

Nghiên cứu xử lý bã thải phóng xạ có hoạt độ thấp bằng phương pháp bitum hoá

Trần Văn Quy*

Khoa Môi trường, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, ĐHQGHN, 334 Nguyễn Trãi, Hà Nội, Việt Nam

Nhận ngày 12 tháng 01 năm 2011

Tóm tắt. Phương pháp bitum hoá áp dụng trong xử lý định dạng chất thải phóng xạ có hoạt độ thấp và trung bình đã được áp dụng rộng rãi ở nhiều quốc gia có ngành công nghiệp hạt nhân phát triển. Việt Nam đang có kế hoạch xây dựng nhà máy điện nguyên tử, vì vậy ngay từ bây giờ việc quan tâm nghiên cứu trong lĩnh vực xử lý và quản lý chất thải phóng xạ đảm bảo an toàn phóng xạ cho sức khỏe con người và môi trường là hết sức cấp bách.

Trong bài báo này đã đề cập tới phương pháp bitum hoá định dạng chất thải phóng xạ và lựa chọn quy trình thích hợp với điều kiện Việt Nam để xử lý chất thải phóng xạ có hoạt độ thấp bằng phương pháp bitum hoá.

Kết quả nghiên cứu cho thấy, có thể áp dụng quy trình bitum hóa gián đoạn ở Việt Nam. Đã lựa chọn được các thông số công nghệ phù hợp cho quy trình này như sau: Nhiệt độ tiến hành bitum hóa 220°C; thời gian khuấy trong khoảng 15 đến 20 phút; tỷ lệ khối lượng thích hợp phối trộn tro/bitum = 4/6; tỷ lệ khối lượng nhựa trao đổi ion đã qua sử dụng /bitum không lớn hơn 3,5/6,5.

Kết quả khảo sát khả năng dịch chuyển nhân phóng xạ ra môi trường nước của bã thải sau khi định dạng đạt quy chuẩn cho phép (QCVN 08:2008/BTNMT). Sản phẩm chất thải phóng xạ đã bitum hóa có các đặc tính cơ lý đạt yêu cầu kỹ thuật.

Từ khóa: Chất thải phóng xạ, phương pháp bitum, bã thải phóng xạ, hoạt độ, xử lý.

1. Mở đầu

Chất thải phóng xạ (CTPX) có khả năng gây tác hại đối với con người và môi trường không chỉ trong hiện tại, trước mắt mà còn ảnh hưởng lâu dài đến các thế hệ mai sau. Do đó, các quy trình công nghệ tiên tiến cần phải được áp dụng để quản lý CTPX một cách an toàn, kinh tế nhất, giảm sự thiệt hại đến mức thấp nhất có thể được.

Phương pháp bitum hoá đã được sử dụng trong công nghiệp hạt nhân từ 40 năm gần đây, đã thu hút sự quan tâm của hơn 20 nước thành

viên của Cơ quan Năng lượng Nguyên tử Quốc tế (IAEA) và được đầu tư tài chính lớn để xây dựng và vận hành các nhà máy bitum có quy mô công nghiệp cho việc xử lý một lượng lớn bã thải từ chu trình nhiên liệu hạt nhân và các hoạt động nghiên cứu hạt nhân [1-7]

Trong những thập niên gần đây, Việt Nam đã có nhiều nghiên cứu và ứng dụng công nghệ hạt nhân trong công nghiệp, y tế, nông nghiệp, thăm dò địa chất, khai thác dầu khí và nghiên cứu khoa học. Hiện tại, Việt Nam đang có kế hoạch xây dựng nhà máy điện nguyên tử đầu tiên, do vậy việc nghiên cứu xử lý các loại bã thải phóng xạ đang có từ các cơ sở nghiên cứu và ứng dụng đồng vị phóng xạ.... cũng như đào tạo cán bộ trong lĩnh vực xử lý và quản lý thải

* ĐT: 0912494819.

E-mail: tranvanquy@hus.edu.vn

xạ đảm bảo an toàn bức xạ là hết sức cấp bách. Bi tum dễ tạo liên kết bền với các CTPX có hoạt độ thấp và trung bình ở dạng bùn, tro hay vật liệu trao đổi ion đã qua sử dụng. Các CTPX có hoạt độ thấp sau khi được bitum hóa (BWP) đạt trạng thái ổn định về cơ lý, hóa học và PX, thuận tiện cho việc đóng gói, bảo quản, vận chuyển và chôn cất. Dưới đây, đề cập một số kết quả nghiên cứu về các thông số kỹ thuật cho quy trình bitum hóa gián đoạn.

2. Đối tượng và phương pháp nghiên cứu

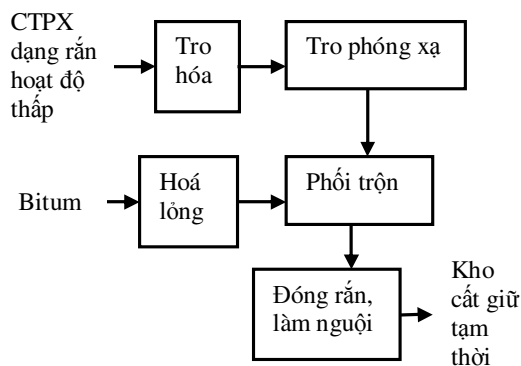
2.1. Đối tượng nghiên cứu

Tro từ giấy, bìa, quần áo bảo hộ thông thường và các CTPX dạng rắn có hoạt độ thấp (giấy lọc, găng tay, quần áo bảo hộ và nhựa trao đổi ion đã qua sử dụng) từ các phòng thí nghiệm của Viện Công nghệ Xạ hiếm

2.2. Phương pháp nghiên cứu

- Thu thập các tài liệu từ các nguồn khác nhau liên quan đến vấn đề nghiên cứu;
- Bố trí thí nghiệm và khảo sát các yếu tố ảnh hưởng đến hiệu quả của quá trình.

Sơ đồ thí nghiệm theo mẻ được đưa ra trên Hình 1.



Hình 1. Sơ đồ bố trí thí nghiệm công nghệ bitum hoá gián đoạn [1].

Cân lượng bitum nhất định cho vào cốc nung bằng thép, sau đó gia nhiệt cho đến khi thu được khối bitum đã chảy lỏng hoàn toàn. Cân lượng tro phóng xạ (PX) với tỷ lệ khối lượng nhất định (tro PX/bitum từ 20 đến 45 %) theo từng mẻ và nạp từ từ vào thiết bị phối trộn có khuấy (tốc độ khuấy 50 vòng/phút) để khối bitum và tro PX được đồng nhất hoàn toàn. Khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ tới sự hóa lỏng bitum, ảnh hưởng của thời gian khuấy trộn đối với độ đồng nhất của sản phẩm, ảnh hưởng của tỷ lệ phối trộn giữa tro PX với bitum.

Đồ hỗn hợp ra cốc chứa mẫu đã chuẩn bị sẵn, để nguội – đóng rắn ở nhiệt độ phòng ổn định sau 24 giờ sau đó mang đi phân tích các đặc tính cơ hoá lý và phóng xạ của sản phẩm. Đồng thời xác định khả năng dịch chuyển nhân PX ra môi trường nước, xác định suất liều bề mặt của sản phẩm lưu giữ cuối,...

- Phương pháp phân tích xác định các đặc tính cơ lý cơ bản của bitum được sử dụng cho định dạng CTPX hoạt độ thấp và BWP;

+ Xác định độ kim lún hay độ xuyên kim của bitum và BWP theo TCVN:7495:2005 [8];

+ Xác định điểm biến mềm theo TCVN 7497:2005 [9];

+ Xác định tỷ trọng của bitum và BWP theo TCVN: 7501:2005 theo phương pháp Pycnometer [10];

+ Xác định nhiệt bắt lửa và điểm cháy của bitum và BWP theo TCVN:7498:2005 bằng thiết bị cốc hồ Cleveland [11];

+ Phương pháp xác định đặc tính PX của bitum và BWP;

+ Đo suất liều bề mặt các mẫu bitum gốc và các BWP trên máy đo IN Spector 1000;

Đo hoạt độ các chất PX trong tro PX sau khi đốt tại Trung tâm Phân tích Viện Công nghệ Xạ hiếm trên máy đo IN Spector 1000 digital handheld MCA: 10 nSv/h – 100 μ Sv/h.

3. Kết quả và thảo luận

3.1. Hoạt độ các chất PX trong tro PX

Kết quả phân tích hoạt độ các chất PX và tổng hoạt độ của tro PX sau khi đốt các loại CTPX dạng rắn đã thu gom được đưa ra trong Bảng 1.

Bảng 1. Hoạt độ các chất PX và tổng hoạt độ của tro PX

Thành phần các chất PX có trong tro	K	U	Th
Hoạt độ (Bq/kg)	2,88	38454	56,19
Tổng hoạt độ (Bq/kg)	1255875		

Như vậy, hoạt độ PX của các chất PX và tổng hoạt độ PX của tro là rất lớn theo định

nghĩa về CTPX đã được đưa ra trong Luật Năng lượng Nguyên tử Việt Nam (2008). Vì vậy, việc bitum hóa chúng để lưu giữ bảo quản hợp lý là điều rất cần thiết.

3.2. Ảnh hưởng của nhiệt độ tới sự hóa lỏng bitum

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của nhiệt độ để hóa lỏng bitum được đưa ra trong Bảng 2. Từ kết quả trong Bảng 2 thấy rằng, ở nhiệt độ 220°C quá trình bitum hóa là tốt nhất. Kết quả này hoàn toàn phù hợp với tài liệu của IAEA đã công bố, tại nhiệt độ này bitum được hoá lỏng hoàn toàn mà chưa làm bay hơi các thành phần dầu chứa trong bitum.

Bảng 2. Ảnh hưởng của nhiệt độ đối với quá trình hóa lỏng bitum

Mẫu	Khối lượng bitum (g)	Tỷ lệ khối lượng tro PX/bitum (%)	Thời gian khuấy (phút)	Nhiệt độ (°C)	Nhận xét
M _{T1}	200	0	20	160	Độ nhớt cao, khó khuấy trộn
M _{T2}				180	Độ nhớt cao, khó khuấy trộn
M _{T3}				200	Độ nhớt thấp, bitum chưa chảy lỏng hoàn toàn
M _{T4}				210	Độ nhớt thấp, bitum chưa chảy lỏng hoàn toàn
M _{T5}	200	30	20	220	Bitum chảy lỏng hoàn toàn

Ghi chú: M_{T1}, M_{T2}, M_{T3}, M_{T4}, M_{T5} là các mẫu thí nghiệm về ảnh hưởng của nhiệt độ

3.2. Ảnh hưởng của thời gian khuấy trộn đối với độ đồng nhất của sản phẩm

Kết quả khảo sát ảnh hưởng của thời gian khuấy trộn đối với quá trình bitum hóa được đưa ra trong Bảng 3.

Quan sát trực quan cũng cho thấy, với tỷ lệ khối lượng tro PX/bitum = 30%, khuấy trong khoảng thời gian từ 15 đến 20 phút, BWP thu được có kết quả tốt nhất về: sự đồng nhất hỗn hợp; bề mặt nhẵn; không có rỗ khí và có các chỉ tiêu cơ lý tốt.

Bảng 3. Ảnh hưởng của thời gian khuấy trộn đối với sự đồng nhất của sản phẩm

Mẫu	Khối lượng bitum (g)	Tỷ lệ khối lượng tro PX/bitum (%)	Nhiệt độ (°C)	Thời gian khuấy (phút)	Nhận xét
M _{I1}	200	30	220	5	Hỗn hợp không đồng nhất
M _{I2}				10	Hỗn hợp không đồng nhất
M _{I3}				15	Hỗn hợp đồng nhất
M _{I4}				20	Hỗn hợp đồng nhất

Ghi chú: M_{I1}, M_{I2}, M_{I3}, M_{I4} là các mẫu thí nghiệm về ảnh hưởng của thời gian khuấy

3.3. Ảnh hưởng của tỷ lệ phối trộn giữa tro PX với bitum

Các kết quả khảo sát ảnh hưởng của tỷ lệ phối trộn đối với quá trình bitum hóa được đưa ra trong Bảng 4.

Quan sát trực quan thấy rằng, khi tỷ lệ phối trộn tro PX vào bitum từ 20% khối lượng thì

sản phẩm bitum thu được đã có độ đồng nhất tốt nhất. Tuy nhiên, với mục đích tăng tối đa lượng tro PX để lưu giữ và bảo quản đồng thời để thỏa mãn tốt nhất các yêu cầu về chỉ tiêu cơ lý, hóa học và an toàn bức xạ đối với sản phẩm loại bỏ cuối cùng thì hàm lượng rắn có thể phối trộn tối đa là 40% khối lượng.

Bảng 4. Ảnh hưởng của tỷ lệ phối trộn giữa tro PX với bitum tới BWP

Mẫu	Khối lượng bitum (g)	Thời gian khuấy (phút)	Nhiệt độ ($^{\circ}\text{C}$)	Tỷ lệ khối lượng tro PX/bitum (%)	Nhận xét
M _{c1}	200	20	220	20	Hỗn hợp đồng nhất tốt
M _{c2}				30	Hỗn hợp đồng nhất tốt
M _{c3}				35	Hỗn hợp đồng nhất tốt
M _{c4}				40	Hỗn hợp đồng nhất tốt
M _{c5}				45	Hỗn hợp đồng nhất kém

Ghi chú: M_{c1}, M_{c2}, M_{c3}, M_{c4}, M_{c5} là các mẫu thí nghiệm về ảnh hưởng của tỷ lệ % khối lượng tro PX/bitum.

Các mẫu BWP để nguội ở nhiệt độ phòng, sau 24 giờ được mang đi xác định tỷ trọng, nhiệt bắt lửa, điểm cháy, điểm biến mềm, độ kim lún. Kết quả phân tích được đưa ra trong Bảng 5.

Kết quả đưa ra trong Bảng 5 phù hợp với kết quả đã được công bố trong tài liệu của IAEA [1,2].

Bảng 5. Các đặc tính cơ bản của BWP theo lượng tro PX

Tỷ lệ khối lượng tro PX/bitum (%)	40	60	70	80	90
Đặc tính vật lý					
Tỷ trọng ở 25 $^{\circ}\text{C}$, g/cm ³	1,1	1,16	1,3	1,56	1,61
Nhiệt bắt lửa, $^{\circ}\text{C}$	270 – 280	270 – 280	265 – 270	260 – 265	260 – 265
Điểm cháy, $^{\circ}\text{C}$	≥ 290	≥ 285	> 280	> 280	> 280
Điểm biến mềm, $^{\circ}\text{C}$	45 – 48	48 – 52	52 – 55	55 – 57	57 – 60
Độ kim lún, 0,1mm	55 – 58	50 – 55	48 – 54	44 – 46	40 – 44

3.4. Ảnh hưởng của tỷ lệ phối trộn giữa nhựa trao đổi ion đã qua sử dụng với bitum

Kết quả xác định các đặc tính cơ, lý cơ bản của BWP nhựa trao đổi ion được trình bày trên Bảng 6.

Tỷ lệ khối lượng nhựa trao đổi ion có thể nạp trong bitum đến 40% so với khối lượng bitum. Tuy nhiên, do nhựa trao đổi ion có cấu trúc bao gồm các gốc hydrocacbon và trong

nhựa còn có lượng nước dư. Ngoài ra, quan sát khi tiến hành thí nghiệm thấy rằng quá trình bitum hóa sinh khí và tạo bọt mãnh liệt tạo sản phẩm cuối cùng có lỗ rỗng cho nên, tỷ lệ nhựa trao đổi ion nạp vào bitum không nên vượt quá 35% nhằm đảm bảo được những yêu cầu tốt nhất đối với sản phẩm cuối cùng (tương ứng tỷ lệ khối lượng nhựa trao đổi ion đã qua sử dụng/bitum không lớn hơn 3,5/6,5).

Bảng 6. Các đặc tính cơ lý cơ bản của BWP nhựa trao đổi ion theo khối lượng

Tỷ lệ khối lượng nhựa TĐIO/bitum (%)	20	30	35	40
Đặc tính vật lý				
Tỷ trọng ở 25°C, g/cm ³	1,01	1,06	1,08	1,1
Nhiệt bắt lửa, °C	275 – 280	270 – 275	265 – 270	260 – 265
Điểm cháy, °C	> 280	> 280	> 280	> 280
Điểm biến mềm, °C	48 – 50	50 – 54	55 – 58	56 – 58
Độ kim lún, 0,1 mm	45 – 50	52 – 54	54 – 57	57 – 60

3.5. Xác định khả năng dịch chuyển nhân PX ra môi trường nước của BWP

Mẫu BWP với tỷ lệ tro PX/bitum là 40% khối lượng được ngâm trong chậu thủy tinh, sau mỗi tuần lấy mẫu ra, lấy mẫu đó và nước ngâm chúng đi phân tích hoạt độ PX, kết quả thu được thể hiện trong Bảng 7.

Từ kết quả cho thấy, BWP có khả năng giam giữ các nhân PX rất tốt, đáp ứng tiêu chuẩn về an toàn bức xạ, trong mẫu nước ngâm chỉ phát hiện được sự có mặt của các hạt nhân PX dưới mức tiêu chuẩn của nước mặt QCVN 08:2008/BTNMT ($\sum\alpha < 0,1$ và $\sum\beta < 1,0$ Bq/L)

Bảng 7. Kết quả phân tích hoạt độ PX có trong BWP và nước ngâm mẫu BWP

Sau thời gian (tuần)	Hoạt độ (Bq/kg)					
	Mẫu BWP			Mẫu nước ngâm BWP		
	K	U	Th	K	U	Th
1				0,00002	0,0240	0,0080
2				0,00002	0,0240	0,0080
3	2,52	11759	53,85	0,00002	0,0240	0,0080
4				0,00002	0,0240	0,0080
5				0,00002	0,0240	0,0080

3.6. Xác định suất liều bề mặt của các mẫu BWP

Kết quả xác định suất liều bề mặt của các mẫu thí nghiệm được đưa ra trong Bảng 8.

Đây là những CTPX rắn chứa các đồng vị sống dài cần được tập trung lưu giữ, trong thời gian dài để đảm bảo an toàn PX cho việc tàng trữ bất kỳ lượng chất PX nào ở dạng rắn với hoạt độ riêng $< 2.10^{-6}$ Ci/Kg đối với hạt phát

beta, $< 2.10^{-7}$ Ci/Kg đối với hạt phát gamma, $< 2.10^{-7}$ Ci/Kg đối với hạt phát anpha.

Suất liều tương đương ở mọi điểm cách bề mặt của nguồn kín 0,1m không vượt quá 0,1mrem/h; so sánh với tiêu chuẩn an toàn PX cho thấy BWP thu được hoàn toàn đáp ứng được các tiêu chuẩn an toàn PX [1-7].

Bảng 8. Suất liều bề mặt của các mẫu BWP

Mẫu Lần đo	Phòng PX (μ Sv/h)	Mẫu bitum gốc (μ Sv/h)	Mẫu BWP (tỷ lệ % khối lượng tro PX/bitum)			
			20	30	35	40
			(μSv/h)			
1	0,167	0,320	5,410	6,250	6,510	9,450
2	0,161	0,290	5,462	6,137	6,450	9,420
3	0,155	0,270	5,664	6,218	6,410	9,438
4	0,145	0,290	5,532	6,119	6,370	9,430
5	0,161	0,305	5,543	6,086	6,240	9,390
Giá trị trung bình	0,158	0,295	5,522	6,162	6,396	9,426

4. Kết luận

1. Phương pháp bitum hoá thích hợp cho định dạng nhiều loại CTPX có hoạt độ thấp và trung bình như bùn đặc, bùn sệt, vật liệu trao đổi ion, dịch cô đặc, đặc biệt là các chất thải có tỷ trọng thấp như nhựa trao đổi ion, tro PX của quá trình tro hóa giấy lọc, gang tay, quần áo bảo hộ v.v...

2. Với lượng chất thải phát sinh ở nước ta chưa nhiều, phân tán và điều kiện công nghệ hiện có thể áp dụng quy trình gián đoạn là phù hợp

3. CTPX trước khi đem đi bitumhoá cần được phân loại cẩn thận, loại trừ các chất có thể gây cháy nổ, và cần được tiến hành tiền xử lý thích hợp đảm bảo an toàn trong quá trình bitum hóa. Các xương bitum hoá CTPX nhất thiết phải được trang bị dụng cụ cứu hoả.

4. Khi tiến hành bitum hoá các CTPX với tỷ lệ tro PX đến 40% khối lượng (tương ứng tỷ lệ khối lượng phối trộn tro/bitum khoảng 4/6) ở nhiệt độ 220°C, khuấy trộn trong khoảng thời gian 20 phút thu được BWP có đặc tính đáp ứng các yêu cầu về cơ, lý, hóa, PX và kinh tế.

5. Có thể phối trộn nhựa trao đổi ion nạp vào bitum không vượt quá 35% khối lượng (tương ứng tỷ lệ khối lượng nhựa trao đổi ion đã qua sử dụng/bitum không lớn hơn 3,5/6,5) sẽ đảm bảo được những yêu cầu tốt nhất đối với sản phẩm cuối cùng.

Tài liệu tham khảo

- [1] International Atomic Energy Agency Vienna (1993), "*Bituminization processes to condition radioactive wastes*", Technical Reports Series No.352.
- [2] International Atomic Energy Agency Vienna (1993), "*Containers For Packaging of solid and intermediate level Radioactive Wastes*", Technical Reports Series No.355.
- [3] International Atomic Energy Agency Vienna (1993), "*Improved cement solidification of low and intermediate level radioactive wastes*", Technical Reports Series No.350.
- [4] Vũ Mạnh Khôi (2006), *Đại cương về An toàn bức xạ và Liều lượng học*, Trung tâm an toàn bức xạ và môi trường, Viện khoa học và kỹ thuật hạt nhân VAEC.
- [5] Đỗ Quý Sơn, *Bài giảng chuyên đề "Nhiên liệu và chất thải nhà máy điện hạt nhân"*, Viện Công nghệ Xạ Hiểm, Hà Nội, 2006.
- [6] Cao Hùng Thái, *Giới thiệu chu trình nhiên liệu, quản lý và xử lý chất thải phóng xạ*, Viện Công nghệ Xạ Hiểm, 2006.
- [7] Nguyễn Bá Tiến, "*Thông tin về tình hình điều tra phóng xạ môi trường ở Việt Nam*", Trung tâm xử lý chất thải phóng xạ và môi trường, Viện Công nghệ Xạ Hiểm, Hà Nội, 2009
- [8] TCVN 7495:2005. Bitum. Phương pháp xác định độ kim lún
- [9] TCVN 7497:2005. Bitum - Phương pháp xác định điểm hóa mềm (dụng cụ vòng-và-bi)
- [10] TCVN 7501:2005. Bitum. Phương pháp xác định khối lượng riêng
- [11] TCVN 7498:2005. Bitum. Phương pháp xác định điểm chớp cháy và điểm cháy bằng thiết bị thử cốc hở

A Study on low activity radioactive waste treatment by bituminization method

Tran Van Quy

*Faculty of Environmental Sciences, Hanoi University of Science, VNU,
334 Nguyen Trai, Hanoi, Vietnam*

Bituminization method was used in low and medium activity radioactive waste treatment in many countries which have developed nuclear industry. Vietnam is going to build nuclear power plant, so

from now we must interested in radioactive waste management and treatment fields to ensure radioactive safety for human health and the environment.

This research includes material overview about Bituminization method to solidify radioactive waste on the world, then research and find out low activity radioactive waste treatment process which is suitable with Viet Nam Conditions.

The results show that batch bituminization process is suitable with Viet Nam conditions. Have chosen appropriate technique parameters for the process as follow: bituminization temperature is 220°C ; stirring time: 15 – 20 minutes; ratio ash/bitumen = 4/6 (W/W); used ion exchange resin/bitumen $\leq 3.5/6.5$ (W/W)

Has studied release ability of radiation from wastes to aquatic environment reach QCVN 08:2008/BTNMT. BWP quality results have mechanic-physical characteristics met technique requires.

Keywords: radioactive waste, bituminization method, activity, treatment.