

L. SMEETS

Chef van de Dienst Afvalbehandeling,  
Reactor Centrum Nederland

---

## SUMMARY

### Treatment of Radioactive Waste

The atomic energy industry has just as the conventional industries, as one of its problems, the disposal and treatment of unwanted wastes.

The difference between conventional and atomic energy wastes is mainly caused by the phenomenon of radioactivity. Because of the dangerous nature and the impossibility to change or destroy this essential property, radioactive wastes have to be treated in order to reduce the health hazards to an acceptable level.

In many cases the treatment of radioactive wastes is aimed at the removal of the radioactive contaminants from the bulk material. Radioactive wastes arise from the production and use of radioactive substances.

The classification of radioactive wastes into four main categories of high active solid-, low active solid-, high active liquid- and low active liquid wastes is desirable in order to decide about the treatment.

The treatment of highly radioactive wastes is for the present limited to shielded storage.

Low active solid wastes are very often materials that can be compressed and after that taken up in concrete for storage or ultimate disposal. There are several methods for treatment of low level radioactive liquids. All aim to concentrate the radioactivity in a small volume.

No method results in a complete decontamination of radioactive waste water. This means that always some radioactivity will be disposed to the environment. This disposal however, has to be controlled and must be carried out so that it never can cause harm to the population.

---

# Behandeling van radioactieve afval

## Inleiding

De vorming van afvalproducten is een ongewenste bijkomstigheid van nagenoeg iedere industriële bedrijvigheid. Bij de nucleaire technologie worden we ook geconfronteerd met de vorming van diverse nevenproducten, die we met de verzamelnaam „afval” betitelen.

In wezen onderscheidt deze afval nauwelijks van datgene wat in het conventionele afvalspectrum voorkomt. Ook hier gaat het om alle mogelijke materialen, in vaste en gasvormige toestand en, waar we in het bijzonder bij stil willen staan, afvalwater. Conventionele afvalstoffen worden in de natuur geloosd, in vele gevallen nadat deze stoffen aan de een of andere bewerking zijn blootgesteld: uitsortering, verbranding of neutralisatie. Door chemische en biologische afbraak, synthese en door verplaatsingsmechanismen zijn, enkele uitzonderingen daargelaten, ondanks deze algemene afvallozing in de natuur nog vrij bevredigende omstandigheden gehandhaafd. Met het afvalvraagstuk van de nucleaire technologie wordt echter een geheel nieuw aspect geïntroduceerd, nl. het begeleidend verschijnsel der radioactiviteit. We spreken dan ook van „radioactief afval”. Hierbij gaat het vrijwel steeds om een grote hoeveelheid niet-radioactief materiaal, als het ware verontreinigd met radioactieve nucliden. Bovendien hebben we te doen met gevaarlijke stoffen zonder dat we over een kunstmatig mechanisme beschikken om dit gevaar te niet te doen. Alleen het natuurlijk verval van de radioactiviteit staat ons ten dienste.

Omdat we dus niet over middelen beschikken om de radioactiviteit kunstmatig te vernietigen, tracht men in het algemeen de behandeling van radioactieve afval te richten op het scheiden van de radioactieve elementen van de massa niet-radioactief materiaal, waarin zij aanwezig zijn. We kunnen ook zeggen dat het in wezen gaat om het reduceren van het volume van de radioactieve afval. De radioactieve atomen vormen in het algemeen een uiterst geringe massafractie t.o.v. de hoofdmassa.

Wanneer men erin slaagt de radioactieve elementen uit de

hoofdmassa te verwijderen, zal men de aldus in volume gereduceerde radioactieve afval onder controleerbare omstandigheden opslaan. Uiteraard zal echter geen enkele bewerking een absolute scheiding tussen radioactief en niet-radioactief materiaal kunnen bewerkstelligen. De ten dienste staande methoden zijn nu eenmaal niet volmaakt en de middelen niet onbepaald. Dit betekent aan de ene kant dat altijd enige radioactiviteit in de natuur geloosd zal worden en aan de andere kant dat de te bereiken volume reductie steeds beperkt is.

## Ontstaan van radioactieve afval

Zonder hier al te diep op in te gaan, is het niet moeilijk een aantal algemeen bekend staande bronnen van radioactieve afval te noemen. Om te beginnen de eerste fase van de nucleaire techniek, de winning van de grondstoffen. Bij de ertsverwerkende installaties kunnen problemen ontstaan t.g.v. de verstoring van de natuurlijke verspreiding van radioactieve stoffen. Het gaat hier dan om natuurlijke radioactiviteit, zoals b.v. radium. Verwaarloosbaar weinig is dit in vergelijking met wat kunstmatig aan radioactiviteit wordt geproduceerd, bijvoorbeeld in een kernreactor. Bij de opwekking van kernenergie treedt kunstmatige radioactiviteit als hinderlijk nevenverschijnsel in zeer grote hoeveelheden op.

Enerzijds ontstaan splijtingsproducten, dat zijn elementen, ontstaan ten gevolge van de splijting van het  $^{235}\text{U}$ , waarvan de meeste radioactief zijn.

Anderzijds ontstaan activeringsproducten tengevolge van neutronenvangst in de kern van de reactor. Als belangrijke producenten van radioactieve afval zijn voorts nog te noemen bedrijven die zich bezig houden met de verwerking en toebereiding van in een cyclotron of kernreactor bestraalde, dus radioactieve, basismaterialen, teneinde deze geschikt te maken voor toepassing in de geneeskunde of in de industrie. Om begrijpelijke redenen zal een deel van de geproduceerde radioactieve isotopen in de afval terecht komen.

En zonder volledig te zijn: tenslotte leveren onderzoekingscentra, ziekenhuizen, laboratoria en universiteiten een aandeel van de radioactieve afval. Deze zijn immers o.a. de gebruikers van de hiervoor genoemde radioactieve isotopen en zullen na het gebruik de radioactieve materialen als afval moeten afvoeren.

#### Indeling in soorten radioactieve afvalstoffen

Begrijpelijkerwijs zijn we bij de behandelingen van radioactieve afval afhankelijk van verschillende factoren.

De voornaamste zijn:

1. Hoedanigheid van de hoofdmassa.
2. Hoedanigheid en vooral de hoeveelheid van het radioactieve materiaal dat die hoofdmassa besmet.
3. Omgevingsgesteldheid.

De inerte hoofdmassa kan b.v. vloeibaar, vast of gasvormig zijn. De radioactieve stoffen kunnen kortlevend, langlevend of een mengsel zijn en bovendien in zeer gevarieerde hoeveelheden voorkomen. Dit laatste verschil duiden we in het algemeen aan met laag- en hoogactief. De omgevingsgesteldheid is van belang in verband met de al of niet aanvaardbaarheid van radioactieve lozingen. Als we de gasvormige afvalproducten buiten beschouwing laten, kunnen we grofweg de volgende indeling maken:

1. Vaste hoog actieve afval.
2. Vaste laag actieve afval.
3. Vloeibare hoog actieve afval.
4. Vloeibare laag actieve afval.

Natuurlijk zijn hier allerlei nuances in mogelijk, doch het lijkt mij in dit bestek van minder belang hierop in te gaan.

#### Behandeling van radioactieve afval

Ten aanzien van de zgn. hoog actieve afvalstoffen wil ik volstaan met te zeggen dat de behandeling hiervan in het algemeen neerkomt op min of meer langdurige opslag. Verwerking hiervan is pas mogelijk, wanneer door het natuurlijk verval de grootste hoeveelheid radioactiviteit is uitgestorven. Laag actief vaste afval kan volgens twee principes behandeld worden. De eerste is volgens de richtlijn in de inleiding besproken, nl. het scheiden van de radioactieve elementen van de hoofdmassa. Wanneer u bedenkt dat deze laag actieve vaste afval voor het overgrote deel bestaat uit papier, glaswerk, plastic en metaalresten zult u inzien dat dit geen eenvoudige zaak is.

Verbranden lijkt op het eerste gezicht een aantrekkelijke oplossing daar het grootste deel van de radioactiviteit na verbranding in de as geconcentreerd is. Een vrij gecompliceerde rookgasreiniging, kostbare apparatuur en grote arbeidsintensiteit doen voorlopig de voordelen nog te niet. Ook andere scheidingsmethoden zijn tot nu toe voor vaste afval weinig succesvol.

Vast laag actief afval wordt dan ook meestal volgens een ander principe behandeld, nl. door het in volume te reduceren door middel van samenpersen en het vervolgens al of niet ingestort in b.v. beton op te slaan of, wanneer dit toelaatbaar is op een geschikte plaats in de oceaan te dumpen.

Laag actief vloeibare afval bestaat in hoofdzaak uit afvalwater. Bij vaste afval is het nagenoeg onmogelijk het gehalte aan radioactiviteit te bepalen. Bij vloeistoffen lukt dit aanmerkelijk beter, zodat we de term laag actief ook beter kunnen definiëren. We verstaan onder laag actief afvalwater water, waarin de concentratie aan radioactieve elementen kleiner is dan  $10^{-2}$  Ci/m<sup>3</sup>. Wanneer het besmettende radioactieve element b.v. radium zou zijn, betekent dit 0,01 gr. radium per m<sup>3</sup> water. Ook hier dus weer een grote hoeveelheid niet-radioactief materiaal als drager van radioactieve nucliden. Bij de behandeling van radioactief afval-

water maakt men gebruik van een aantal verschillende, eventueel in combinatie toe te passen methoden, waarvan precipitatie, ionenwisseling en destillatie de belangrijkste zijn. Bij de beoordeling van deze processen zijn in de eerste plaats twee factoren van belang, nl. de decontaminatiefactor (d.f.) en de volume reductie factor (v.r.f.).

$$d.f. = \frac{\text{oorspronkelijk aanwezige radioactiviteit}}{\text{nog aanwezige radioactiviteit na behandeling}}$$

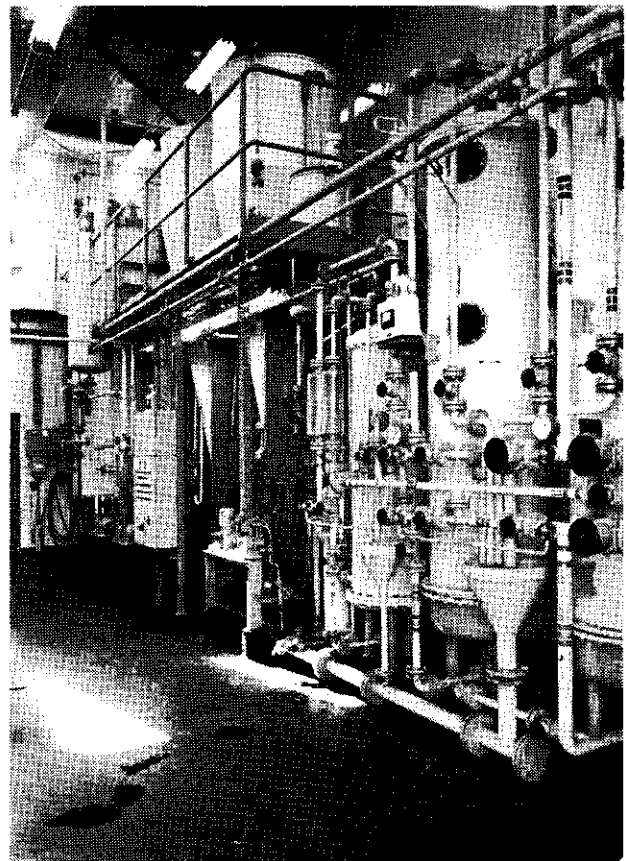
$$v.r.f. = \frac{\text{oorspronkelijk volume}}{\text{volume geconcentreerde radioactiviteit}}$$

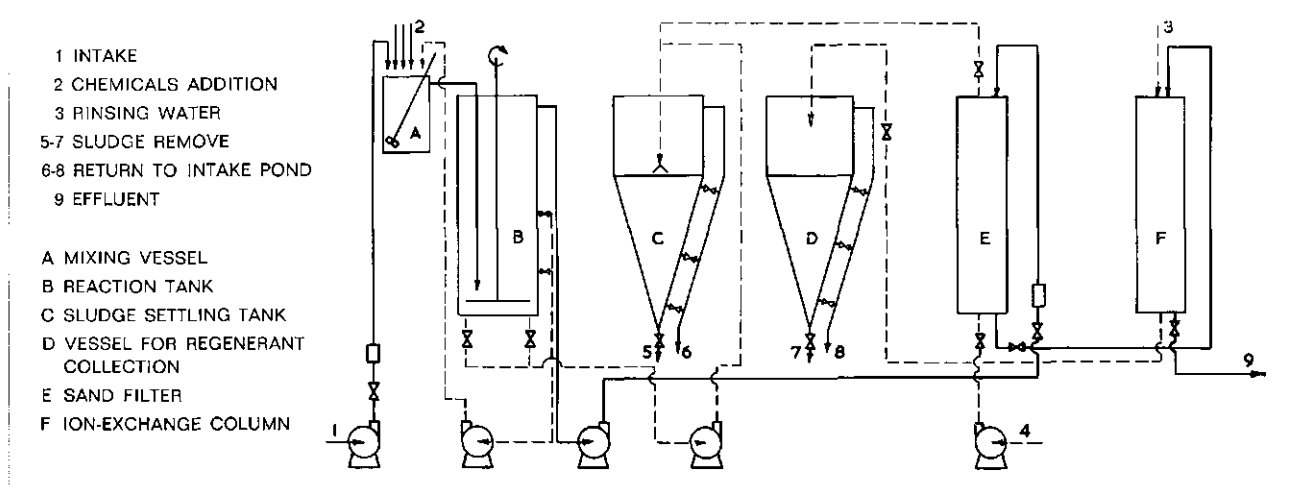
In de tweede plaats heeft natuurlijk de prijs die we voor de behandeling moeten betalen een niet te verwaarlozen invloed op de keuze van de methode. Hierdoor wordt b.v. de dure destillatie methode voor laag actief afvalwater slechts toegepast wanneer de omgevingsgesteldheid geen of slechts uiterst geringe lozing toelaat. De decontaminatie factor die men daarmee kan verkrijgen is namelijk bijzonder hoog ( $> 10^6$ ). Belangrijk goedkoper en daardoor meer toegepast is de „precipitatie methode”. Hierbij wordt in het te zuiveren afvalwater door toevoeging van chemicaliën een neerslag gevormd. Men probeert de chemicaliën hierbij zodanig te kiezen dat door de aard van het neerslag een maximale verwijdering van de radioactieve isotopen wordt bewerkstelligd.

De decontaminatie factor die bij deze methode wordt verkregen hangt in hoge mate af van de aard der radioactieve ionen, de keuze van de chemicaliën en de pH, waarbij de bewerking wordt uitgevoerd.

Bij het Reactor Centrum te Petten worden twee precipitatie methoden toegepast, terwijl met een derde wordt geëxperimenteerd. De eerste is de zgn. fosfaat precipitatie, waarbij bij een pH van 11-11,5 160 ppm PO<sub>4</sub>+++ aan het afval-

Afb. 1 - De „Duper"-waterzuiveringsinstallatie met zandfilter en ionenwisselaar op de voorgrond.





Afb. 2 - Vereenvoudigd schema van een uitvlokkings-inrichting.

water wordt toegevoegd, hetgeen met het aanwezige calcium een neerslag van  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  vormt. De hiervoor aanwezige installatie wordt weergegeven in afb. 1 en 2.

De tweede is de barium precipitatie en wordt toegepast in de gevallen dat de radioactieve elementen zich in anionvorm in het afvalwater bevinden, (b.v. regeneratie vloeistoffen van anionwisselaars van kernreactoren).

Door toevoeging van  $\text{BaCl}_2$  ontstaat bij pH 7 een neerslag van onoplosbare Ba-zouten.

De derde precipitatie methode welke bij het RCN nog in het experimentele stadium verkeert, is die met „purifloc C 31”. Dit is een door de „Dow Chemical Company” in de handel gebracht flocculatie middel. Het is een in water oplosbaar organisch polyamine met een hoog moleculair gewicht. De juiste samenstelling is ons niet bekend, doch de eerste proeven geven hoopvolle resultaten.

De decontaminatie van radioactief afvalwater d.m.v. een neerslagmethode berust op adsorptie, coprecipitatie en neerslaan door complex vorming. De decontaminatie factoren die er mee kunnen worden bereikt, zijn niet bijzonder groot en variëren afhankelijk van de condities en omstandigheden tussen 10 en 100. Indien nodig wordt daarom in Petten de precipitatie methode gecombineerd met een ionenwisselaar, waardoor de totale decontaminatie factor volgens de praktijkgegevens tussen 100 en 2000 komt te liggen.

In sommige gevallen is het nodig het gevormde neerslag dat na bezinken als een slibachtige massa wordt afgetapt, verder te concentreren.

Fosfaatslib bevat b.v. na bezinking maximaal 5 à 6 % vaste stof. De v.r.f. is dan ongeveer 50 geweest, dat wil dus zeggen dat het volume van het slib ongeveer 2 % is van het behandelde volume radioactief afvalwater. De concentratie vaste stof in het slib kan een factor 2 tot 4 verbeterd worden door het slib in te vriezen en weer te ontdooien. Het slib verandert hierdoor van structuur en staat een gedeelte van de  $\pm 95$  % water dat het bevat af. Dit water wordt dan na ontdooiing als bovenstaande vloeistof van het slib afgetapt. De volume reductie wordt hierdoor dus ook een factor 2 tot 4 vergroot. Afb. 3 geeft een beeld van de vriesinstallatie. Een voortgezette ontwatering van het neerslag behoort tot de mogelijkheden, b.v. door filtratie, centrifugeren of indampen.

#### Lozing

Zoals al is opgemerkt resulteert geen enkele bewerking in een 100 % verwijdering van radioisotopen uit afvalwater en daardoor zal altijd enige activiteit in de natuur worden ge-

loosd. Bovendien vergt het onverantwoord hoge kosten om afvalwater met een activiteitsniveau beneden een bepaalde concentratie te behandelen.

De huidige lozingsvergunning in Petten staat toe dat per etmaal niet meer dan 0,015 Curie in zee wordt geloosd, met een maximaal toelaatbare concentratie van  $2 \cdot 10^{-4}$  Ci/m<sup>3</sup>. De lozingsleiding die hiertoe speciaal is vervaardigd, mondt 4 km uit de kust in zee uit. De lozing gaat gepaard met een grondig en gedetailleerd onderzoek over de eventuele biologische gevolgen van lozing van zwak radioactief afvalwater in zee. Tot nu toe is geen enkel effect geconstateerd.

Afb. 3 - Vriesmachine voor het ontwateren van slib uit de waterzuiveringsinstallatie.

