Radwaste Management in Ukraine", Kyiv, 2008, pp. 43–46. (Ukr)
13. Grinko, A. M., Veriuzhsky, Yu. V., Tokarevsky, V. V. (2007), "Improving Technology and Equipment for Radioactive Waste Pyrotreatment" [Sovershenstvovaniie tekhnologii i oborudovaniia piropere-rabotki RAO], Collection of Proceedings of the 4th International Conference "Cooperation for Solving Waste Problem", Kharkiv, Ecoinform, pp. 66–67. (Rus)
14. Azhazha, V. M., Grinko, A. M., Veriuzhsky, Yu. V., Saienko, S. Yu., Tokarevsky, V. V. (2007), "Creation of New Radioactive Waste Management Technologies" [Sozdaniie novykh tekhnologii obrashcheniia s RAO], Collection of Proceedings of the 4th International Conference "Cooperation for Solving Waste Problem", Kharkiv, Ecoinform, pp. 62–64. (Rus)
15. Grinko, O. M., Tokarevsky, V. V. (2009), "Method of Thermal Processing of Solid Combustible Radioactive Waste" [Sposib termichnoi pererobky tverdykh horiuchykh RAV], Patent UA 52960 of Class G21F9/28 and Patent UA 52961 of Class G21F9/28 Published in Bulletin No. 18, 2010; Patent UA 86306 of Class G21F9/28 Published in Bulletin No. 7. (Ukr)
16. Kryvenko, P. V., Pushkariova, K. K., Raksha, V. O. (2004), "Construction Material Science" [Budivselne materialoznavstvo], Kyiv, 2004, 703 p. (Ukr)
17. The Fukushima Daiichi Accident, Technical Volume 5/5, Post-Accident Recovery. IAEA, 2015, 218 p.
18. NRB-97 Radiation Safety Standards of Ukraine. State Health and Safety Standards [Normy radiatsiinoi bezpeky Ukrainy (NRBU-97). Derzhavni hihienichni normatyvy], Kyiv, 1998, 135 p. (Ukr)
19. Terentieva, E. P., Udovenko, N. K., Pavlova, E. A. (2015), "Chemistry of Wood, Cellulose and Synthetic Polymers: Manual" [Khimiia drevesiny, tselliiozy i sinteticheskikh polimerov: Uchebnoie posobiie], Part 2, Saint Petersburg, 83 p. (Rus)
20. Proceedings of the Chernobyl Phytoremediation and Biomass Energy Conversion Workshop, June 1998, PNNL-SA-29991, 521 p.
21. Grinko, O. M., Novgorodskii, M. V., Yefimov, Yu. M., Odynets, V. M. (2010), "Development of Technology for Compacting of Combustible Emergency Radioactive Waste by Thermal Processing" [Rozrobka tekhnolohii kompaktuvannia horiuchykh avariinykh RAV termopererobkoiu], Proceedings of the Science and Technical Conference "Problems of Radioactive Waste Management in Ukraine", IX International Forum "Protection Technologies", Kyiv, pp. 83–88. (Rus)
22. Tokarevsky, V. (2015), "Compaction of Radioactive Waste Produced by Decontamination of Territories Polluted due to the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station". ISTC/STCU Technical Review Committee Meeting of Fukushima Initiative "On the Environmental Assessment for Long Term Monitoring and Remediation in and around Fukushima", Hitotsubashi University Hall Tokyo, Japan, Tokyo, pp. 10–27.

Отримано 25.07.2016.