

ХРАНЕНИЕ ОТРАБОТАВШИХ ИОНООБМЕННЫХ СМОЛ НИЗКОГО И СРЕДНЕГО УРОВНЯ УДЕЛЬНОЙ АКТИВНОСТИ В КОНТЕЙНЕРАХ ТИПА НЗК БЕЗ ВКЛЮЧЕНИЯ В МАТРИЦУ

Сорокин В.Т., д.т.н., Демин А.В., Прохоров Н.А., к.т.н., Великина С.А
(ОАО «Головной институт «ВНИПИЭТ»), Гатауллин Р.М., д.т.н.,
Меделяев И.А., к.т.н. (ОАО «345 механический завод»),
Перегудов Н.Н. (ТФ ОАО «Концерн Энергоатом»),
Шарафутдинов Р.Б., к.т.н. (НТЦ ЯРБ)

В связи с возрастающими объемами накопленных отработавших ионообменных смол (ОИОС) на предприятиях атомной промышленности проблема их кондиционирования весьма актуальна. В настоящее время ОИОС не подвергаются какой-либо переработке и в виде пульпы собираются на хранение в металлические емкости – хранилища жидких радиоактивных отходов (РАО). Суммарный объем пульпы ОИОС (вместе с перлитом), накопленных на российских АЭС, составляет около 30 тыс. м³, а заполнение имеющихся емкостей – от 25 до 56 % на Нововоронежской АЭС и от 70 до 100 % – на Смоленской АЭС. Средняя удельная активность ОИОС – $10^7 - 10^9$ Бк/м³.

Согласно требованиям федеральных норм и правил (ФНП) в области использования атомной энергии, ОИОС должны быть переработаны и кондиционированы, а кондиционированные ОИОС должны безопасно храниться и захораниваться [1].

Цель переработки пульпы ОИОС – сокращение их исходного объема, а также перевод в устойчивую форму, исключающую переход радионуклидов в окружающую среду в условиях долговременного хранения. До настоящего времени в качестве основного метода переработки пульпы ОИОС рассматривалось их включение в матричный материал. Включение смол в неорганические и органические матрицы позволяет получить отвержденный продукт с низкой выщелачиваемостью радионуклидов и меньшей мощностью дозы излучения за счет самопоглощения в матрице. Наилучшие результаты были получены при использовании в качестве органического связующего – альтина и в качестве неорганического – глиноземистого цемента с предварительной термической обработкой ОИОС.

Однако в Российской Федерации до сих пор метод включения ОИОС в матрицу не нашел широкого промышленного применения. Только сейчас создается установка цементирования на Ленинградской АЭС для переработки фильтрующих материалов, накопленных за более чем 30-летнюю эксплуатацию энергоблоков. Цементирование включено также в проекты АЭС-2006, причем промежуточное длительное хранение жидких радиоактивных отходов как на действующих АЭС не предусматривается. ОИОС, а также кубовый остаток выпарной установки будут сразу же направляться на отверждение.

При всех несомненных достоинствах цементирования как способа кондиционирования ОИОС имеется один, но весьма существенный недостаток: объем кондиционированного продукта в несколько раз больше, чем объем пульпы. Максимально достигнутая степень включения ионита в цемент не превышает 25 % массы. Поэтому весьма актуальна разработка новых методов кондиционирования ионитов, обеспечивающих сокращение объема хранимых РАО. Наиболее перспективны для этих целей широко используемые в атомной промышленности невозвратные защитные железобетонные контейнеры НЗК-150-1,5П [2, 3, 4]. Авторами было предложено применять для хранения и захоронения ОИОС ее упаковку без отверждения в невозвратные защитные железобетонные контейнеры НЗК-150-1,5П. Проведенные расчеты показали возможность и безопасность использования контейнеров для этой цели.

Подготовка ОИОС к хранению/захоронению сводится только к ее обезвоживанию до необходимого уровня. Согласно требованиям нормативных документов, содержание свободной жидкости в объеме кондиционированного продукта, отправляемого на хранение, не должно превышать 3 %. Обезвоживание может производиться различными способами, в частности центрифугированием или термообработкой в сушильных шкафах. До настоящего времени и тот и другой способ обезвоживания рассматривались только как этап подготовки к цементированию ионитов, хотя на практике пока не применялись. Только в уже упомянутой установке цементирования, создаваемой на Ленинградской АЭС, использована центрифуга для предварительного обезвоживания накопленных в емкостях фильтрующих материалов (смесь ионитов и перлита).

Термообработка отработавших ионитов как способ их обезвоживания, на наш взгляд, малоперспективна, так как имеет ряд недостатков: длительность и низкая производительность процесса, а также необходимость удаления и очистки газов, образующихся при термической деструкции ионообменной смолы (ИОС).

Наиболее приемлемый и достаточный способ обезвоживания ИОС – центрифугирование. В лабораторной практике метод центрифугирования является одним из основных для определения

коэффициента влагоемкости ионитов, поскольку при центрифугировании ионита удаляется как межзерновая вода, так и основная часть внутризерновой воды.

Испытания по разделению пульпы ИОС, проведенные на промышленной осадительно-шнековой центрифуге с фактором разделения 3500 (максимально достижимая степень разделения жидкой и твердой фаз), показали, что эффективность разделения ионит-вода составляет не менее 99 %, а остаточная влажность получаемого осадка ионитов – 40 – 60 %. Это практически соответствует смоле в состоянии поставки – 40–50 % (влажность ионита как товарного продукта) и в несколько раз меньше, чем для ионитов в состоянии предельного набухания (коэффициент влагоемкости смолы в состоянии предельного набухания составляет около 1,9 г воды на 1 г сухой смолы).

Указанное значение остаточной влажности ионита, определяемое сушкой до постоянного веса, обусловлено сорбированной, то есть химически связанной водой. Выход сорбированной жидкости из смолы возможен только при дополнительном воздействии, которое приводит к деструкции полимерной матрицы, например, при высоких температурах или радиационных полях.

После центрифугирования свободная влага в обработанном ионите практически отсутствует. Визуально осадок выглядит сухим и ионит в виде отдельных зерен высыпается из центрифуги. Таким образом, обезвоживание ИОС методом центрифугирования фактически превращает ее в твердые РАО, которые могут храниться в упаковке без дополнительного отверждения. В таком виде обезвоженные смолы в составе контейнера НЗК-150-1,5ГП отвечают требованиям нормативных документов к упаковкам, пригодным для транспортирования, хранения и захоронения.

При решении вопроса о пригодности использования контейнера типа НЗК-150-1,5ГП для хранения/захоронения обезвоженных смол рассматривались процессы, которые могут протекать при длительном хранении ИОС с учетом их радиоактивного загрязнения, а именно:

- деструкция ИОС под воздействием ионизирующего излучения (накопленная смолой активность) с выходом продуктов деструкции в объем контейнера;
- газообразование вследствие деструкции ИОС в процессе хранения под воздействием ионизирующего излучения;
- коррозия бетона под воздействием продуктов деструкции ИОС;
- диффузия радионуклидов через стенки бетонного контейнера.

Результаты проведенных исследований и расчетов показали, что даже через 300 лет хранения для наиболее загрязненной ИОС из числа хранимых сейчас на АЭС ($3,2 \cdot 10^8$ Бк/дм³, что соответствует отходам средней активности) выход продуктов деструкции, в том числе в газовой форме, не является критичным.

Поглощенная смолой доза для этого случая составит через 300 лет хранения около $3,7 \cdot 10^5$ Гр (37 Мрад). При такой поглощенной дозе суммарный расчетный выход продуктов деструкции (хлориды, сульфаты, метиламин) составит не более 3 % от объема контейнера. Накопление за тот же период продуктов деструкции в газовой фазе может привести к возрастанию давления в контейнере не более, чем на 0,01 МПа (0,1 атм).

Обезвоженные ОИОС будут находиться в контейнере в солевой форме с относительно невысоким солесодержанием по сравнению, например, с солевым плавом, получаемым в результате глубокого упаривания кубовых остатков жидких РАО. Накопление продуктов деструкции смол даже за 300 лет хранения ничтожно мало.

При таких условиях смола и продукты ее деструкции не могут оказать заметного коррозионного воздействия на стенки контейнера. Для того, чтобы полностью предотвратить возможность протекания коррозионных процессов необходимо выполнить покрытие внутренних стенок контейнера защитным материалом или использовать вставку, например из металла или полиэтилена высокого давления.

При организации кондиционирования ИОС в контейнерах типа НЗК следует также учитывать радиационную безопасность контейнера с ИОС при осуществлении работ по его транспортированию и установке на долговременное хранение/захоронение.

Для расчета распределения мощности эффективной дозы фотонного излучения нами использовалась программа MCNP (Monte Carlo N-Particle Transport Code System, CCC-660, 1997 г.). Результаты показали, что при удельной активности ОИОС до 10^{10} Бк/м³ и размещении в НЗК-150-1,5ГП выполняются требования радиационной безопасности транспортных норм НП-053-04, т.е. мощность дозы на внешней поверхности контейнера не превышает 2 мЗв/ч, а на расстоянии 1 м от его поверхности – 100 мкЗв/ч.

Для анализа процессов делокализации радионуклидов из контейнера, заполненного обезвоженными ИОС, использовалась математическая модель, основанная на численном решении нестационарного одномерного уравнения диффузии для неоднородных сред:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{\text{эфф}} \frac{\partial C}{\partial x} \right) - \lambda C,$$

Статьи

где $C(x, t)$ – концентрация радионуклида в поровой влаге, Бк/м³;

t – время, год;

x – координата, м; ось X перпендикулярна стенке контейнера; начало координат соответствует внутренней поверхности стенки;

$D_{\text{эфф}}(x)$ – эффективный коэффициент диффузии, м²/год;

λ – постоянная распада радионуклида, 1/год.

Исследование диффузионной проницаемости показало, что для обезвоженной ИОС радионуклиды не выйдут за пределы стенок контейнера в течение 300 и более лет. На рис.1 представлены результаты расчета диффузии ¹³⁷Cs в бетоне стенки контейнера НЗК-150-1,5П.

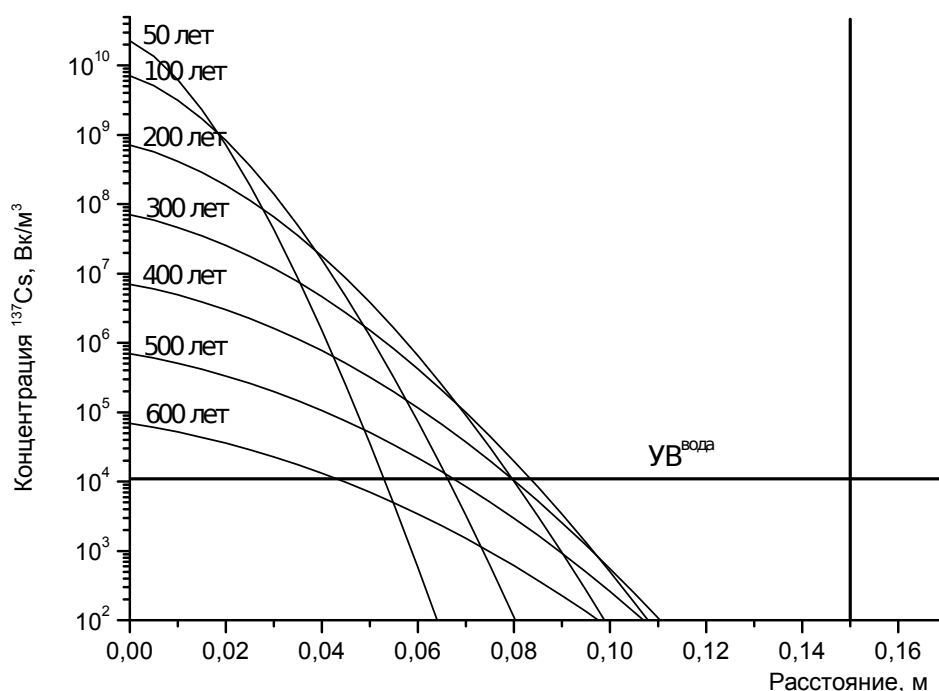


Рис. 1. Концентрация ¹³⁷Cs в поровой влаге в стенке контейнера, заполненного воздушно-сухими ОИОС

кондиционирования обезвоженных ОИОС без включения в защитную матрицу. Загрузка обезвоженных смол в контейнер может осуществляться как засыпкой, так и в металлической емкости, заполняемой на установке обезвоживания. При использовании металлической емкости в качестве первичной упаковки для обезвоженной смолы и при ее размещении в контейнер НЗК-150-1,5П мощность дозы от контейнера уменьшится примерно на 30 %.

В настоящее время контейнер НЗК-150-1,5П для хранения ИОС разработан, изготовлен и сертифицирован в системе сертификации ОИТ (оборудование, изделия, технологии, подлежащие обязательной сертификации) для атомной энергии. Сертификат № РОСС RU.0001. 01 АЭ00.50.10.0503.

Применение новой технологии кондиционирования ОИОС низкого и среднего уровней удельной активности позволит значительно сократить объемы хранимых и захораниваемых РАО.

Литература

1. Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности НП-019-2000. Госатомнадзор России, 2000 г.
2. Упаковочный и транспортировочный контейнер с крышкой для радиоактивных и иных отходов. Патент на промышленный образец № 52470/РМ. Гатауллин, А.А. Резник, В.Т. Сорокин, Н.В. Свиридов, И.М. Теложер. Зарегистрирован в Государственном Реестре промышленных образцов РФ 16 мая 2003 г.
3. Железобетонный контейнер для транспортирования и/или длительного хранения радиоактивных и токсичных отходов различных производств/ Патент на полезную модель № 3020/ РМ. Гатауллин, Н.В. Свиридов, В.Т. Сорокин, И.М. Теложер, А.А. Резник, Н.Н. Перегудов. Зарегистрирован в Государственном Реестре полезных моделей РФ 20 июня 2003 г.
4. Гатауллин Р.М., Медеяев И.А., Шарафутдинов Р.Б. Использование перспективных технологий для решения проблем безопасного обращения с радиоактивными отходами. Ядерная и радиационная безопасность, № 4(50), 2008.