

Экспериментальное изучение скоростей выщелачивания элементов (Na, K, Al, Si) из каркасных алюмосиликатов

А. Р. Котельников, Г. М. Ахмеджанова, В. А. Суворова
 Институт экспериментальной минералогии РАН, Черноголовка
kotelnik@iem.ac.ru; факс: 8 (496) 524 4425, тел.: 8 (496) 524 4425

Ключевые слова: радиоактивные отходы, минеральные матрицы, скорости выщелачивания, скорости экзогенных процессов.

Ссылка: Котельников, А. Р., Г. М. Ахмеджанова, В. А. Суворова (2011), Экспериментальное изучение скоростей выщелачивания элементов (Na, K, Al, Si) из каркасных алюмосиликатов, *Вестник ОНЗ РАН*, 3, NZ6051, doi:10.2205/2011NZ000181.

На сегодняшний день для дальнейшего развития ядерной энергетики проблема обезвреживания высокоактивных отходов является ключевой. При этом существующие методы иммобилизации радиоактивных отходов в матричные материалы далеки от оптимальных. Современные концепции Международного агентства по атомной энергии предполагают длительное хранение компонентов радиоактивных отходов в отвержденных формах в стабильных геологических формациях земной коры. При размещении матричных материалов в породах земной коры нельзя игнорировать влияние внешней среды на устойчивость матриц. Таким образом, необходимо исследовать устойчивость минеральных матричных материалов в системе матрица – раствор – вмещающая порода. Кроме того, знание скоростей выщелачивания различных минералов горной породы может дать информацию об интенсивности экзогенных процессов и времени пребывания породы в данных условиях.

В настоящей работе проведено исследование скоростей выщелачивания Na, K, Al, Si из каркасных алюмосиликатов: щелочного полевого шпата, нефелина и содалита при 90°C и при 20°C.

Методика испытания образцов на выщелачиваемость при 90°C основана на тесте МСС-1 МАГАТЭ. Для испытания использовались образцы размером 4-5×10×10 мм. Грани образцов шлифовались на тонкой наждачной бумаге, затем полировались на алмазной пасте (20 мкм). После полировки, очистки и просушивания образцы взвешивались на аналитических весах и измерялись их геометрические размеры. Геометрическая площадь поверхности образцов составляла до 10 см², масса – до 4 г. опыты по выщелачиванию проводились в автоклавах из фторпласта объемом 80 мл. Герметично закрытые автоклавы помещались в термостат таким образом, чтобы уровень воды в термостате всегда был выше уровня воды в автоклавах. Температура воды в термостате поддерживалась автоматически в пределах 90±1°C. Для каждого образца проводилась серия опытов длительностью 1, 7, 14 и дважды по 28 суток. Эксперименты при 20°C проводились по аналогичной методике, однако выдержка в режиме опыта достигала уже 520 суток.

После окончания каждого опыта автоклав извлекался из термостата, раствор отбирался на анализ, автоклав и образец тщательно промывались тридистиллированной водой, заливались новой порцией воды и начинался следующий опыт. Растворы, отобранные на анализ, подкислялись соляной кислотой и анализировались методами ААС и ICP.

Скорость выщелачивания для каждого элемента, содержащегося в образце определяли по формуле:

$$V_i = (I)_i \cdot W / [(c)_i \cdot \tau \cdot s] \text{ [г/(м}^2\text{·сут)]},$$

где $(I)_i$ – количество i -ого элемента в растворе, $(c)_i$ – количество i -ого элемента в образце (в тех же единицах, что и в растворе), W – масса образца (граммы), τ – суммарная длительность опыта (сутки), s – геометрическая площадь поверхности образца (м²). Результаты испытаний приводятся на графиках в координатах $\lg(V_i) - \tau$ (сутки).

В результате проведенных исследований показано, что при всех параметрах тестирования устойчивость минералов к выщелачиванию увеличивается в ряду: содалит → нефелин → полевого шпата. Показан сложный характер взаимодействия минералов с водой: для полевого шпата выщелачивание сначала идет инконгруэнтно, скорости выноса Na, K выше скоростей выноса Al, Si. Однако через некоторое время выщелачивание становится близким к конгруэнтному (рис. 1). В результате исследования показано, что по устойчивости к выщелачиванию матричные материалы на

основе каркасных алюмосиликатов превосходят боросиликатные стекла и близки к полиминеральным матрицам Синрок (рис. 2).

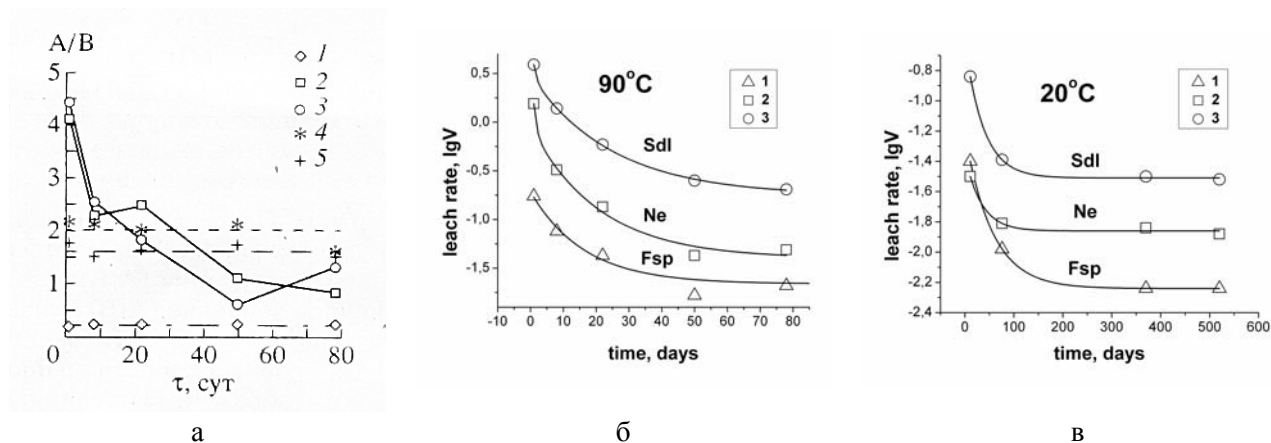


Рис. 1 (а). Кинетические зависимости соотношений выщелачиваемых элементов в растворе (A/B), где А – сумма щелочных и щелочноземельных элементов; В – (Si+Al); для минералов: ортоклаза (1), лабрадора (2), скаполита (3), нефелина (4), содалита (5). (Результаты тестирования по методике МСС-1 при 90°C)

Рис. 1 (б, в). Кинетические зависимости скоростей выщелачивания элементов из природных минералов: 1 – полевого шпата, 2 – нефелина, 3 – содалита. Показаны результаты тестирования по методике МСС-1 при 90°C (б) и при 20°C (в) в водной среде

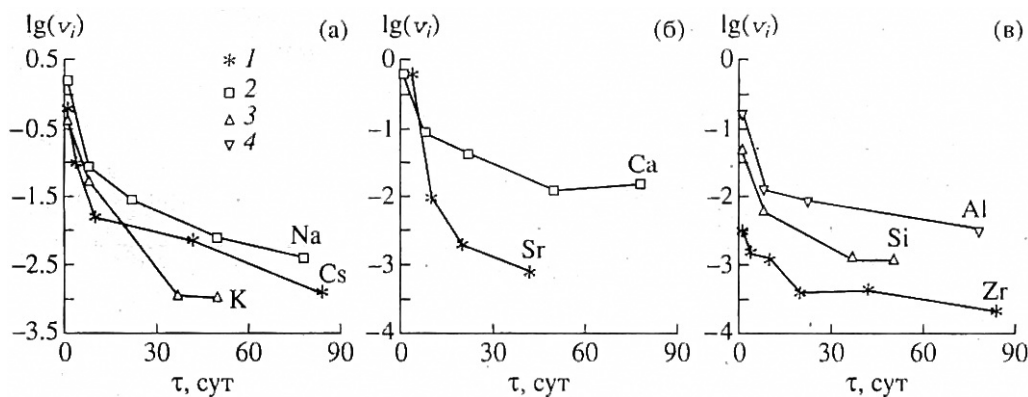


Рис. 2 (а, б, в). Кинетические зависимости скоростей выщелачивания элементов из синтетических матричных материалов и природных минералов. Условные обозначения: 1 – Синрок-С, 2 – лабрадор, 3 – санидин, 4 – ортоклаз

На основе различий в скоростях выщелачивания для различных минералов выведены уравнения для оценки времени пребывания образца в водной среде (для 20°C) (табл. 1).

Таблица 1. Уравнения для оценки времени пребывания образца в водной среде (для 20°C)

Минеральная пара	Уравнение
Полевой шпат - нефелин	$T (\text{лет}) = 952.4 \cdot h_{\text{leach}}^1$
Нефелин - содалит	$T (\text{лет}) = 344.8 \cdot h_{\text{leach}}$
Полевой шпат - содалит	$T (\text{лет}) = 253.2 \cdot h_{\text{leach}}$

¹⁾ h_{leach} – глубина выщелачивания одного минерала, относительно другого (мм)

КОТЕЛЬНИКОВ И ДР.: ВЫЩЕЛАЧИВАНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ ИЗ АЛЮМОСИЛИКАТОВ

На основе рассчитанных уравнений были оценены скорости выщелачивания минералов для образцов нефелиновых сиенитов (рис. 3), отобранных из береговой зоны оз. Сейдозеро (Мурманская область). Усредненные значения h_{leach} (для пары полевого шпата – нефелин) составляют 5 ± 2 мм, что дает минимальные значения возраста (длительности выщелачивания в водной среде) этих образцов около 5000 лет.



Рис. 3. Нефелиновый сиенит из береговой зоны оз. Сейдозеро. На выщелоченной поверхности хорошо видны кристаллы полевого шпата и реликты зерен нефелина