

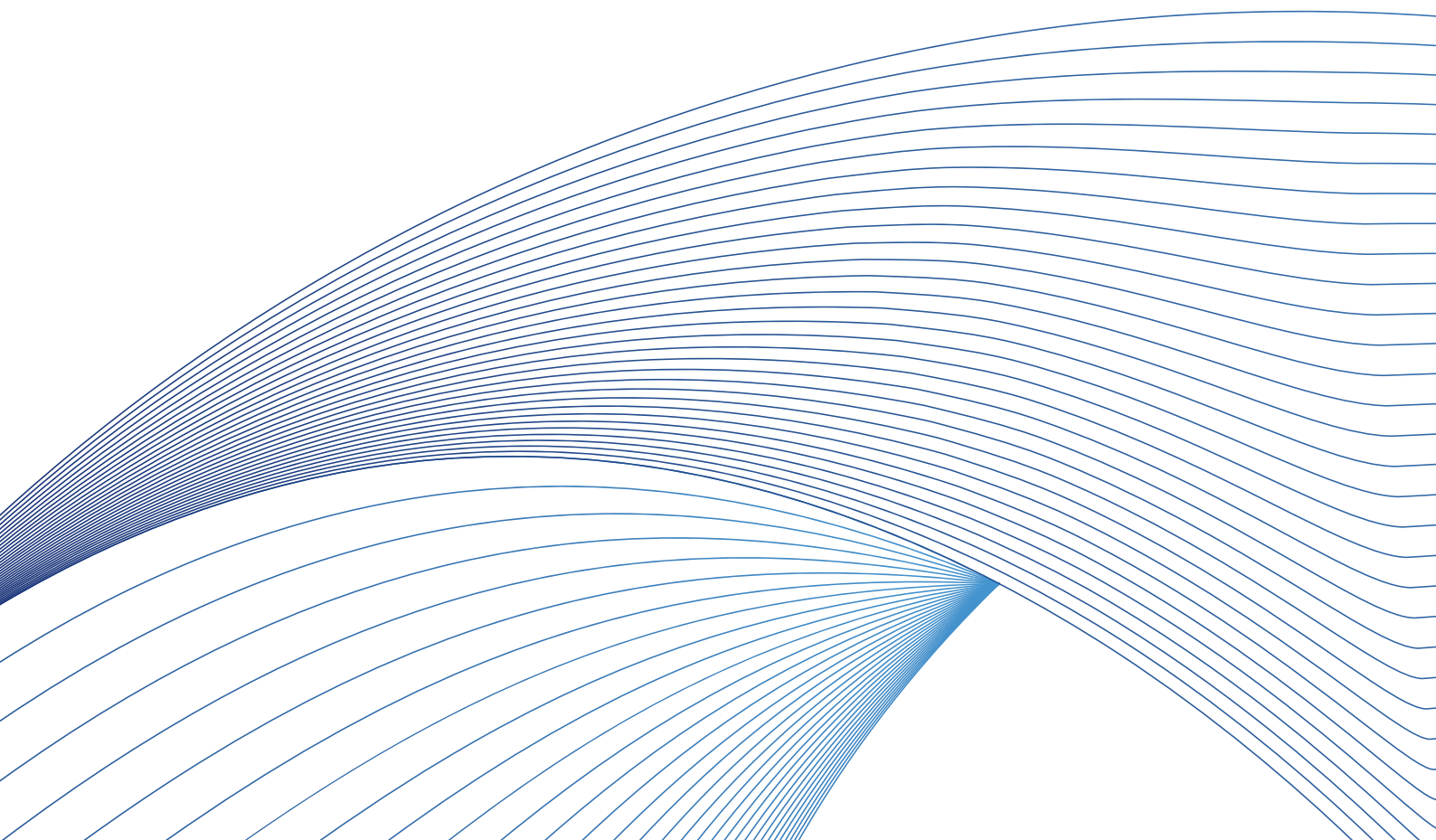


РАДОН
РОСАТОМ

Труды третьей международной
научно-практической конференции

**«ОХРАНА ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ
И ОБРАЩЕНИЕ
С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ
НАУЧНО-ПРОМЫШЛЕННЫХ
ЦЕНТРОВ»**

г. Сергиев Посад, 2021



Охрана окружающей среды и обращение с радиоактивными отходами научно-промышленных центров: Труды Третьей научно-практической конференции, 22-23 сентября 2021 г. /
Под общей редакцией профессора Е.А. Ваниной; 2021 — 80 с: ил. 26, табл. 13.

Рецензенты:

Баринов А.С., кандидат технических наук
Воронов С.И., доктор биологических наук, профессор

В сборнике трудов представлены основные результаты третьей международной научно-практической конференции ФГУП «РАДОН» в области разработки и совершенствования способов переработки твердых и жидких радиоактивных отходов, реабилитации территорий, хранения радиоактивных отходов, обеспечения безопасности хранилищ радиоактивных отходов, радиологического мониторинга и контроля, вывода из эксплуатации. Сборник предназначен для специалистов в области обращения с радиоактивными отходами и охраны окружающей среды.

Редакционная коллегия:

Ванина Е.А., д-р физ.-мат. наук, профессор, ученый секретарь ФГУП «РАДОН»
Савкин А.Е., канд. техн. наук, эксперт ФГУП «РАДОН»
Чудесников Д.О., канд. физ.-мат. наук, советник ФГУП «РАДОН»
Павлова Г.Ю., канд. техн. наук, руководитель проекта ФГУП «РАДОН»
Князев И.А., канд. техн. наук, руководитель проекта ФГУП «РАДОН»
Полканов М.А., руководитель проекта ФГУП «РАДОН»

Содержание

СЕКЦИЯ I

Твёрдые и жидкие радиоактивные отходы

Мамонов А.В., Давыдов В.В., Мамонова Ю.А., Разживин С.Г., Любченко М.Л., Гордеев В.П.

Опытное извлечение твёрдых среднеактивных отходов из отсека хранилища средне и высокоактивных твёрдых радиоактивных отходов АО «ГНЦ НИИАР» 6

Коренькова О.Б., Радкевич А.В., Вороник Н.И.

Изучение влияния борной кислоты на формы нахождения радионуклида ^{106}Ru в водных растворах 10

Леончик А.И., Савчин В.В., Хведчин И.В., Кадыров И.И., Полканов М.А.

Моделирование плазменной шахтной печи установки «Плутон» 15

СЕКЦИЯ II

Хранение и захоронение радиоактивных отходов

Авдонин В.В., Ахремочкина О.А., Колесник В.В., Мамонов А.В., Разживин С.Г., Серебряков В.В.

Обследование хранилища среднеактивных твёрдых радиоактивных отходов (сооружение 140) в целях отнесения размещённых РАО к особым или удаляемым 22

Тюпина Е.А., Крупская В.В., Закусин С.В., Роцин М.О., Ильина О.А., Вознесенский Е.А.

Сравнительная характеристика изоляционных свойств природных глинистых материалов как компонента инженерных барьеров безопасности при захоронении/хранении РАО 28

Ильина О.А., Уткин С.С., Крупская В.В., Тюпина Е.А., Винокуров С.Е., Калмыков С.Н., Романчук А.Ю.

Актуальные задачи обоснования выбора барьерных глинистых материалов для объектов хранения и консервации радиоактивных отходов 32

Матвеевко А.В., Варлаков А.П., Жеребцов А.А., Германов А.В., Петров В.Г.

Керамические матрицы для иммобилизации отходов пирохимической переработки ОЯТ 37

Родионова А.А., Петров В.Г., Власова И.Э.

Сорбция и пространственное распределение радионуклидов на минералах трещиноватых пород Нижнеканского гранитоидного массива 41

Маковская Н.А., Баклай А.А., Леонтьева Т.Г., Кузьмук Д.А.

Оценка возможности использования глинистых материалов для захоронения радиоактивных отходов 3 и 4-го классов опасности Белорусской АЭС 45

СЕКЦИЯ III

Радиоэкологический мониторинг и радиационный контроль

Магомедбеков Э.П., Растунова И.Л.

Проблемы детритизации низкоактивных водных радиоактивных отходов 48

Магомедбеков Э.П., Меркушкин А.О., Обручиков А.В.

Улавливание инертных радиоактивных газов и продуктов их распада в статических и динамических условиях высокопористыми материалами 53

Самосудова А.В., Иванов К.А., Кокорев О.Н.

Концепция безопасной эксплуатации пункта приповерхностного захоронения твёрдых радиоактивных отходов III и IV классов филиала «Северский» ФГУП «НО РАО» 58

Рожкова А.К., Сибирцев А.М., Кузьменкова Н.В., Петров В.Г.

Метод совместного выделения актинидов и Тс из водных растворов для целей радиологического мониторинга..... 61

Растунова И.Л., Чеботов А.Ю.

Новые мембранные контактные устройства для детритизации водных тритийсодержащих отходов 64

СЕКЦИЯ IV

Вывод из эксплуатации объектов ЯРОО

Бочкарев В.В., Бриллиантов Б.Д., Климанов С.Г., Крянев А.В.

Обоснование оптимальных технических и организационных решений при выводе из эксплуатации ОИАЭ с учетом обеспечения ЯРБ 69

СЕКЦИЯ V

Организация профессиональной подготовки кадров в области ВЭ ЯРОО и обращения с РАО

Нечаев А.Ф., Акатов А.А.

О подготовке специалистов в области ВЭ ЯРОО в Санкт-Петербургском технологическом институте 74

Петров В.Г., Путятин А.В.

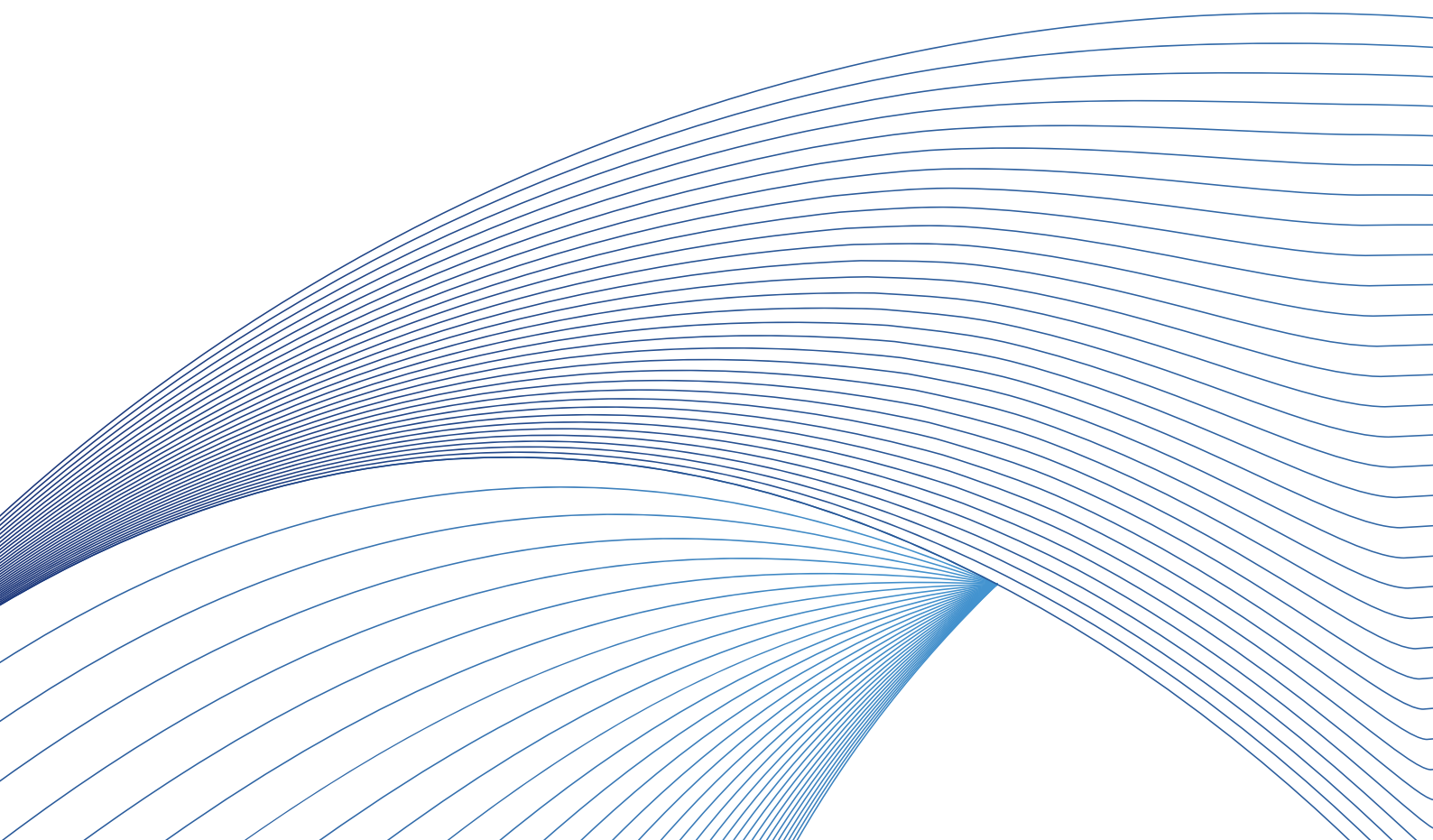
Программы подготовки кадров в области управления проектами вывода из эксплуатации ЯРОО 79

Ильин В.А., Ракитская Т.Г., Комаров Е.А.

Перспективы проекта МАГАТЭ «Глобальный статус вывода из эксплуатации» 81

СЕКЦИЯ I

Твёрдые и жидкие
радиоактивные отходы



Опытное извлечение твёрдых среднеактивных отходов из отсека хранилища средне и высокоактивных твёрдых радиоактивных отходов АО «ГНЦ НИИАР»

Мамонов А.В., Давыдов В.В., Мамонова Ю.А., Разживин С.Г., Любченко М.Л., Гордеев В.П.

АО «ГНЦ НИИАР», г. Дмитровград

e-mail: wmd-dvv@pub.niiar.ru

Аннотация. *В настоящей статье приведено краткое описание выполненных работ по опытному извлечению твёрдых среднеактивных отходов из отсека хранилища средне и высокоактивных твёрдых радиоактивных отходов, представлены характеристики извлечённых радиоактивных отходов и показатели радиационного контроля.*

Ключевые слова: твёрдые радиоактивные отходы, опытное извлечение, упаковка, радионуклидный состав, мощность дозы гамма-излучения, объёмная активность.

Experimental extraction of medium-level solid waste from the storage compartment of medium-and high-level solid radioactive waste of JSC «SSC NIIAR»

Mamonov A.V., Davydov V.V., Mamonova Y.A., Razzhivin S.G., Lyubchenko M.L., Gordeev V.P.

JSC «SSC NIIAR», c. Dimitrovgrad

e-mail: wmd-dvv@pub.niiar.ru

Abstract. *This article provides a brief description of the work performed on the experimental extraction of medium-level solid waste from the storage compartment of medium-and high-level solid radioactive waste, presents the characteristics of the extracted radioactive waste and radiation control indicators.*

Keywords: solid radioactive waste, experimental extraction, packaging, radionuclide composition, gamma radiation dose rate, volume activity.

Введение

В процессе научно-производственной деятельности подразделений АО «ГНЦ НИИАР» наряду с другими видами РАО происходит образование твердых высокоактивных отходов (ВТРО). Результаты оценки накопления таких отходов показали, что при сохранении темпов образования ВТРО в подразделениях института свободные объемы хранилища средне и высокоактивных твердых радиоактивных отходов (далее – хранилища ВТРО), предназначенного для их размещения, могут быть заполнены к 2025-2026 году.

Хранилище ВТРО АО «ГНЦ НИИАР» принято в эксплуатацию в 1986 году. С 2006 года в свободные отсеки хранилища начат приём твердых среднеактивных отходов (далее СТРО). Необходимость размещения СТРО в хранилище ВТРО была обусловлена заполнением объемов хранилища ТРО, предназначенного для размещения среднеактивных отходов.

В результате реконструкции и модернизации технологического парка подразделений института за период 2006 – 2020 гг. большая часть объема хранилища ВТРО была заполнена среднеактивными отходами.

В целях обеспечения безопасного обращения с ТРО, образующимися в АО «ГНЦ НИИАР», в полном соответствии с требованиями современных норм и правил, в рамках ФЦП ЯРБ 2008-2015 по проекту «Реконструкция и обеспечение безопасности хранилищ твердых радиоактивных отходов ФГУП «ГНЦ РФ НИИАР» был построен «Пункт контейнерного хранения (ПКХ) твердых низко и среднеактивных отходов» представляющий собой хранилище ТРО, предусматривающее технологические участки сортировки, переработки, кондиционирования и паспортизации.

Полезный объем ПКХ ТРО – около 3000 м³, срок эксплуатации – 30 лет.

Однако вопрос перспективы дальнейшего размещения ежегодно образуемых ВТРО оставался открытым.

Для обеспечения научно-производственной деятельности подразделений АО «ГНЦ НИИАР», связанной с образованием ВТРО было принято решение в течение 3-5 лет освободить от СТРО крупногабаритный отсек хранилища ВТРО для размещения в нем высокоактивных отходов.

При рассмотрении возможных схем извлечения РАО, был выбран вариант выполнения работ собственными силами, исключающий создание трудоёмких и затратных производственно-технологических цепочек, при этом обеспечивающий необходимые требования безопасности.

Для реализации технологических решений извлечения РАО было выполнено следующее:

- выбран отсек для извлечения СТРО;
- обоснована выбранная технология обращения с извлекаемыми ТРО;
- разработана регламентирующая и технологическая документация;
- приобретено необходимое оборудование;
- подготовлен участок работ;
- подготовлен и обучен персонал;
- внесены изменения в условия действия лицензии (УДЛ) на обращение с РАО в АО «ГНЦ НИИАР».

По результатам радиационного обследования и анализа характеристик СТРО, поступивших на хранение в хранилище ВТРО, был выбран отсек с наименьшими показателями по мощности эквивалентной дозы на расстоянии 1 м от ТРО, содержащий отходы, относящиеся к федеральной собственности (размещение производилось до момента вступления в силу Федерального закона «Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в другие законодательные акты Российской Федерации» от 11.07.2011 № 190-ФЗ).

Радионуклидный состав СТРО представлен альфа и бета излучающими радионуклидами. Морфологический состав отходов в отсеке хранилища разнообразный: ветошь, бумага, плёнка, средства индивидуальной защиты, стекло, металлическая стружка, резина, демонтированное оборудование (теплообменники, насосы, приборы, фильтры типа Д-23). Большая часть РАО в отсеке находится в первичной упаковке (полиэтиленовые или – крафт-мешки).

В рамках утвержденной программы работ извлечение СТРО проводилось в следующей последовательности:

- организация защитного ограждения участка работ и саншлюза с необходимым приборным оборудованием и средствами индивидуальной защиты (СИЗ) для обеспечения радиационного контроля и защиты персонала на участке производства работ;

- подготовка необходимого количества контейнеров, изготовление поддона из нержавеющей стали для размещения извлекаемых упаковок с РАО;
- захват с помощью грейфера упаковок с РАО в отсеке, перемещение в верхнюю часть отсека для предварительного замера радиационных параметров СТРО, перемещение отходов на участок контроля с соблюдением временных ограничений проведения работ в зависимости от фактических значений параметров радиационной обстановки;
- обследование упаковок для выявления альфа-активных ТРО и упаковок с максимальными значениями мощности дозы гамма-излучения;
- сортировка упаковок с РАО по уровню мощности дозы гамма излучения на расстоянии 0,1 м от поверхности РАО для разделения их по категориям на низко и средне активные ТРО;
- загрузка ТРО в контейнеры;
- герметизация, дезактивация контейнеров и их транспортирование на пункт контейнерного хранения твердых низко и среднеактивных отходов.

Общая схема опытного извлечения РАО из отсека здания 143 представлена на рисунке 1.

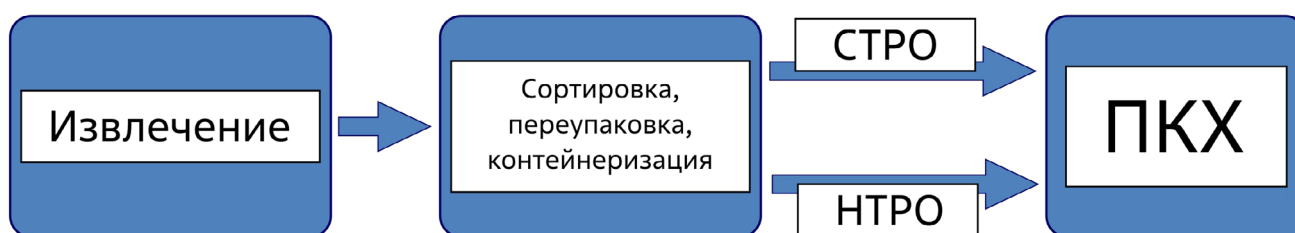


Рис. 1 – Схема обращения с РАО при опытном извлечении РАО из отсека здания 143

Извлечённые из отсека твёрдые низкоактивные отходы (НТРО) размещались в контейнер КМЗ-М, среднеактивные (СТРО) размещались в контейнер НЗК-150-1,5П. При выполнении сортировки вскрытие упаковок с СТРО не предполагалось.

В процессе извлечения СТРО из отсека проводился непрерывный контроль объёмной активности аэрозолей с помощью автоматизированных установок УДА-1АБ. Доступ персонала на участок выгрузки осуществлялся при значениях объёмной активности аэрозолей, не превышающих установленный контрольный уровень для помещений временного пребывания. Перед загрузкой упаковок в контейнеры предварительно измерялся уровень радиоактивного загрязнения их поверхности альфа-излучающими радионуклидами. Особое внимание уделялось поврежденным первичным упаковкам. Такие упаковки, помещали во вторичную упаковку (пленка ПВХ, мешок).

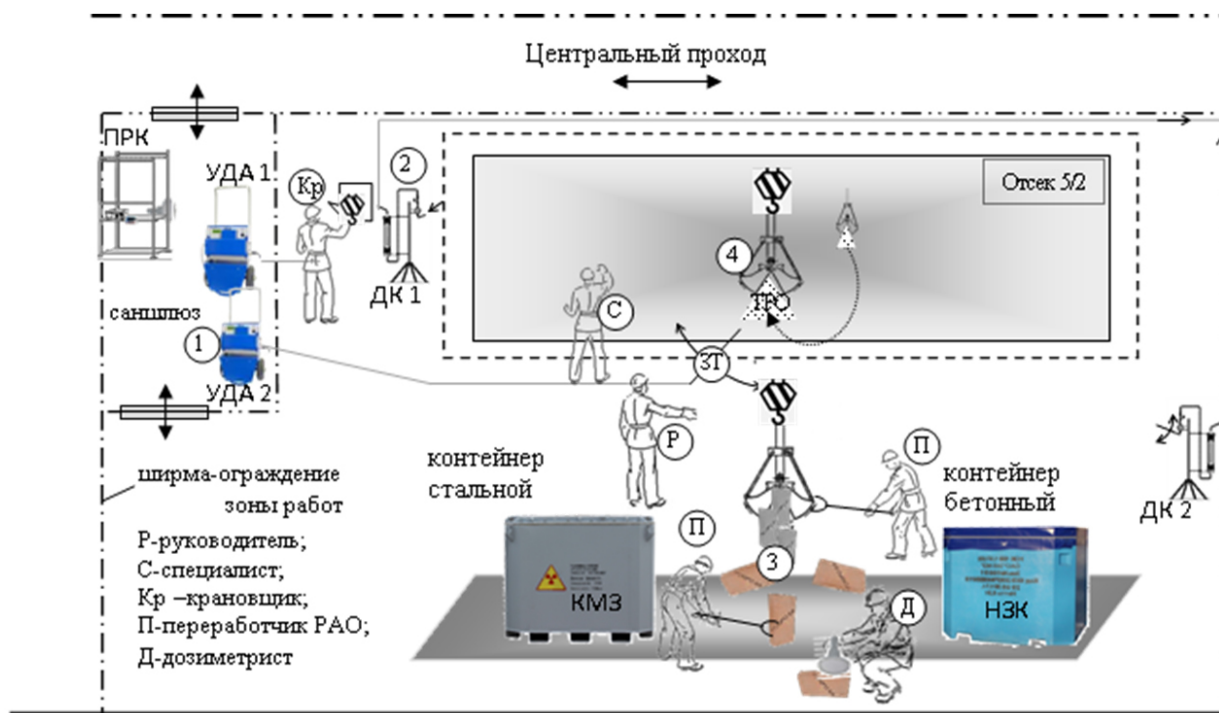
При выполнении работ обеспечивался постоянный радиационный контроль рабочих мест персонала, применялся дистанционный инструмент, определялись необходимые ограничения расстоянием от источников. Для загрузки упаковок с ТРО в контейнеры использовались штанги-захваты. Расположение технических средств РК и рабочих мест на участке проведения работ по опытному извлечению ТРО представлено на рисунке 2.

Факторами радиационной опасности на участке извлечения являлись: поле гамма-излучения от РАО и объёмная активность воздуха на участках работ. Значения мощности дозы гамма-излучения непосредственно внутри отсека составляло 4-6 мЗв/ч. Значения мощности дозы гамма-излучения на границе отсека составляли от 12 мкЗв/ч до 40 мкЗв/ч. Работы по извлечению проводились с оформлением допуска на радиационно-опасные работы с планируемой индивидуальной дозой персонала – 375 мкЗв.

По результатам измерений мощности дозы гамма-излучения на расстоянии 0,1 м от внешней поверхности упаковки проводился расчет активности ТРО по справочной литературе. Для расчета принимался характерный состав радионуклидов в ТРО: ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{241}Am , ^{152}Eu . Насыпную плотность ТРО принимали равной от 0,1 до 0,2 г/см³.

По морфологическому составу большинство извлечённых РАО состояло из ветоши, СИЗ, плёнки ПВХ и металлических предметов (детали двигателей, вёдра, вентильные сборки и др.). Извлечено 6 аэрозольных фильтров типа Д-23.

Активность ТРО в контейнерах определялась по результатам измерения мощности дозы гамма-излучения на расстоянии 1 м от боковых поверхностей в девяти точках распределенных равномерно по площади активной части. Это позволяло учесть неравномерность распределения активности при оценке среднего значения мощности дозы. Радионуклидный состав ТРО в контейнерах в МВР уточнялся на основе данных спектрометрических измерений от боковой поверхности контейнеров КМЗ (толщина стальных стен 5 мм) и через технологическое отверстие



ПРК- пункт радиометрического контроля; 1- установка УДА-1АБ с насосным блоком; 2-передвижной узел отбора воздуха на фильтр АФА, подключенный шлангом к вакуумной линии (ВЛ); 3- упаковка ТРО; 4-грейфер; ПЛ- пробоотборная линия (силиконовая); ЗТ-заборная трубка типа «Смог».

Рис. 2 – Расположение оборудования, технических средств радиационного контроля и рабочих мест на участках работы по извлечению РАО

(для подачи цемента) в крышке контейнеров НЗК (толщина бетонных стен 180 мм). Использовался спектрометр МКС-АТ6101Д АТОМТЕХ.

Мощность дозы гамма-излучения от контейнеров КМЗ-М составляла от 60 до 300 мкЗв/ч на расстоянии 1 м от боковой поверхности (максимальные значения). Мощность дозы гамма-излучения от контейнеров НЗК составляла от 20 до 300 мкЗв/ч на расстоянии 1 м от боковой поверхности (максимальные значения). С помощью спектрометра МКС-АТ6101Д определены основные радионуклиды.

Для упаковок со среднеактивными РАО максимальная мощность дозы гамма-излучения составляла 4-5 мЗв/ч (технологические фильтры). Радиоактивное загрязнение отдельных предметов в повреждённых упаковках с РАО превышало 20000 альфа част/(см² мин).

Суммарная активность всех извлечённых РАО составила порядка 10⁷ кБк.

Индивидуальная доза облучения персонала за время работы по допуску не превысила 30% от дневной квоты (60 мкЗв).

В качестве средства индивидуальной защиты органов дыхания применялся респиратор Лепесток-200 с ограничением времени непрерывной работы от 30 мин до 1 часа. Измерение радиоактивного загрязнения респираторов (внутри, снаружи) проводилось оперативно. По результатам измерений не обнаружено радиоактивное загрязнение альфа-излучающими радионуклидами более 1 см² мин⁻¹.

На работы по опытному извлечению радиоактивных отходов, без учёта подготовительного периода, было затрачено 12 рабочих дней. В результате выполненной работы из отсека хранилища были извлечены НТРО, СТРО и загружены в 8 контейнеров типа НЗК и 4 контейнера типа КМЗ, общим объемом 24 м³.

При проведении данной работы получен положительный опыт опробования выбранной технологии извлечения среднеактивных РАО из отсека хранилища ВТРО, подтверждена ее эффективность и безопасность. Получены опытные данные о возможности улучшения и оптимизации технологии извлечения РАО, включая технические средства и организационные мероприятия.

Освобождение крупногабаритного отсека обеспечит свободный объём для принятия ВТРО в хранилище на период более 10 лет, в течение которых можно будет выработать оптимальные решения по обращению с высокоактивными твёрдыми отходами в АО «ГНЦ НИИАР» в дальнейшие годы. Извлечение СТРО из отсеков хранилища ВТРО является одной из основных задач на период 2021 – 2025 годы локальной стратегии обращения с радиоактивными отходами в АО «ГНЦ НИИАР».

Изучение влияния борной кислоты на формы нахождения радионуклида ^{106}Ru в водных растворах

О.Б. Коренькова*, А.В. Радкевич, Н.И. Вороник

Государственное научное учреждение «Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны» Национальной академии наук Беларуси, г. Минск, Республика Беларусь

*e-mail: korenkova_olya@mail.ru

Аннотация. В ходе исследования были определены области существования ионных и неионных форм ^{106}Ru в водных растворах, а также в растворах борной кислоты концентрации 5 и 10 г/дм³ в широком интервале pH при помощи методов ионного обмена, ультрафильтрации и центрифугирования. Показано существенное влияние борной кислоты на физико-химическое состояние ^{106}Ru в растворах. В нейтральной и слабощелочной области pH 7,0 – 10,0 происходит разрушение псевдоколлоидных форм рутения и уменьшение его поглощения ионообменными смолами, вероятно за счет образования комплексных соединений с формами борной кислоты (полиборатами). Таким образом, присутствие борной кислоты существенно снижает возможности широко применяемых в системах специодоочистки АЭС ионообменных методов по отношению к радионуклидам рутения.

Ключевые слова: радионуклиды рутения, ультрафильтрация, ионный обмен, центрифугирование, очистка ЖРО.

Study of boric acid effect of on ^{106}Ru radionuclide species in aqueous solutions

O. Korenkova*, A. Radkevich, N. Voronic

The State scientific institution “The Joint Institute for Power and Nuclear Research – Sosny” of the National academy of sciences of Belarus, Minsk, Republic of Belarus

*e-mail: korenkova_olya@mail.ru

Abstract. The paper presents the results of ^{106}Ru speciation study in aqueous solutions as well as in boric acid solutions with concentrations of 5 and 10 g/dm³ in a wide pH range using the methods of ion exchange, ultrafiltration and centrifugation. A significant effect of boric acid on ^{106}Ru behaviour in solutions is shown. In the neutral and slightly alkaline solutions with pH 7.0 – 10.0, the destruction of ruthenium pseudocolloide species occurs and its absorption by ion exchange resins decreases, probably due to the formation of complex compounds with boric acid species (polyborates). Thus, the presence of boric acid significantly reduces the possibilities of NPP water treatment systems with widely used ion-exchange methods with respect to ruthenium radionuclides.

Key words: ruthenium radionuclides, ultrafiltration, ion exchange, centrifugation, LRW treatment.

Введение

Эксплуатация атомной электростанции (АЭС) сопровождается, в том числе, образованием жидких радиоактивных отходов (ЖРО). В литературе представлено много исследований, посвященных переработке ЖРО, содержащих радионуклиды, которые находятся в растворе в катионной или псевдоколлоидной форме, например радионуклиды цезия, кобальта и стронция [1]. Однако существуют радионуклиды, которые способны образовывать анионные соединения, в частности, радионуклиды рутения. Рутений является продуктом деления урана-235 и трансурановых элементов. В теплоноситель первого контура рутений способен попадать через дефекты в оболочках твэлов. Наиболее долгоживущими изотопами рутения, которые образуются в результате деления, являются ^{103}Ru и ^{106}Ru с периодами полураспада 39,25 дней и 371,8 дней. В технологических средах АЭС концентрация радионуклидов ^{103}Ru и ^{106}Ru составляет $10^{-12} - 10^{-9}$ моль/дм³, поэтому следует ожидать образование как ионных так и неионных (псевдоколлоидных) форм радионуклидов за счет сорбции на присутствующих в растворах продуктах коррозии и иных примесях [2-4]. Следует отметить, что присутствие комплексообразователей и анионов будет влиять на формы нахождения радионуклидов в растворах, а, следовательно, и на способ очистки ЖРО [5]. В качестве такого комплексообразователя может выступать борная кислота, которая используется в водно-химическом режиме первого контура на АЭС с реакторами типа ВВЭР в качестве жидкого поглотителя нейтронов.

Химия водных растворов рутения довольно сложна, поскольку рутений может существовать сразу в нескольких степенях окисления, а также формировать большое число комплексных ионов. Также следует отметить, что рутений образует намного больше нитрозосоединений, чем какой либо другой химический элемент. В соединениях рутений может проявлять степень окисления от +1 до +8, однако в водных растворах наиболее устойчивы соединения рутения (III) и (IV).

Применяемые на АЭС с ВВЭР-1200 системы спецводочистки теплоносителя первого контура, воды топливного бассейна, борного концентрата основаны на методе ионного обмена. С учетом того, что рутений в водных растворах образует целый ряд неионных соединений, эффективность таких систем спецводочистки по отношению к радионуклидам рутения относительно невелика и оценивается в 25–75%. Исследование форм нахождения радионуклидов рутения в водных средах позволит дать научно обоснованные предложения по разработке и внедрению эффективных и перспективных методов очистки технологических сред и ЖРО от указанных радионуклидов, сокращению объемов ЖРО и дозовых нагрузок на персонал АЭС. Целью работы являлось определение физико-химических форм нахождения радионуклидов рутения в водных растворах в том числе в присутствии борной кислоты.

Методика эксперимента

В ходе исследования изучались растворы ^{106}Ru в 0,1 моль/дм³ азотной кислоте в том числе в присутствии борной кислоты в концентрации 5 и 10 г/дм³ в широком интервале pH. Исследование проводилось методами ионного обмена, ультрафильтрации и центрифугирования. В экспериментах по ионному обмену использовали катионит Resinex KW-8 в K^+ -форме и анионит Resinex A4 в NO_3^- - и BO_3^- -форме. К навеске смолы приливали 50 см³ раствора, перемешивали на лабораторном встряхивателе в течение 1 сут со скоростью 200 об/мин, после чего проводили измерение активности. В экспериментах по ультрафильтрации использовали ячейку Millipore 8200 с ультрафильтрационной мембраной из регенерированной целлюлозы. Предел отсека мембраны составляет 1 kDa, что ориентировочно соответствует размеру пор 1 нм и обеспечивает полное задержание коллоидных и псевдоколлоидных частиц [6]. Исследуемый раствор объемом 100 см³ фильтровали при давлении 3 бар. В экспериментах по центрифугированию использовали лабораторную центрифугу ОПн-8. Проводилось центрифугирование 4-х образцов раствора объемом 25 см³. Скорость вращения центрифуги составляла 8000 об/мин, время вращения 30 мин.

Результаты и обсуждение

На рисунке 1А представлена зависимость логарифма коэффициента распределения (K_d) ^{106}Ru на катионите и анионите от значения pH раствора в отсутствие борной кислоты. В интервале pH 1,0 – 3,5 ^{106}Ru поглощается преимущественно катионитом, в то время как K_d на анионите на порядок меньше. Это свидетельствует о присутствии в растворе рутения в катионной форме и фактическое отсутствие отрицательно заряженных форм. При pH 3,5 резко увеличивается сорбция ^{106}Ru из растворов анионитом, при pH 4,2 значения K_d у катионита и анионита сравниваются и остаются одинаковыми во всем интервале pH 4,2 – 11,0. Такое поведение радионуклида характерно при

образовании им псевдоколлоидных форм в растворе, а сорбция ионами обусловлена адсорбцией содержащих ^{106}Ru частиц на поверхности зерен смолы.

На рисунках 1Б и 1В представлены данные по ионному обмену ^{106}Ru в присутствии борной кислоты с концентрацией 5 и 10 г/дм³. Присутствие борной кислоты существенно усложняет зависимости поглощения ^{106}Ru ионами: в области рН 7,0 – 10,0 наблюдаются «провалы» – K_d радионуклида резко снижаются, в особенности для катионита. При этом для концентрации борной кислоты 5 г/дм³ K_d на обоих ионитах хорошо коррелируют в интервале рН 5,4 – 11,0. В случае концентрации борной кислоты 10 г/дм³ область схожего поведения ионов проявляется только в интервале рН 3,5 – 6,6, а при больших значениях рН 7,0 – 10,3 радионуклид слабо поглощается катионитом.

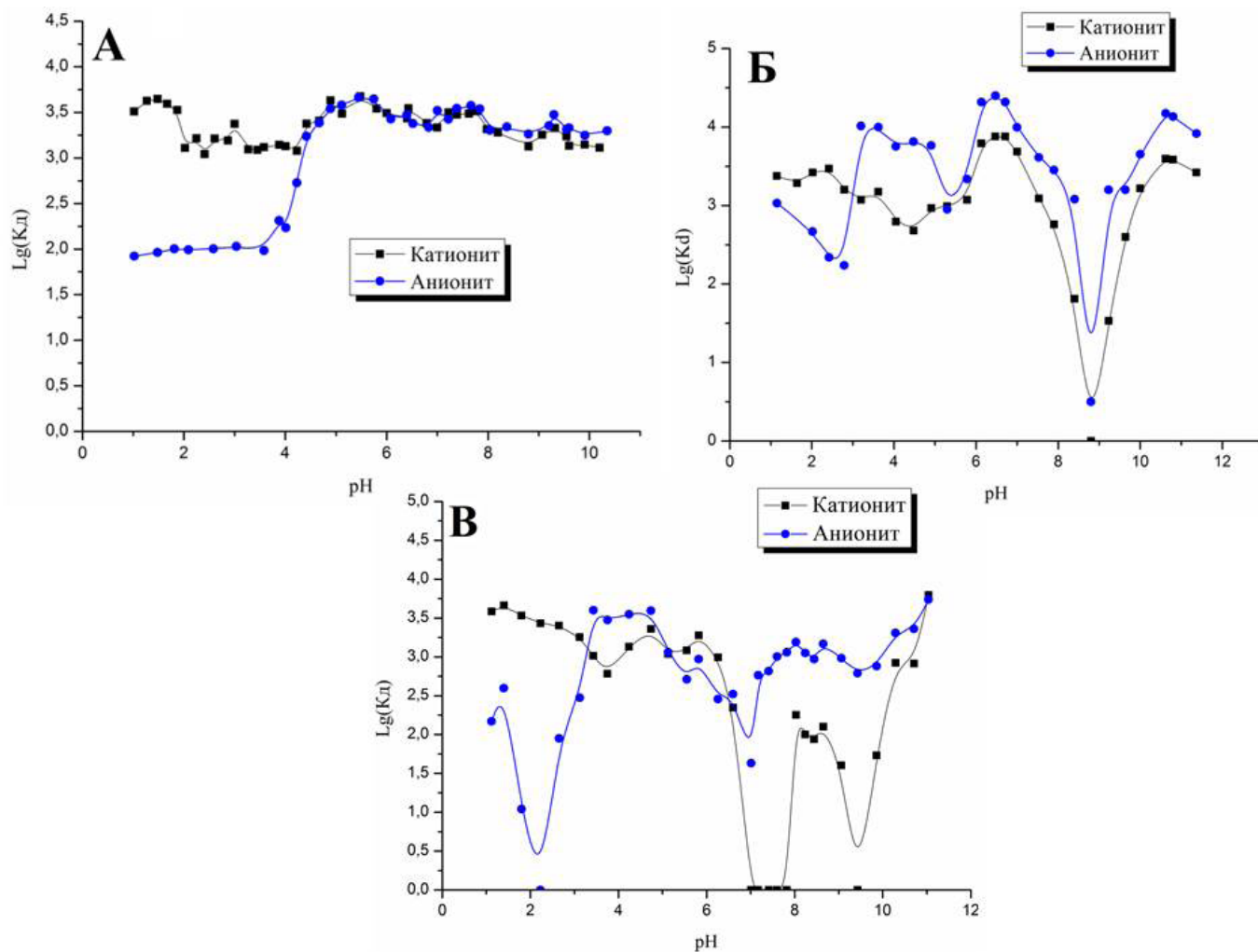


Рис.1. Зависимость величины логарифма коэффициента распределения ^{106}Ru на катионите и анионите от значения рН раствора: А – в отсутствие борной кислоты, Б – с $\text{C}(\text{H}_3\text{BO}_3) = 5 \text{ г/дм}^3$, В – $\text{C}(\text{H}_3\text{BO}_3) = 10 \text{ г/дм}^3$

Наблюдаемые зависимости при ионном обмене свидетельствуют об изменении формы нахождения ^{106}Ru в растворах борной кислоты в области рН 7,0 – 10,3. Возможным объяснением является переход от псевдоколлоидных форм, которые хорошо адсорбируются на смолах по неионообменному механизму к сорбционно-инертным комплексным соединениям. В данном интервале рН происходит образование существенных количеств различных ионизированных форм борной кислоты, включая полимерные [7]. Образование нейтральных или низкозаряженных анионных комплексов рутения с формами борной кислоты может быть причиной крайне низких коэффициентов распределения ^{106}Ru на катионите и несколько больших для анионита.

На рисунке 2 представлены зависимости задержания ^{106}Ru ультрафильтрационной мембраной от значения рН раствора в отсутствие и в присутствии борной кислоты.

Введение борной кислоты несколько сдвигает начало образования задерживаемых мембраной форм рутения: в растворах без борной кислоты переход происходит в интервале рН от 3,2 – 5,2, тогда как при 5 г/дм³ борной кислоты – в интервале рН 3,2 – 6,1, а при 10 г/дм³ – в интервале рН 3,8 – 5,6. Задерживаться мембраной могут как

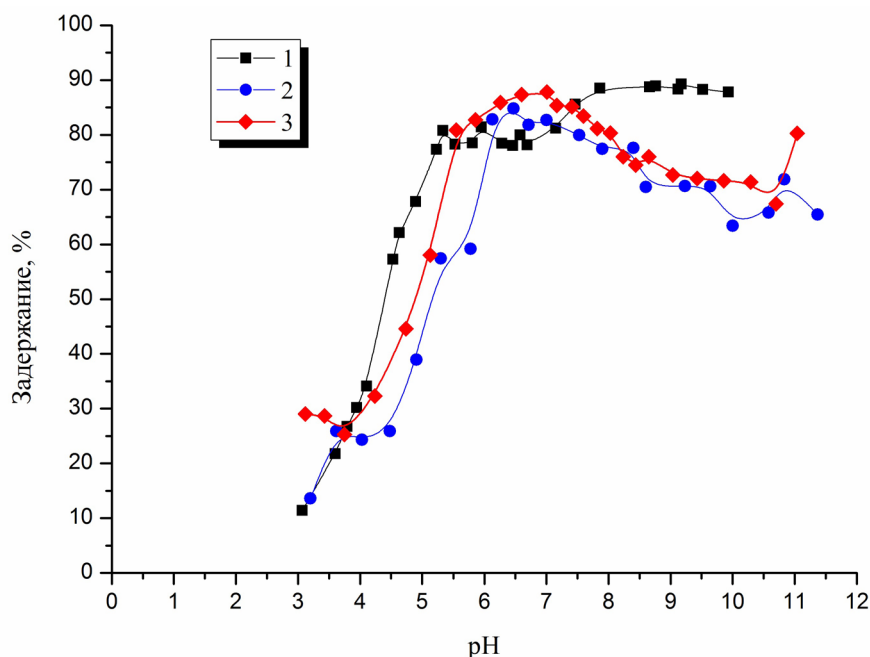


Рис. 2. Зависимость задержания ^{106}Ru ультрафильтрационной мембраной от значения pH раствора: 1 – без борной кислоты; 2 – $C(\text{H}_2\text{BO}_3) = 5 \text{ г/дм}^3$; 3 – $C(\text{H}_2\text{BO}_3) = 10 \text{ г/дм}^3$.

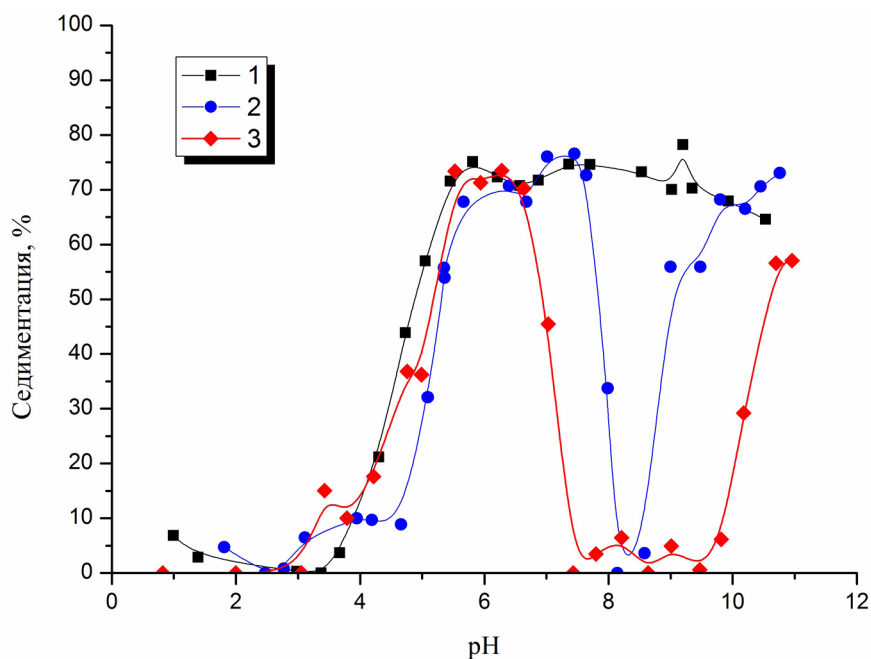


Рис. 3. Зависимость седиментации ^{106}Ru при центрифугировании от значения pH раствора: 1 – без борной кислоты, 2 – $C(\text{H}_2\text{BO}_3) = 5 \text{ г/дм}^3$, 3 – $C(\text{H}_2\text{BO}_3) = 10 \text{ г/дм}^3$.

полиядерные комплексы рутения, так и более крупные частицы, однако с учетом крайне низкой концентрации металл-иона ($\sim 10\text{-}11 \text{ моль/дм}^3$) следует ожидать образование только псевдоколлоидов за счет сорбции ^{106}Ru на примесных частицах в растворе.

Влияние pH раствора и концентрации борной кислоты на осаждение ^{106}Ru при центрифугировании представлено на рисунке 3. Центрифугирование со скоростью 8000 об/мин в течение 30 мин обеспечивает седиментацию коллоидных (псевдоколлоидных) частиц размером $>50 \text{ нм}$ [8]. Результаты проведенных экспериментов хорошо коррелируют с данными по ультрафильтрации в интервале pH 3,4 – 5,5, подтверждая образование относительно крупных псевдоколлоидных частиц содержащих ^{106}Ru . Однако в присутствии борной кислоты осаждение ^{106}Ru в нейтральной и слабощелочной области резко снижается по сравнению с растворами без борной кислоты: в интервале pH 7,4 – 9,8 для 5 г/дм^3 и pH 6,6 – 10,7 для 10 г/дм^3 задержание ^{106}Ru падает с 73% до 5%. В сочетании с данными по ионному обмену это свидетельствует о существенном изменении формы нахождения ^{106}Ru в растворах

борной кислоты в области рН 7,0 – 10,3 по сравнению с водными растворами. В данных условиях отмечается переход радионуклида из состава псевдоколлоидных частиц в комплексные соединения, по всей видимости с формами борной кислоты. При этом слабое влияние борной кислоты на задержание ^{106}Ru ультрафильтрационной мембраной, свидетельствует, что молекулярная масса данных комплексов превышает 1 kDa, что ориентировочно соответствует размеру > 1 нм.

Заключение

В ходе работы было исследовано физико-химическое состояние ^{106}Ru в водных растворах, в том числе содержащих борную кислоту. Полученные результаты свидетельствуют, что ^{106}Ru в водных растворах в отсутствие борной кислоты при рН $< 3,5$ находится преимущественно в катионной форме, а при повышении рН происходит переход к неионным формам – псевдоколлоидам. Формирование содержащих радионуклид частиц происходит в интервале рН 3,5 – 4,2 и при значениях рН $> 4,2$ порядка 70 – 80% ^{106}Ru в растворе находится в составе частиц размером более 50 нм.

Присутствие борной кислоты оказывает существенное влияние на физико-химическое состояние ^{106}Ru . В нейтральной и слабощелочной области рН 7,0 – 10,3 происходит разрушение псевдоколлоидных форм рутения, вероятно за счет образования комплексных соединений с формами борной кислоты (полиборатами), причем большая концентрация борной кислоты приводит к разрушению псевдоколлоидов на более широком интервале рН. Данные по ультрафильтрации и центрифугированию показывают, что размер комплексов лежит в интервале от 1 до 50 нм, а их нейтральность либо низкий отрицательный заряд обуславливает одновременно наблюдаемое резкое уменьшение поглощения ^{106}Ru ионообменными смолами.

Полученные результаты представляются важными для понимания поведения радионуклидов рутения в технологических средах и жидких радиоактивных отходах АЭС с реакторами с водой под давлением. Как показано настоящей работой, присутствие борной кислоты существенно снижает возможности широко применяемых в спецводоочистке ионообменных методов по отношению к радионуклидам рутения, причем данный эффект проявляется именно в «рабочем» интервале рН 7,0 – 10,0 большинства водных сред АЭС. Разработка научно обоснованных предложений по повышению эффективности существующих и внедрению перспективных методов очистки водных растворов от радионуклидов позволит сократить объёмы ЖРО и уменьшить дозовые нагрузки на персонал АЭС.

Список литературы:

1. Зарубо, А. М. Формы нахождения радионуклида кобальта-60 в растворах борной кислоты / А.М. Зарубо, А.В. Радкевич, О.Б. Коренькова, Н.И. Вороник // Изв. академии наук. Серия хим. наук – 2020. – вып. 56. – № 1. – с. 24 – 32.
2. Rard J.A. Thermodynamic data bases for multivalent elements: an example for ruthenium. International Conference of Thermodynamics of Aqueous Systems with Industrial Applications Airlie House, Warrenton, Virginia May 10-14, 1987, p 1-21.
3. Schulz, W. W. Radiochemistry of elements: radiochemistry of ruthenium / W.W. Schulz, S.G. Metcalf, G.S. Barney. – 1984. 197 p.
4. Давыдов, Ю.П. Основы радиохимии : уч. пособие / Ю.П. Давыдов. – Минск : Высшая школа, 2014. – 317 с.
5. Давыдов, Ю.П., Титов, А.С. Состояние радионуклидов Cr(III) в растворе / Ю.П. Давыдов, А.С. Титов // Радиохимия – 2006. – Т.48. – №4. – с. 327–330.
6. Charge Effects in the Fractionation of Natural Organics Using Ultrafiltration / Schafer Andrea I. [et all] // Environ. Sci. Technol. 2002. № 36. p. 2572-2580. – 2017. – Режим доступа: <https://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/07366299.2017.1279923>. – Дата доступа 09.02.2021
7. Гаврилов, А.В. Поведение борной кислоты в 1-ом контуре ВВЭР и ее влияние на массоперенос в активной зоне / А.В. Гаврилов [и др] // Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР: сборник трудов –й междунар. науч.-технич. конф., Подольск, 28 – 31 мая 2013.
8. Benes, P. Trace chemistry of aqueous solutions. General chemistry and radiochemistry / P. Benes, V. Majer. – Praga, Academia, 1980. – p. 83–88.

Моделирование плазменной шахтной печи установки «Плутон»

Леончик А.И.¹, Савчин В.В.¹, Хведчин И.В.¹, Кадыров И.И.², Полканов М.А.²

¹ – Институт тепло- и массообмена имени А.В. Лыкова НАН Беларуси, Республика Беларусь,

e-mail: sauchyn@itmo.by

² – ФГУП «РАДОН», г. Сергиев Посад, Российская Федерация,

e-mail: MAPolkanov@radon.ru

Аннотация. В работе представлена модель плазменной шахтной печи опытно-промышленной установки плазменной переработки твердых РАО «Плутон». Приведены результаты расчетов тепловых процессов в шахтной печи. Определены наиболее проблемные места с точки зрения термических напряжений узлов плавителя и эрозионного воздействия высокотемпературных газовых потоков. Расчеты внутреннего пространства плавителя печи и шахты печи проведены для различных параметров работы и установки плазматронов.

Ключевые слова: плазменная печь, переработка отходов, радиоактивные отходы, моделирование, газодинамика, тепловой расчет

Modeling of the plasma shaft furnace of the “Pluton” facility

A.I. Liavonchyk¹, V.V. Sauchyn¹, I.V. Khvedchyn¹, I.I. Kadyrov², M.A. Polkanov²

¹ – A.V. Luikov Heat and mass transfer institute of the National Academy of Sciences of Belarus

e-mail: sauchyn@itmo.by

² – RADON FSUE, Sergiev Posad, Russian Federation

e-mail: MAPolkanov@radon.ru

Abstract. The paper presents a model of the plasma shaft furnace of a pilot industrial facility «Pluton» for plasma processing of solid radioactive waste. The results of calculations of thermal processes in the shaft furnace are presented. The most problematic positions of the melter unit for thermal stresses and the erosion effect of high-temperature gas flows have been identified. Calculations of the internal space of the furnace melter and shaft were carried out for different variants of plasma torches operation and installation parameters.

Keywords: plasma furnace, waste treatment, radioactive waste, modeling, gas dynamics, thermal design

Введение

При эксплуатации высокотемпературных печей для переработки радиоактивных и других видов отходов возникают задачи по организации внутреннего пространства теплонапряженных устройств с целью снижения скорости разрушения футеровки, и, как следствие, продления срока эксплуатации до следующего ремонта.

Во ФГУП «РАДОН» построена опытно-промышленная установка плазменной переработки твердых РАО «Плутон». Наиболее теплонапряженным элементом этой установки является плавитель шахтной печи, где под действием высокотемпературных газовых (плазменных) потоков плавится и гомогенизируется неорганический остаток отходов (шлак). При этом на внутренние поверхности огнеупорной футеровки плавителя и нижней части шахтной печи оказывают эрозионное воздействие высокоскоростные высокотемпературные газовые потоки и коррозионное воздействие расплав шлама.

С целью определения наиболее высокотемпературных зон, подверженных разрушению, проведено численное моделирование газодинамических процессов, происходящих во внутреннем объеме плавителя шахтной печи.

Описание установки

Шахтная печь является основным аппаратом установки плазменной переработки радиоактивных отходов «Плутон» и обеспечивает высокотемпературную конверсию РАО в шахте с получением расплава неорганического остатка (шлака) и пиролизного газа на выходе печи.

В футеровке печи предусмотрены технологические каналы для ввода и установки датчиков контроля температуры (термопары и пирометр) в разных точках по высоте печи; контроля уровня отходов в шахте в верхней части шахтной печи; контроля давления (разрежения).

Над плавителем в своде предусмотрены два канала для установки плазмотронов. Оси отверстий расположены по радиусам свода под углом 10° к вертикали. Плазмотроны предназначены для обеспечения необходимого температурного режима печи. Электрическая мощность каждого плазмотрона может изменяться от 80 до 130 кВт. Для управляемого удаления расплава шлама из ванны плавителя предусмотрен специальный узел слива шлакового расплава.

Применяемая модель

Для проведения газодинамических расчетов течений газовых потоков внутри плавителя и шахты печи разработана модель внутреннего объема. На рис. 1 представлен внутренний объем пустой печи.



Рис. 1. Модель плавителя шахтной печи (продольный разрез) и модель внутреннего объема плавителя и шахты печи

Для моделирования газодинамических процессов построена расчетная сетка, размер которой составляет $3,7 \cdot 10^6$ ячеек. Размер ячеек определен в пределах от $6,49 \cdot 10^{-10}$ до $6,03 \cdot 10^{-4}$ м³. При построении сетки учитывались особенности течения газовых потоков во внутреннем объеме печи.

В соответствии с данными, полученными при эксплуатации шахтной печи во ФГУП «РАДОН», в нижней части шахты накапливается шлак, образующий пологий сход, по которому в плавитель стекает расплав шлака. Над сводом плавителя в зоне перехода в шахту образуется полость высотой около 500 мм. Далее газовый поток распределяется по сечению шахты по каналам в столбе отходов.

Общее аэродинамическое сопротивление столба отходов в шахте (выход из плавителя / верх шахты над отходами) принимается 700 Па.

Для моделирования турбулентного течения использованы уравнения Навье-Стокса, осредненные по Рейнольдсу (RANS). Осреднение по Рейнольдсу заключается в замене случайно изменяющихся характеристик потока (скорость, давление, плотность) суммами осреднённых и пульсационных составляющих [1, 2]. Метод RANS был использован в следующей формулировке [2 – 4]

$$\frac{\partial(\rho u_i)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho \tilde{u}_j u_i - \tau_{ij}) = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \rho g_i + S_i, \quad (1)$$

уравнение неразрывности

$$\frac{\partial(\rho u_j)}{\partial x_j} = 0, \quad (2)$$

и уравнения энергии (в формулировке для энтальпии)

$$\frac{\partial(\rho h)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho \tilde{u}_j h) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\frac{\mu}{Pr} + \frac{\mu_t}{Pr_t} \right) \frac{\partial h}{\partial x_j} \right] + \frac{\partial p}{\partial t} + u_j \frac{\partial p}{\partial x_j} + \tau_{ij} \frac{\partial u_i}{\partial x_j}. \quad (3)$$

В этом уравнении энтальпия и температура связаны соотношением

$$h = c_p T, \quad (4)$$

Для решения задачи теплопереноса от горячего газа в слой отходов и стенки установки применена сопряженная постановка задачи. В этом случае задача газовой динамики решалась одновременно с задачей теплопроводности в твердых элементах конструкции, тогда как сопряжение производилось через граничные условия четвертого рода – равенство температур и тепловых потоков на поверхностях соприкосновения газового потока с твердой поверхностью.

В уравнении (1) тензор рейнольдсовых напряжений τ_{ij} определяется как

$$\tau_{ij} = 2\mu s_{ij} - \frac{2}{3}\mu \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \delta_{ij} - \langle \rho u_i' u_j' \rangle. \quad (5)$$

В выражении (5) слагаемое $-\langle \rho u_i' u_j' \rangle$, требующее замыкания, можно представить в виде

$$\langle \rho u_i' u_j' \rangle = 2\mu_t s_{ij} - \frac{2}{3} \left(\mu_t \frac{\partial u_k}{\partial x_k} + \rho k \right) \delta_{ij}, \quad (6)$$

где

$$s_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right). \quad (7)$$

Проблема замыкания осредненных по Рейнольдсу уравнений Навье-Стокса (1) сводится к определению рейнольдсовых напряжений и, как правило, к записи дополнительных дифференциальных уравнений для характеристик турбулентности, причем одной из самых распространенных является гипотеза вихревой или турбулентной вязкости. Для моделирования неизвестных членов в уравнении (6) использовалась $k-\omega$ модель турбулентности

Ментера (Menter's shear stress transport $k-\omega$ model – модель переноса сдвиговых напряжений Ментера), которая является гибридом $k-\epsilon$ и $k-\omega$ моделей [5]. Следует отметить, что $k-\epsilon$ модель имеет преимущество в зонах течения вдали от стенок, а $k-\omega$ модель – вблизи стенок [6]. Модель переноса сдвиговых напряжений (SST $k-\omega$ модель) реализует переход от $k-\epsilon$ модели к $k-\omega$ модели в зависимости от исследуемой области течения газовых потоков.

Как показывает накопленный в Институте тепло- и массообмена имени А.В. Лыкова НАН Беларуси опыт моделирования турбулентных течений в реакторах, при решении поставленной задачи следует использовать эту модель. Она сформулирована и реализована таким образом, что корректно учитывает как процессы, происходящие в пограничных слоях, так и особенности развития свободных струйных течений.

Результаты и обсуждение

При проведении газодинамических расчетов приняты следующие варианты параметров плазмотронов: угол установки плазмотронов (от вертикали) 8° , 10° (номинальный) и 12° ; тепловая мощность плазмотрона (с учетом КПД) 60 кВт, 80 кВт (номинальная) и 100 кВт; расход плазмообразующего газа (воздуха) через один плазмотрон $30 \text{ м}^3/\text{час}$, $35 \text{ м}^3/\text{час}$ и $40 \text{ м}^3/\text{час}$.

Для примера рассмотрен один из режимов работы плазмотронов: расход плазмообразующего газа $35 \text{ м}^3/\text{ч}$, мощность 80 кВт.

Проведено моделирование внутреннего объема печи при заполнении шахты инертным материалом. Так как в процессе переработки отходов невозможно точно определить гранулометрический состав, плотность засыпки и другие теплотехнические параметры материалов, загруженных в шахту печи, была предложена модель со следующими допущениями. Дно плавителя с расплавом моделируется как твердое тело со следующими свойствами: теплопроводность $2,5 \text{ Вт/м}\cdot\text{К}$, плотность $2,7 \cdot 10^3 \text{ кг/м}^3$, теплоемкость $2 \cdot 10^3 \text{ Дж/кг}\cdot\text{К}$. Материалом с аналогичными теплофизическими свойствами была задана засыпка, моделирующая столб отходов в шахте печи.

Засыпка моделировалась как пористое тело. Так как по высоте структура засыпки неоднородная, то было принято допущение разбить весь объем на 5 частей (рис. 2), для каждой из которых задавались свои характерные коэффициенты.

Задача решалась в формулировке относительного вязкого сопротивления (Relative Viscosity Resistance Formulation) для неравновесной модели (non-equilibrium thermal model). Были заданы вязкое сопротивление (Viscous Resistance), пористость (porosity), поверхность теплообмена (interfacial area density), коэффициент теплоотдачи (heat transfer coefficient), и объемная плотность стока теплоты (heat generation rate). При этом были приняты следующие определения перечисленных выше параметров.

Пористость – доля пустого пространства в единице объема засыпки.

Вязкое сопротивление – характеристика переноса вещества в пористой среде, описывающая уменьшение давления при прохождении через пористое тело.

Поверхность теплообмена – площадь, которая участвует в теплообмене в единице объема засыпки.

Объемная плотность стока тепла – количество теплоты, которое поглощается в единице объема засыпки в единицу времени.

Указанные параметры приведены в таблице 1. Нумерация зон сверху вниз.

Таблица 1 Параметры модели шахты печи с засыпкой

Номер зоны	1	2	3	4	5
Вязкое сопротивление, $1/\text{м}^2$	$48 \cdot 10^3$	$211 \cdot 10^3$	$910 \cdot 10^3$	$15 \cdot 10^6$	$56 \cdot 10^6$
Пористость	0,5	0,4	0,3	0,2	0,2
Поверхность теплоотдачи, $1/\text{м}$	25	50	100	250	500
Коэффициент теплоотдачи, $\text{Вт/м}^2 \cdot \text{К}$	10	10	10	10	10
Объемная плотность стока теплоты, Вт/м^3	$25 \cdot 10^3$	$25 \cdot 10^3$	$25 \cdot 10^3$	$25 \cdot 10^3$	$25 \cdot 10^3$

Для расчета использовался следующий подход. Для первых 1000 итераций расчет проводился без учета теплового взаимодействия газа и материала засыпки, затем подключалась дополнительная функция, учитывающая поглощение тепла засыпкой в количестве 25 кВт/м^3 . Для этого в пористых областях создавалась копия сетки и расчет шел в предположении о теплообмене между газом и засыпкой, которые моделируются двумя параллельными сетками. После этого расчет продолжался до достижения заданной сходимости (0,001).

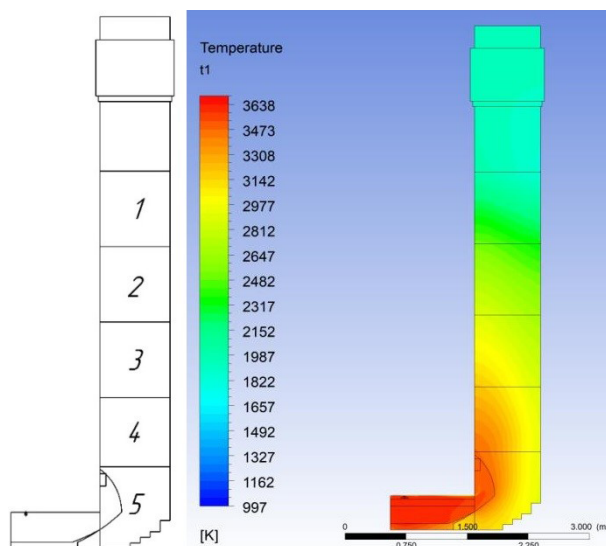


Рис. 2. Схема разделения шахты печи на зоны и распределение поля температур в печи

При построении сетки учитывались пограничные слои в области контакта воздуха и расплава, свода, а также вдоль передней стенки шахты.

Как показывает моделирование, наблюдается образование кольцевых течений с высокой турбулентностью (рис. 3). В области примыкания свода плавителя к шахте печи наблюдаются образования вихрей. Так как часть канала перекрыта перерабатываемым материалом, скорость потока в этой области увеличивается до 10-15 м/с. На переходе плавителя в шахту образуется вихревая зона с высокой температурой. Таким образом газовый поток может оказывать значительное эрозионное воздействие на выступ.

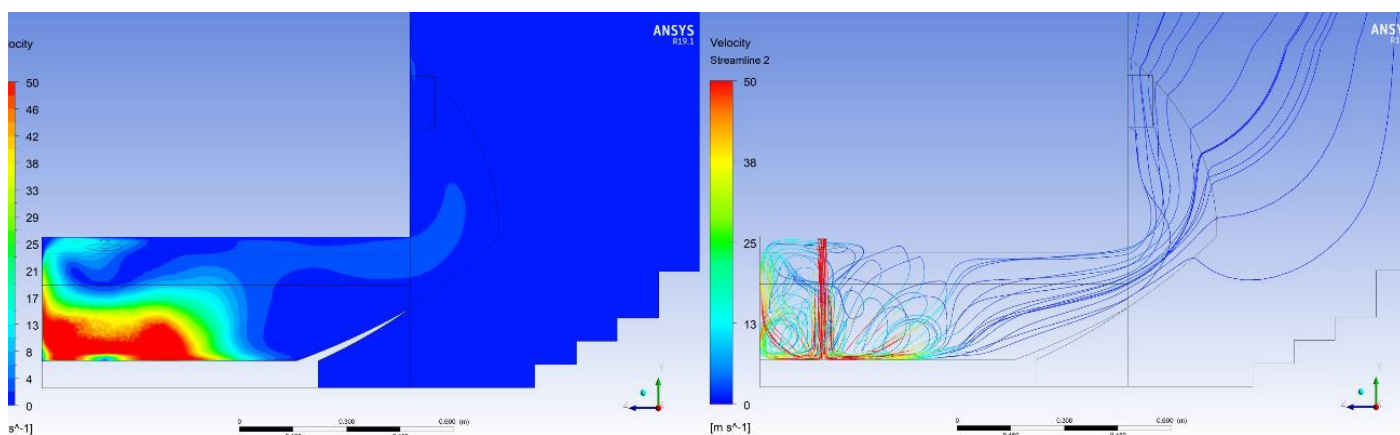


Рис. 3. Скорость газа и линии тока в плавителе

Заключение

На основе полученных данных построена модель плавителя шахтной печи и его внутреннего объема, разработана модель для численного расчета плавителя с целью определения наиболее проблемных мест с точки зрения термических напряжений узлов плавителя и эрозионного воздействия плазменных газовых потоков на элементы плавителя. Расчеты внутреннего пространства плавителя печи и шахты печи выполнены для различных вариантов углов установки плазмотронов, мощности плазмотронов и расхода плазмообразующего газа (воздуха) как для пустой печи, так и для варианта заполненной шахты.

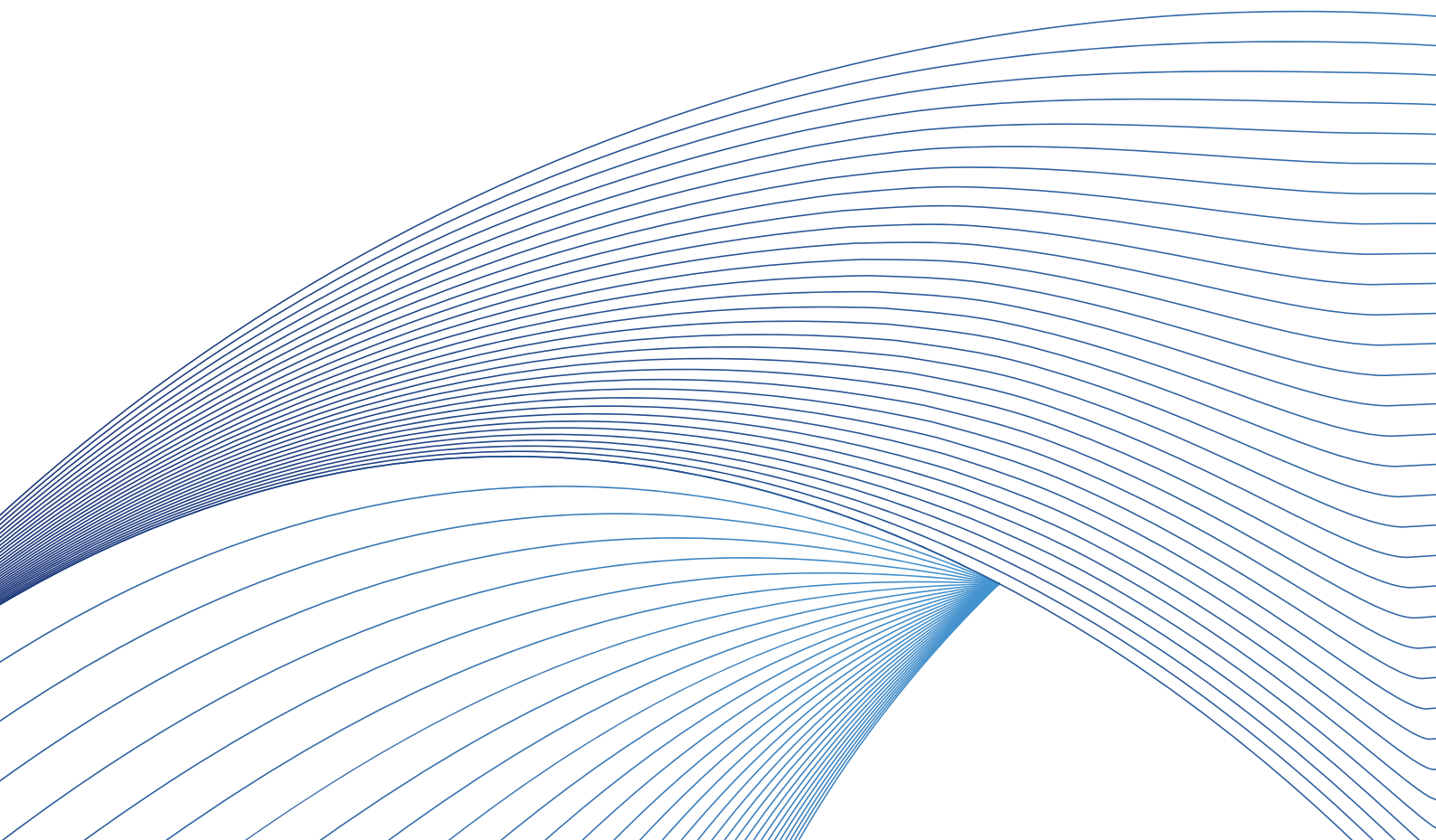
Показано, что во время эксплуатации печи самым большим термическим и газодинамическим нагрузкам подвержена зона ввода плазмотронов в плавитель и расположенные рядом боковые стенки, включая торцевую стенку, где расположен слив из плавителя. Скорости газовых потоков в этой области могут достигать 50 м/с. Также эрозионному воздействию подвергается выступ свода плавителя в месте примыкания к шахте печи.

Список литературы

1. Численное моделирование пространственных течений с закруткой потока / Д. В. Платонов, А. В. Минаков, А. А. Дектерев, А. В. Сентябов // Компьютерные исследования и моделирование. – 2013. Т.5, №4. С. 635-648.
2. Быстров, Ю. А. Численное моделирование вихревой интенсификации теплообмена в пакетах труб. / Ю. А. Быстров, Н. А. Кудрявцев, С. А. Исаев // М. Судостроение. – 2005, 392 с.
3. ANSYSFLUENT 12.0 TheoryGuide // ENEAGRID/CRESCO, an integrated computational infrastructure [Электронный ресурс]. – Режим доступа: https://www.afs.enea.it/project/neptunius/docs/fluent/html/th/main_pre.htm. – Дата доступа : 12.01.2020.
4. ANSYS FLUENT 19.1 Theory Guide.
5. Menter, F. R. Two-equation eddy-viscosity turbulence models for engineering applications / F.R. Menter // AIAA Journal. Vol. 32, No. 8. – 1994. P. 1598 1604.
6. Wilcox, D. Turbulence modeling for CFD / D.C. Wilcox. DCW Industries, Inc. La Canada, California, 1998.

СЕКЦИЯ II

Хранение и захоронение
радиоактивных отходов



Обследование хранилища среднеактивных твердых радиоактивных отходов (сооружение 140) в целях отнесения размещенных РАО к особым или удаляемым

Авдонин В.В., Ахремочкина О.А., Колесник В.В., Мамонов А.В., Разживин С.Г.,
Серебряков В.В.

e-mail: kolesnik@niiar.ru

Аннотация. В работе представлен анализ реализации сценариев «захоронения радиоактивных отходов (РАО) в месте их нахождения» и «удаления РАО» применительно к хранилищу среднеактивных твердых радиоактивных отходов (сооружение 140) АО «ГНЦ НИИАР» (г. Димитровград, Ульяновская обл.). Рассмотрены оценка возможности локализации РАО в месте их размещения, оценка радиационного и обобщенного риска, оценка совокупного размера возможного вреда окружающей среде, стоимостная оценка затрат. Представлены результаты инструментальных радиационного и инженерного обследований объекта.

Ключевые слова: твердые радиоактивные отходы, особые радиоактивные отходы, радиационная безопасность, радиационный риск, обобщенный риск, радиационное и инженерное обследование.

Surveying of storage facility for intermediate-level solid waste (building 140) to classify placed radioactive waste as special or disposed waste

V.V. Avdonin, O.A. Ahremochkina, V.V. Kolesnik, A.V. Mamonov, S.G. Razzhivin
and V.V. Serebryakov

e-mail: kolesnik@niiar.ru

Abstract. The paper is concerned with the analysis of scenarios for radioactive waste in situ burial and their disposal with reference to storage facility for intermediate-level solid waste (building 140) at RIAR JSC (Dimitrovgrad, Ulyanovsk region). Analyzed here are also feasibility of radioactive waste confinement in situ, assessment of radiation hazard and overall risk, assessment of the total amount of possible environmental damage, and estimate of costs. The results of radiation measurement and engineering surveys of the storage facility are presented.

Keywords: solid radioactive waste, special waste, radiation safety, radiation hazard, overall risk, radiation measurement and engineering survey.

Хранилище среднеактивных твердых радиоактивных отходов (сооружение 140) расположено на территории промплощадки №1 АО «ГНЦ НИИАР», является хранилищем приповерхностного типа и представляет собой железобетонную конструкцию, разделенную на ряд отсеков и размещенную в грунте на открытой территории (см. рисунок 1). В 1990-е годы вокруг сооружения 140 были построены дополнительные пристройки, разделенные на отсеки и также предназначенные для размещения в них ТРО.

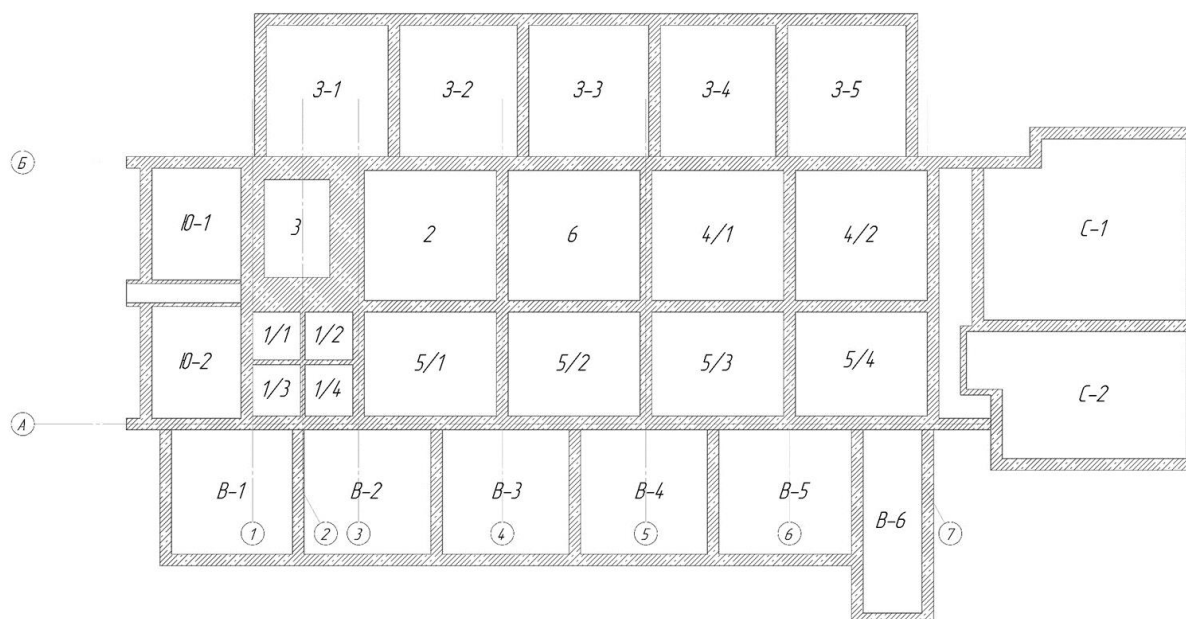


Рис. 1 – Схема расположения отсеков сооружения 140

Процесс заполнения отсеков хранилища предусматривал послойное размещение ТРО навалом в первичных упаковках с последующим включением в цементную матрицу. В настоящее время сооружение 140 не имеет свободных объемов.

При анализе возможности отнесения РАО, размещенных в сооружении 140, к особым РАО выполнена сравнительная оценка возможности локализации РАО в месте их размещения.

Оценка удельной активности i -го радионуклида с учетом времени выдержки $tY_{Ai}(t)$ с целью определения периода потенциальной опасности, выполнена по следующему выражению (1):

$$Y_{Ai}(t) = Y_{Ai}^0 \cdot e^{-\frac{t \cdot \ln 2}{T_{1/2}^i}} \quad (1)$$

Результаты оценки периода потенциальной опасности основных радионуклидов РАО, размещенных в сооружении 140, представлены в таблице 1.

Таблица 1.

Радионуклид	Предельное значение удельной активности (ПЗУА), кБк/кг	$T_{1/2}$, лет	$T_{ПЗУА}$, лет	Радионуклид	Предельное значение удельной активности (ПЗУА), кБк/кг	$T_{1/2}$, лет	$T_{ПЗУА}$, лет
^{60}Co	10	5,27	171	^{235}U	10	$7,04 \times 10^8$	$8, E+09$
^{137}Cs	10	30,17	1010	^{244}Cm	10	18,1	357
^{152}Eu	10	13,3	453	^{241}Am	1	$4,32 \times 10^2$	12270
^{239}Pu	1	$2,41 \times 10^4$	612704	–	–	–	–

Для подавляющего большинства долгоживущих радионуклидов миграция за пределы пункта хранения радионуклидов в условиях полной деградации техногенных барьеров крайне мал или отсутствует для всех типов вмещающих сред, кроме песков, которые могут быть признаны достаточно неблагоприятными для создания пункта консервации [1].

Для прогнозирования возможной миграции радионуклидов из хранилища проведены исследования миграционно-сорбционных свойств грунта в ближней зоне сооружения 140 и разработана математическая модели переноса радионуклидов из хранилища.

В рамках разработанной математической модели выполнен прогноз возможного ареола радионуклидов из сооружения 140, определены границы зоны возможного загрязнения в результате выхода радионуклидов из хранилища ТРО, а также изменение этой картины с течением времени.

В качестве консервативного (неблагоприятного) сценария рассматривался сценарий, при котором радионуклиды, содержащиеся в составе РАО хранилища, переходят в жидкую фазу и поступают в водоносный горизонт, формируя ореол загрязнения, и мигрирует, подчиняясь основному направлению фильтрационного потока.

Проведенные расчеты показали, что снижение величины удельной активности ^{137}Cs до величины уровня вмешательства (УВ) в интервале глубин 0-10 м происходит в течение 150 лет. При попадании активной жидкой фазы в пределы водоносного горизонта происходит резкое снижение удельной активности.

Примерно два порядка уровня удельной активности снимается за счет разбавления и примерно столько же ($K_d > 100 \text{ мл/г}$) – за счет сорбции вмещающими породами. Снижение удельной активности ореола загрязнения до значений ниже УВ происходит за ~ 100 лет.

Изменения удельной активности ^{137}Cs в грунтовых водах на различных расстояниях от хранилища с течением времени, полученные по упрощенной одномерной методике расчёта миграции РВ при нарушении защитных барьеров, приведены на рисунке 2.

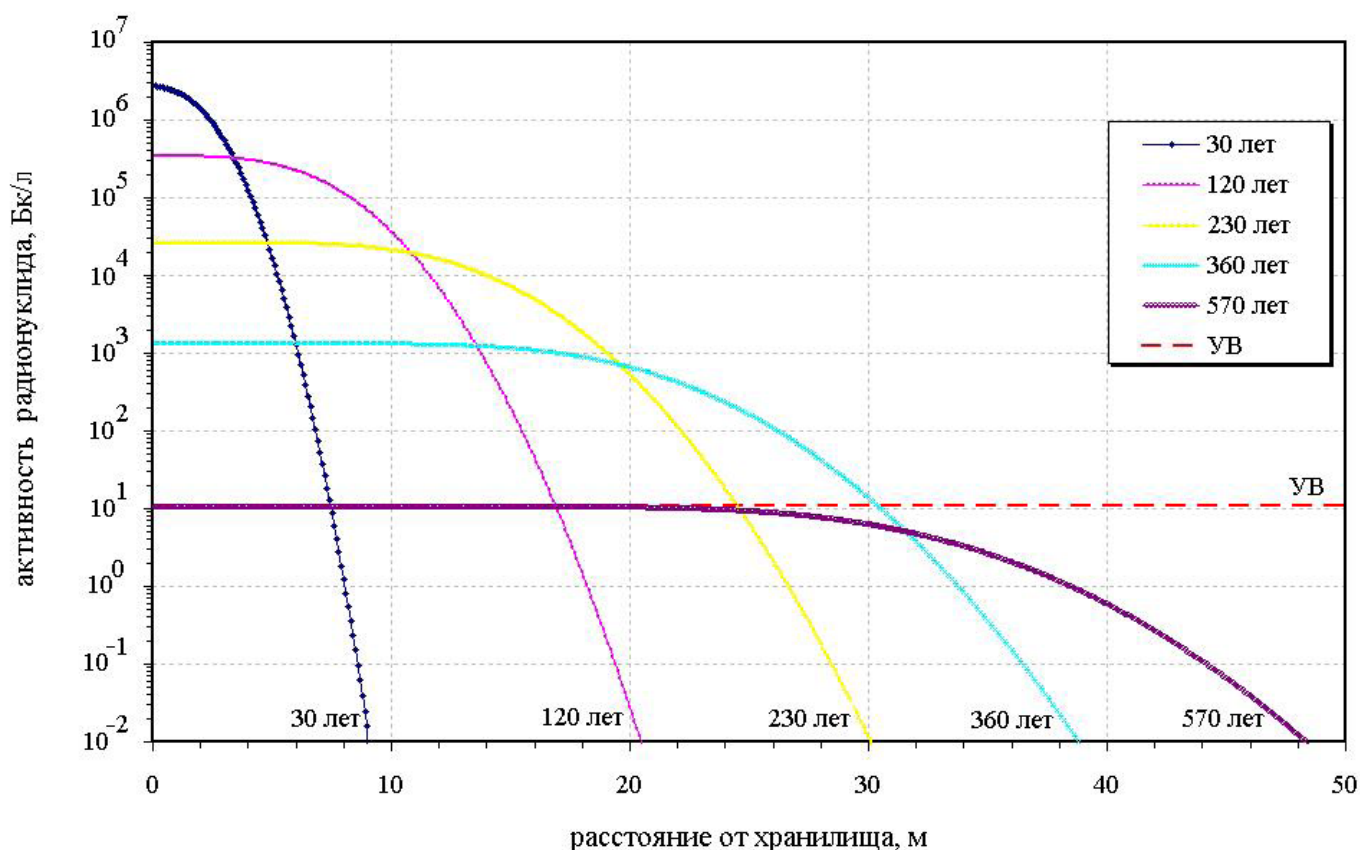


Рис. 2 – Результаты расчёта миграции ^{137}Cs от приповерхностного хранилища

Из всего перечня радионуклидов только для ^{137}Cs отмечена возможность массопереноса во вмещающих породах, при этом величина этого перемещения составляет менее 40 м. Величина активности других радионуклидов попадающих в водоносный горизонт ниже значения уровня вмешательства.

Результаты анализа позволяют сделать вывод о том, что при реализации сценария миграции радионуклидов в инфильтрационно-фильтрационном потоке какого-либо существенного загрязнения не произойдет. Более того, ореол загрязнения не выйдет за пределы существующих участков размещения хранилища РАО.

Были рассмотрены два возможных сценария обращения с РАО сооружения 140:

1. Захоронение РАО в месте их нахождения. Конечное состояние – создан пункт захоронения РАО. Выполнены все требования по обеспечению безопасности в течение всего периода потенциальной опасности РАО.

2. Удаление РАО. Конечное состояние – РАО извлечены, переработаны и переданы на захоронение. Объект ликвидирован, территория расположения реабилитирована.

Проведенные расчетные исследования показали, что удаление РАО из сооружения 140 сопряжено с более высокой коллективной эффективной дозой облучения, чем захоронение РАО в месте нахождения (см. таблицу 2).

Таблица 2.

Параметр	Сценарий		
	Удаление РАО	Сравнение	Захоронение РАО в месте нахождения
Коллективная эффективная доза облучения за весь период потенциальной опасности РАО, чел.-мЗв	822	>	89

Расчет оценки обобщенного риска потенциального облучения при захоронении РАО в месте размещения выполнен для аварии, связанной с повреждением верхнего перекрытия хранилища с нарушением герметичности первичных упаковок РАО, и аварии, вызванной повреждением верхнего и нижнего перекрытий хранилища с выходом радионуклидов вместе с потоком осадков.

Расчет обобщенного риска потенциального облучения, связанного с удалением РАО и захоронением выполнен в соответствии с препринтом [2].

Проведенные расчетные исследования показали, что риск потенциального облучения при захоронении РАО в месте размещения значительно меньше, чем риск потенциального облучения при удалении РАО (см. таблицу 3).

Таблица 3

Параметр	Сценарий		
	Удаление РАО	Сравнение	Захоронение РАО в месте нахождения
Риск потенциального облучения, год ⁻¹	$2,3 \cdot 10^{-3}$	>	$1,0 \cdot 10^{-9}$

Выполнена предварительная оценка совокупного размера возможного вреда окружающей среде, в случае захоронения РАО в месте их нахождения, как денежный эквивалент гибели объектов живой природы, вследствие радиационного воздействия (см. таблицу 4).

Таблица 4.

Объекты окружающей среды	Оценка размера экономического ущерба от причиненного вреда, млн. руб.
Объекты животного мира	0,143
Объекты растительного мира	0
Объекты биологических ресурсов	0
Итого	0,143

Стоимость захоронения РАО в месте размещения меньше, чем стоимость удаления РАО, за счет значительных затрат на переработку, кондиционирование, контейнеризацию, транспортировку и захоронение, которые составляют оценочно 2,238 млрд.руб. (см. таблицу 5).

Таблица 5

Параметр	Сценарий		
	Удаление РАО	Сравнение	Захоронение РАО в месте нахождения
Стоимость, млрд. руб.	3,45	>	0,4



Уточняющее радиационное обследование территории сооружения 140 было выполнено АО «ЦПТИ» в 2019-2020 гг. и показало отсутствие превышения мощности амбиентного эквивалента дозы (МАЭД) гамма-излучения над контрольным уровнем, максимальные значения общего загрязнения поверхностей альфа- и бета-радиоактивного загрязнения прилегающих грунта и асфальтового покрытия $0,180 \pm 0,027$ и $46,0 \pm 6,9$ частиц/см²-мин соответственно.

Картограмма распределения МАЭД гамма-излучения на расстоянии 0,1 м от поверхности сооружения 140 представлена на рисунке 3. Радиационное обследование отсеков сооружения 140 показало наличие превышения МАЭД гамма-излучения над контрольным уровнем, на поверхности отсеков 3-2, 3-5, 2, 6.

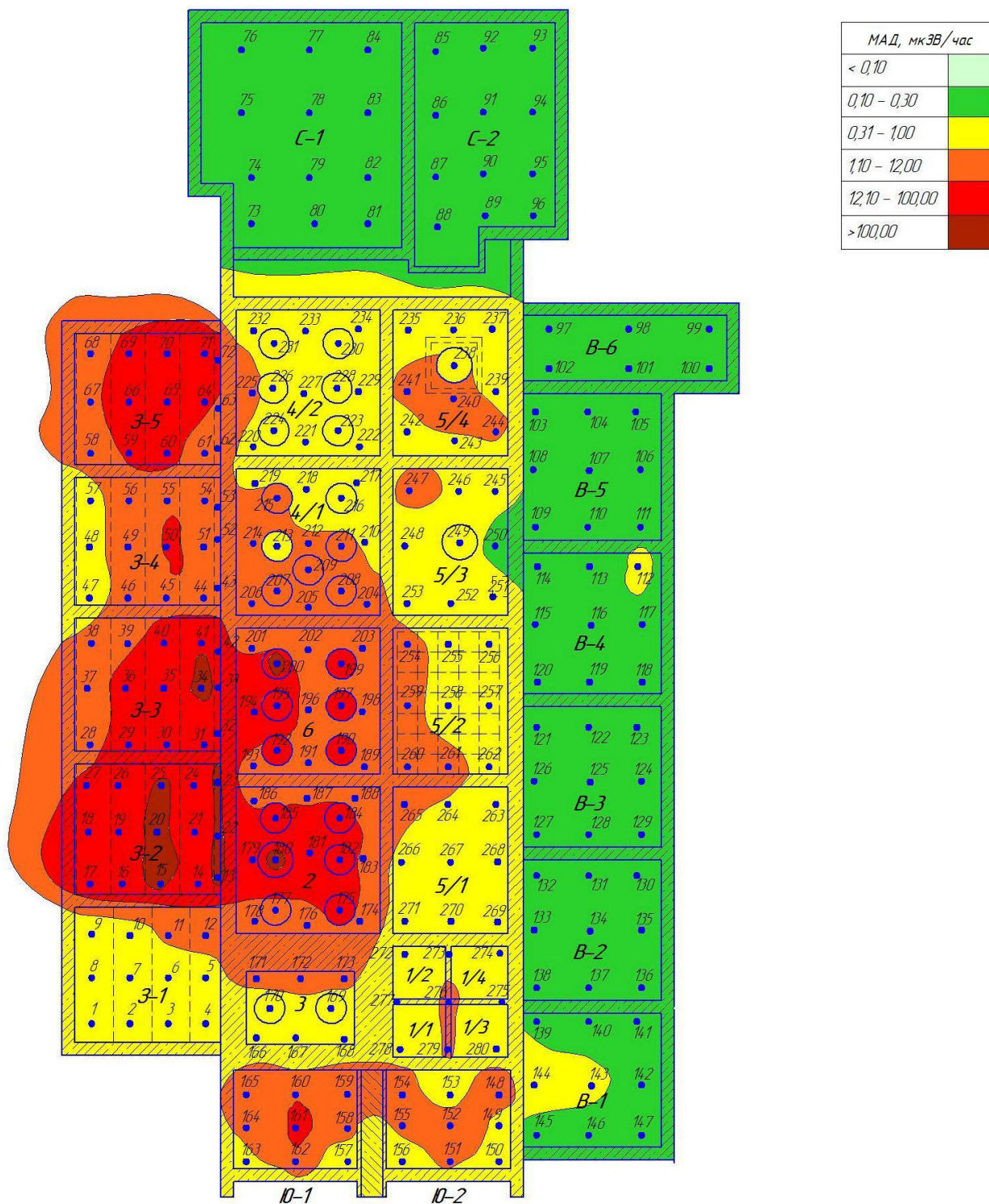


Рис. 3 – Картограмма распределения МАЭД гамма-излучения на расстоянии 0,1 м от поверхности сооружения 140

В результате измерений уровней МАЭД гамма-излучения по глубине погружения каротажного гамма-датчика через проходки, выполненные в массиве ТРО, зафиксировано максимальное значение 2,2 Зв/час в отсеке 2 на глубине ~ 3 м.

Максимальное значение МАЭД гамма-излучения от образца ТРО (грунт, фрагменты металла), извлеченного из тела хранилища, зафиксировано в отсеке 5/3 на глубине ~ 4 м (образец 4-5/3) и составляет 1,6 мЗв/час.

Уточняющее инженерное обследование сооружения 140 было выполнено

АО «ЦПТИ» в 2019-2020 гг., по результатам которого установлено, что строительные конструкции в основном находятся в ограниченно-работоспособном техническом состоянии. Обнаруженные дефекты в будущем могут оказать влияние на несущую способность строительных конструкций сооружения 140.

По результатам расчетов и оценки остаточного ресурса срока службы сооружения до прогнозируемого, в соответствии с ГОСТ 31927-2011, перехода его в аварийное состояние составит для основного хранилища 67 лет, для пристроенных отсеков 47 лет.

В 2020 г. над сооружением 140 созданы дополнительные системы сбора и отведения атмосферных осадков и талых вод в существующую ливневую канализацию.

В 2023-2024 гг. планируется продолжить работы и выполнить оценку радиационного воздействия сооружения 140 на население и окружающую среду, в рамках которой произвести следующие работы:

- обследование площадки размещения (бурение кустов разведочных скважин, опытно-фильтрационные работы, лабораторные исследования грунтов и подземных вод, режимные наблюдения за уровнями подземных вод);
- разработка региональной геофильтрационной модели по материалам выполненных изысканий и данным ОМСН;
- разработка детальной геофильтрационной и геомиграционной модели площадки размещения;
- прогнозные расчеты по оценке радиационного воздействия хранилища сухих высокоактивных отходов (сооружение 140) на население и окружающую среду;
- обоснование мероприятий по предотвращению миграции радионуклидов;
- разработка рекомендаций и предложений по дальнейшей эксплуатации сооружения 140.

Таким образом, в ходе выполнения настоящей работы показаны выполненные и планируемые мероприятия по обоснованию целесообразности захоронения ТРО, размещенных в сооружении 140, в месте нахождения. При этом принятие решения об отнесении размещенных РАО к особым РАО или удаляемым РАО отложено до 30.11.2025 г.

Список литературы

1. Абалкина И.Л., Барчуков В.Г., Бочкарев В.В., Ведерникова М.В., Дорогов В.И., Кочетков О.А., Крышев И.И., Линге И.И., Панченко С.В., Савкин М.Н., Уткин С.С. *Научно-техническое пособие по подготовке обосновывающих материалов для принятия решения об отнесении радиоактивных отходов к особым радиоактивным отходам. Версия 2.0.* – М., 2014, 157 с.
2. Линге И. И., Савкин М. Н., Абалкина И.Л., Дорогов В.И., Уткин С.С., Ведерникова М. В., Курындина Л.А., Крышев И. И., Бочкарев В.В., Непейново М.А., Щадилов А.Е., Репин В.С., Мокров Ю.Г., Кочетков О.А., Барчуков В.Г. *Подходы к оценке и сопоставлению доз, рисков и затрат для целей обоснования отнесения РАО к особым РАО.* Препринт № ИБРАЕ-2013-06. – М.: ИБРАЭ РАН, 2013, 38 с.

Сравнительная характеристика изоляционных свойств природных глинистых материалов как компонента инженерных барьеров безопасности при захоронении/хранении РАО

Тюпина Е.А.¹, Крупская В.В.^{2,3}, Закусин С.В.², Роцин М.О.², Ильина О.А.³, Вознесенский Е.А.⁴

¹– Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева
(РХТУ им. Д.И. Менделеева), Москва, Россия,
e-mail: tk1972@mail.ru

²– Институт геологии рудных месторождений, петрографии, минералогии и геохимии
Российской академии наук (ИГЕМ РАН), Москва, Россия

³– Институт проблем безопасного развития атомной энергетики
Российской академии наук (ИБРАЭ РАН), Москва, Россия

⁴– Институт геоэкологии им. Е.М. Сергеева Российской академии наук (ИГЭ РАН), Москва, Россия

Аннотация. В данной работе рассмотрены основные характеристики глинистых материалов (емкость катионного обмена и коэффициент фильтрации), которые определяют изоляционные характеристики глинистых барьеров безопасности при захоронении радиоактивных отходов. Показано, что происходит существенное снижение изоляционных свойств глинистых материалов и их смесей с уменьшением содержания монтмориллонита.

Ключевые слова: бентонит, каолин, хранилища РАО, инженерные барьеры безопасности.

Comparative characteristics of the insulating properties of natural clay materials as a component of engineering safety barriers in the disposal/storage of radioactive waste

Tyupina E.A.¹, Krupskaya V.V.^{2,3}, Zakusin S.V.², Roshchin M.O.², Ilina O.A.³, Voznesensky E.A.⁴

¹ – D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia, Moscow, Russia

² – Institute of Geology of Ore Deposits, Petrography, Mineralogy and Geochemistry RAS, Moscow, Russia

³ – Nuclear Safety Institute RAS, Moscow, Russia

⁴ – Sergeev Institute of Environmental Geoscience RAS (IEG RAS), Moscow, Russia

Abstract. This paper discusses the main characteristics of clay materials (cation exchange capacity and filtration coefficient), which determine the insulating characteristics of clay safety barriers in the disposal of radioactive waste. It is shown that there is a significant decrease in the insulating properties of clay materials and their mixtures with a decrease in the content of montmorillonite.

Keywords: bentonite, kaolin, nuclear waste repositories, engineering safety barriers.

Введение

В настоящее время в Российской Федерации является актуальным вопрос выбора барьерного материала для изоляции РАО в связи с проектированием пункта глубинного захоронения радиоактивных отходов (ПГЗРО) в Нижнеканском массиве [1-3]. В большинстве зарубежных проектов и концепций предусматривается создание инженерных барьеров безопасности (ИББ) на основе бентонитовых глинистых материалов как одних из самых стабильных в течение геологических периодов времени [4]. Однако, в российской практике был опыт применения в качестве основного компонента барьерных смесей каолиновых глин [5-6], в силу своей доступности, дешевизны и высокой насыпной плотности.

Основными функциями материалов ИББ являются ограничение контакта техногенных радионуклидов с подземными водами и предотвращение/задержка их миграции в окружающей среде. Данные требования могут быть обеспечены за счет использования определенных видов глин, обладающих специфическими свойствами (высокая адсорбционная способность, низкая водопроницаемость, высокая набухаемость), связанными с особенностями их строения и структуры.

В данной работе рассмотрены основные характеристики глинистых материалов, которые могут использоваться для создания ИББ при выводе из эксплуатации ядерно- и радиационно-опасных объектов при разработке хранилищ/захоронений для РАО. Для достижения данной цели были изучены глинистые материалы на основе бентонита, каолинита и их смесей, проведен гранулометрический и минеральный анализы, определение коэффициента фильтрации и показатели емкости катионного обмена.

Экспериментальная часть

Для проведения исследований в рамках данной работы были выбраны образцы различных глинистых материалов: бентонитовые глины месторождения 10-й Хутор (Хакассия), каолиновые глины м-я Кантатское (Красноярский край), а также смеси на их основе с различным соотношением компонентов.

Рентгенодифракционные картины для дальнейшего количественного расчета минерального состава были получены при помощи рентгеновского дифрактометра Ultima-IV компании Rigaku (Cu-K α детектор D/Tex-Ultra, область сканирования 3-65 $^{\circ}$ 2 θ). Количественный минеральный анализ проводился методом Ритвельда в программном пакете Profex [7]. Определение влажности проводилось весовым способом по [8]. Емкость катионного обмена (ЕКО) определяли по адсорбции триэтилентетраминового комплекса меди (II) (Cu-trien) [9]. Коэффициент фильтрации определяли в ячейках фиксированного объема [2].

Результаты и обсуждение

Выбранные для исследования образцы представляют собой глинистые материалы с различным минеральным составом, в которых содержание монтмориллонита варьирует от 19 до 74%, каолинита – от 0 до 52% [10].

Одной из важнейших характеристик глин, является емкость катионного обмена (ЕКО), которая показывает общее количество катионов на 100 г породы, удерживаемых глиной и способных к обмену с катионами контактирующей жидкой фазы. Данная характеристика отвечает за сорбционную емкость глинистых материалов, в том числе и по отношению к радионуклидам.

На рисунке 1 представлена зависимость величины емкости катионного обмена и коэффициента фильтрации от содержания в образцах глинистого минерала – монтмориллонита (ММТ). Для всех бентонитовых глин величина ЕКО составляет 80-110 мг-экв/г. При этом наблюдается резкое снижение ЕКО при уменьшении содержания набухающих глинистых минералов – минералов группы смектита в смесях до минимального значения 30 мг-экв/г для чистого каолина. Коэффициент фильтрации также показывает очевидную зависимость от содержания монтмориллонита.

Набухание является базовым свойством, определяющим гидроизоляционные свойства глинистых материалов ИББ и определяется содержанием монтмориллонита (ММТ), то есть глинистого минерала, единственно способного к внутрикристаллическому набуханию, что определяется особенностями его строения (строения слоя и межслоя, заряда слоя). При одинаковых значениях сухой плотности коэффициент фильтрации будет значительно снижаться с увеличением содержания набухающих глинистых минералов – смектитов (монтмориллонитов) и смешанослойных минералов, в составе которых есть смектитовые пакеты (слой + межслой), что мы и наблюдаем на рис. 1.

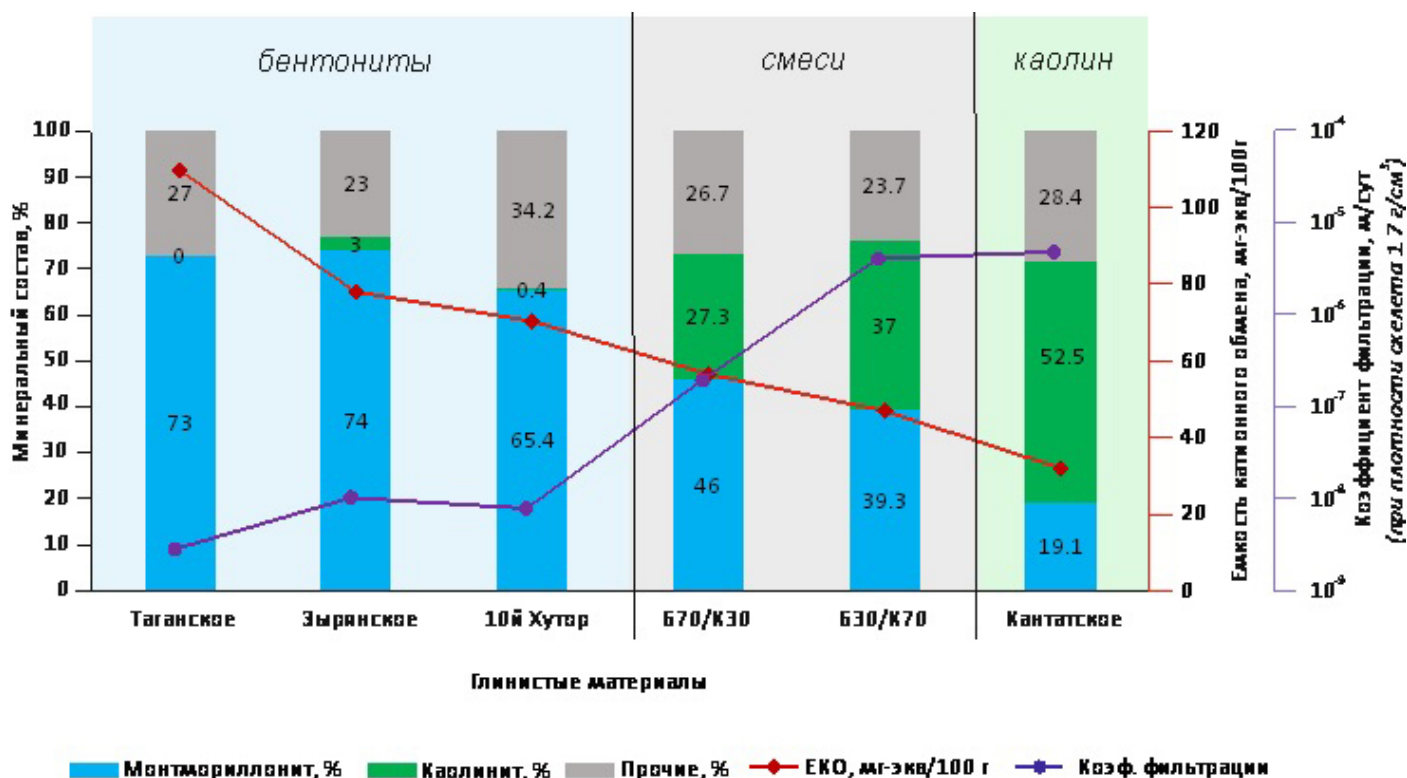


Рис. 1 – Влияние минерального состава на показатели емкости катионного обмена и коэффициента фильтрации

Однако в методиках определения коэффициента фильтрации и набухаемости есть некоторые неопределенности. Так, например, развитие давления и деформаций набухания, которое определяется проницаемостью материала и контролируется соотношением количества связанной воды и воды переходного типа (прежде всего, осмотической) определяется не только пористостью, диаметром преобладающих пор и начальной влажностью, но и существованием вблизи контейнера температурного градиента, который может изменять распределение напряжений в результате термоосмоса – миграции влаги разного типа, роль которого необходимо исследовать дополнительно.

Также, имеющаяся сегодня информация о возможных величинах давления набухания в уплотненных бентонитах и его связи с пористостью системы совершенно ненадежны. Проблема в том, что все данные получены при испытаниях в жестких устройствах типа одометра, для которых полное отсутствие эффекта пристенной миграции жидкости при увлажнении никак не доказано, а лишь декларируется. Между тем, даже небольшой вклад такой миграции в общее движение влаги может привести к огромным искажениям давлений набухания. Необходим другой методический подход, учитывающий это явление. Кроме того, само развитие набухания может сильно замедлить или даже практически прекратить миграцию влаги в сторону контейнера с сопутствующим изменением напряженно-деформированного состояния материала, а поэтому расчеты, исходящие из равномерного «насыщения» бентонита влагой требуют дополнительной экспериментальной проверки.

Так же, анализируя данные рис.1, мы видим повышение коэффициента фильтрации при снижении содержания монтмориллонита, при этом он для образца чистого каолина имеет максимальное значение 10^{-6} м/сут и на 2-3 порядка выше, чем для чистого бентонита.

Из проведенных исследований видно, что наилучшими характеристиками обладают бентониты, несколько худшими свойствами – смеси на основе бентонита и каолина, и самые низкие изоляционные свойства показали материалы на основе каолиновых глин. Следует отметить, что даже те изоляционные показатели, которые были получены для каолиновых глин обусловлены присутствием в их составе минералов группы смектита, а также пакетов смектита в составе смешанослойных минералов ряда каолинит-смектит.

Таким образом, можно сделать вывод, что добавление каолина в бентонит при изготовлении барьерной смеси значительно снизит качество барьера при его эксплуатации.

Окончательный выбор рецептур барьерных смесей должен быть основан на требованиях конкретного объекта с учетом геологической и гидрогеологической ситуации, состава грунтовых вод, микробиологических и геохимических процессов, состава радионуклидов и других материалов инженерных барьеров, особенностей конструкции объекта и т.д.

Список литературы

1. Сафонов А. В., Болдырев К. А. Исследование биогенных процессов в ПИЛ ПГЗРО в Нижнеканском массиве // Радиоактивные отходы — 2019 — № 2 (7) — С 92—100.
2. Крупская В. В., Закусин С. В., Лехов В. А. и др. Изоляционные свойства бентонитовых барьерных систем для захоронения радиоактивных отходов в Нижнеканском массиве // Радиоактивные отходы. — 2020. № 1 (10). — С. 35 – 55.
3. Дорофеев А. Н., Большов Л. А., Линге И. И., Уткин С. С., Савельева Е. А. Стратегический мастер-план исследований в обоснование безопасности сооружения, эксплуатации и закрытия пункта глубинного захоронения радиоактивных отходов // Радиоактивные отходы. — 2017. — № 1. — С. 32 — 41.
4. Цебаковская Н.С. Обзор зарубежных практик захоронения ОЯТ и РАО / Цебаковская Н.С., Уткин С.С., Капырин И.В. и др. – М.: Изд-во «Комтехпринт», 2015. – 208 с.
5. Павлюк А. О. и др. Опыт вывода из эксплуатации промышленного уранграфитового реактора ЭИ-2 АО «ОДЦ УТР» // Материалы V Международной конференции «Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека». – Томск, 13–16 сентября 2016 г. – С. 508–512.
6. Мартынов К. В., Жаркова В. О., Захарова Е. В. Компрессионные и фильтрационные свойства барьерных материалов // Глины и глинистые минералы: VI Российская Школа по глинистым минералам *Argilla Studium* — 2019 и IV Российское Собрание по глинам и глинистым минералам ГЛИНЫ — 2019; Материалы докладов. М.: ИГЕМ РАН, 2019. С. 265—268.
7. Döbelin N., Kleeberg R. Profex: a graphical user interface for the Rietveld refinement program BGMN // *Journal of Applied Crystallography*. 48. 2015 – pp. 1573-1580.
8. ГОСТ 5180-2015 Грунты. Методы лабораторного определения физических характеристик.
10. Jozefaciuk G., Bowanko G. Effect of acid and alkali treatments on surface areas and adsorption energies of selected minerals // *Clays and Clay Minerals*. – 2002. Volume 50, №. 6. – P. 771 – 783.
11. Семенкова А.С., Ильина О.А., Крупская В.В., Закусин С.В., Доржиева О.В., Покидько Б.В., Романчук А.Ю., Калмыков С.Н. Сорбция радионуклидов на глинистых минералах – компонентах инженерных барьеров безопасности. *Вестник Московского Университета. Серия 2. Химия*, 62(5) 2021. Стр. 425 – 434.

Актуальные задачи обоснования выбора барьерных глинистых материалов для объектов хранения и консервации радиоактивных отходов

*Ильина О.А.¹, Уткин С.С.¹, Крупская В.В.^{1,2}, Тюпина Е.А.³, Винокуров С.Е.⁴,
Калмыков С.Н.⁵, Романчук А.Ю.⁵*

¹– Институт проблем безопасного развития атомной энергетики Российской академии наук (ИБРАЭ РАН), Москва, Россия

²– Институт геологии рудных месторождений, петрографии, минералогии и геохимии Российской академии наук (ИГЕМ РАН), Москва, Россия

³– Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева (РХТУ им. Д.И. Менделеева), Москва, Россия

e-mail: tk1972@mail.ru

⁴– Институт геохимии и аналитической химии им. В. И. Вернадского Российской академии наук (ГЕОХИ РАН), Москва, Россия

⁵– МГУ им. М. В. Ломоносова, Москва, Россия

Аннотация. Глины – доступное и широко распространенное на территории России сырье. Обладая гаммой уникальных характеристик и практически неограниченным сроком эксплуатации, глинистые материалы активно используются для создания инженерных барьеров безопасности при консервации и хранении РАО. Только правильный выбор глинистых материалов и технологий их применения обеспечивают высокое качество и надежность инженерных барьеров безопасности (ИББ). Гарантировать качество ИББ не возможно без развития научно-технологических основ и формирования единой отраслевой системы по обоснованию выбора и применения барьерных глинистых материалов для обеспечения долговременной радиационной и экологической безопасности.

Ключевые слова: глинистые материалы, инженерные барьеры безопасности, нормативно-технические документы, управление знаниями, ВЭ ЯРОО, захоронение РАО, консервация особых РАО

Current issues of justification of barrier clay materials selection for disposal and conservation of radioactive waste

*Ilina O.A.¹, Utkin S.S.¹, Krupskaya V.V.^{1,2}, Tyupina E.A.³, Vinokurov S.E.⁴,
Kalmykov S.N.⁵, Romanchuk A.Yu.⁵*

¹– Nuclear Safety Institute Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

²– Institute of Geology of Ore Deposits, Petrography, Mineralogy and Geochemistry Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

³– D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia, Moscow, Russia

e-mail: tk1972@mail.ru

⁴– Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry of Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

⁵– Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russia

Abstract. Clays are an affordable and widespread raw material in Russia. Possessing a range of unique characteristics and practically unlimited service lifetime, clay materials are ubiquitously used in construction of engineered safety barriers for conservation and disposal of radioactive waste. Only the correct selection of clay materials and technologies for their application provide high quality and reliability of engineered barriers. Deep scientific and technological basis and the definition of an unified industry system aimed to justify the selection and application of barrier clay materials to ensure the long-term radiation and environmental safety foundations is required.

Keywords: clay materials, radioactive waste disposal, engineering safety barriers, regulatory and technical documents, knowledge management, decommissioning, conservation of radioactive waste

Введение

Федеральная целевая программа «Обеспечение ядерной и радиационной безопасности на 2016-2020 годы и на период до 2030 года» (ФЦП ЯРБ-2) ставит одной из задач вывод из эксплуатации ядерно- и радиационно опасных объектов (ЯРОО) и ликвидацию пунктов временного хранения РАО. В перспективе до 2030 года в рамках мероприятий ФЦП ЯРБ-2 предстоит провести работы по строительству двух пунктов приповерхностного захоронения (ППЗРО) РАО 3, 4 классов, консервации пунктов размещения особых РАО (перевод ПРОРАО в ПКОРАО): пульпохранилищ ПХ-1,2 АО «СХК», водоема В-17 ФГУП «ПО «Маяк», хвостохранилища ПАО «НЭХК», емкостей-хранилищ РХЗ ФГУП «ГХК», а также семи промышленных уран-графитовых реакторов (ПУТР).

В качестве инженерных барьеров безопасности (ИББ) для ограничения распространения радионуклидов во вмещающие породы: буферные материалы, подстилающие и покрывающие экраны, целесообразно использование барьерных глинистых материалов (БГМ) [1]. Указанные работы ФЦП ЯРБ-2, очевидно, потребуют значительных объемов БГМ и применения специальных технологий сооружения ИББ. Ожидается кратное увеличение ежегодного объема их применения. Если рассматривать сглаженные по годам прогнозы, то ориентировочный рост объемов требуемых глинистых материалов увеличится в 4 раза, а в отдельные годы до 6 раз.

В настоящее время отмечается ряд проблем и несоответствий в вопросе выбора, обоснования и применения глинистых материалов для создания ИББ ПКОРАО, ПУТР и ППЗРО.

Выбор барьерных глинистых материалов и технических решений по конструкции и сооружению инженерных барьеров на стадии проектирования

Поскольку федеральные нормы и правила, а также руководства по безопасности при использовании атомной энергии содержат только общие требования к обеспечению безопасности системой ИББ (пп. 5, 17, 19, 24-28, 60 НП-055-14; пп. 3, 6 НП-058-14; пп. 8, 18-21, 38 НП-069-14), проектные организации при выборе состава и характеристик материалов для создания ИББ опираются на требования иных нормативных документов, ГОСТ, ТУ.

В силу отсутствия специализированных нормативно-технических документов по глинистым материалам для создания ИББ, речь идет о нормативных документах «не из атомной отрасли». В частности, ГОСТ 25100-2011 «Грунты. Классификация», ГОСТ 7032-75 «Глина бентонитовая для тонкой и строительной керамики», ГОСТ 28177-89 «Глины формовочные бентонитовые. Общие технические условия», ТУ 39-0147001-105-93 «Глинопорошки для буровых растворов». В данных стандартах содержатся специальные методики испытаний для набухающих смектитовых глин, но показатели качества продиктованы технологическим процессом использования глинистого материала в металлургической, строительной и литейной отраслях промышленности.

Отдельные производители материалов для создания ИББ разрабатывают собственные ТУ на свою продукцию, включая в них показатели качества и методики измерения, необходимые для решения локальных задач. Процедуры согласования или сертификации ТУ на БГМ в атомной отрасли не предусмотрено. Данные ТУ сложно найти в открытом доступе, проектные организации слабо осведомлены об их существовании.

Одновременно в отрасли накоплен значительный опыт по применению глинистых материалов при строительстве, рекультивации, консервации объектов размещения и захоронения различных типов РАО, который может использоваться проектировщиками как референция. Которая, однако, трудно поддается тиражированию в связи с тем, что технологические решения, как правило, являются объектно-ориентированными, а информация об ее опыте применения не концентрируется в едином источнике знаний (центре компетенций). В результате использование референций требует дополнительных обоснований и может не соответствовать уровню науки, техники и производства как уже достигнутому в отрасли, так и современному международному. Для каждого создаваемого объекта обоснование долговременной безопасности должно подтвердить, что выбранные технические решения по созданию ИББ апробированы, подкреплены исследованиями и испытаниями для проверки выполнения ИББ своих функций в условиях объекта захоронения РАО после его закрытия.

Можно сделать вывод о том, что необходимы единые специализированные источники информации по составу и свойствам барьерных глинистых материалов. Накопленный опыт, в совокупности с упомянутыми специализированными источниками, позволит сформировать документарную базу знаний. На рис. 1 представлена структура нормативных правовых актов (НПА) и нормативно-технической документации (НТД) для объектов консервации и захоронения РАО. Применительно к БГМ отсутствуют документы, выделенные на схеме, и для устранения данных нормативных несовершенств важно участие широкого круга специалистов из представителей научных организаций, надзорных и регулирующих органов, проектных и эксплуатирующих организаций, производителей материалов.



Рис. 1 – Структура НПА и НТД для объектов консервации и захоронения РАО

Обоснование выполнения глинистыми материалами своих функций в течение установленного срока на стадии подготовки отчета обоснования безопасности (ООБ)

Для разработки ООБ необходимо, в частности, собрать количественные значения критериев выбора материалов ИББ. В РБ-117-16 приведены следующие требуемые показатели: пористость, плотность, коэффициент фильтрации, коэффициент сорбционного распределения и коэффициент диффузии основных дозообразующих (для данного ПЗРО) радионуклидов в материале. Данное Руководство также описывает способы, которые могут использоваться для получения численных данных по указанным показателям для оценки долговременной безопасности. К ним относятся: прямые или косвенные измерения, т.е. проведение научно-исследовательских работ (НИР), аппроксимация или способ приближений и прогнозов. Безусловно, между этими путями существует отличие в точности. Сложность в определении и обосновании количественных критериев выбора БГМ была продемонстрирована на заседании НТС №5 Госкорпорации «Росатом» 02.07.2021 г., где в докладах участников наблюдались существенные различия (в несколько порядков) в результатах определения коэффициента фильтрации, коэффициента сорбционного распределения и коэффициента диффузии разными методами.

Другим важным аспектом подтверждения долговременной безопасности является обоснование минимальных сроков, в течение которых каждый из барьеров должен сохранять проектные свойства, т.е. обеспечивать свои функции в прогнозируемых условиях захоронения. Обоснование должно быть подкреплено результатами исследований и расчетного моделирования, подтверждающих заявленные характеристики БГМ с учетом конструкции ПЗРО, геохимических особенностей создаваемого ПЗРО и планируемого морфологического состава РАО с учетом нормального и альтернативных сценариев эволюции.

Решение данных задач и совершенствование процесса подготовки ООБ можно осуществить с помощью создания центра компетенций по глинистым материалам и обеспечения научного сопровождения процесса обоснования выбора глинистых материалов на объектах ВЭ ЯРОО, консервации и захоронения РАО [2].

Оценка состояния инженерных барьеров из глинистых материалов на этапах сооружения, эксплуатации, закрытия и институционального контроля после закрытия ПЗРО

В настоящее время материалы для создания ИББ относятся к категории общераспространенной строительной продукции 08.12 «Гравий, песок, глины и каолин» к которой не предъявляются требований к обеспечению функций безопасности. Представляется целесообразным включение материалов для создания ИББ в категорию, подлежащую обязательной сертификации. Это неразрывно связано с появлением нормативных документов по глинистым материалам для создания ИББ, о разработке которых шла речь выше. Наличие специальных и развернутых требований позволит наладить систему оценки соответствия и контроля качества на всех этапах создания и функционирования ИББ. Требования к проведению контроля качества материалов ИББ также указаны в пп. 60, 163 НП-055-14 и п. 159 НП-100-17.

Предлагаемые мероприятия

Для устранения описанных проблем и несоответствий в вопросе выбора, обоснования и применения барьерных глинистых материалов предлагается сформировать Программу научно-технологического обеспечения работ, в ходе реализации которой решить следующие задачи:

1. Выделить основные свойства глинистых материалов и необходимые и достаточные показатели их качества для обеспечения долговременной радиационной и экологической безопасности.
2. Стандартизировать методики испытаний, провести эксперименты по определению характеристик различных глинистых материалов и создать информационную базу данных в области БГМ, осуществить подготовку к созданию демонстрационных стендов для отработки технологий создания ИББ и подтверждения выполнения ИББ своих функций.
3. Сформировать рекомендации по проведению оценки соответствия и контроля качества БГМ на этапах создания и функционирования ИББ, систему управления знаниями (СУЗ) в области БГМ для создания ИББ, подготовить руководящие документы центра компетенций по БГМ.

Ожидаемые результаты

Создание научно-технологических основ для обеспечения работ по обоснованию выбора и применения барьерных глинистых материалов для различных объектов ВЭ ЯРОО, консервации и захоронения РАО позволят:

1. Развить нормативную базу по проектированию и созданию инженерных барьеров на основе глинистых материалов, удовлетворяющих потребностям по ВЭ ЯРОО, консервации и захоронению РАО в перспективе до 2050 г.
2. Создать систему управления знаниями в области барьерных глинистых материалов для разработки конструкций и созданию ИББ с возможностью проведения профильными экспертами предпроектной экспертизы технических решений, оказания консультационно-образовательных услуг по повышению квалификации специалистов атомной отрасли.
3. Повысить научно-технический уровень подготовки проектов ПЗРО и отчетов по обоснованию безопасности за счет обеспечения информацией о характеристиках, способах и технологиях применения БГМ для создания ИББ, а также объемах и методах контроля качества выполнения работ.
4. Повысить качество и сократить сроки проектных работ за счет применения унифицированных составов и технологий создания барьеров безопасности на основе БМГ.
5. Сократить стоимость создания и функционирования ИББ на основе БГМ за счет: (1) снижения стоимости и сроков проектирования, подготовки ООБ и строительства благодаря использованию унифицированных и научно обоснованных характеристик и технологий создания ИББ из БГМ; (2) снижения финансовых рисков на стадии эксплуатации и институционального контроля ИББ за счет снижения вероятности возникновения событий, при которых потребуется ремонт, восстановление или создание новых инженерных барьеров и возмещение ущерба, нанесенного населению и окружающей среде миграцией радионуклидов.

Список литературы

1. Крупская В.В., Бирюков Д.В., Белоусов П.Е., Лехов В.А., Романчук А.Ю., Калмыков С.Н. Применение природных глинистых материалов для повышения уровня ядерной и радиационной безопасности объектов ядерного наследия // Радиоактивные отходы. – 2018. – 2 – С. 30 – 43
2. Линге И.И., Иванов А.Ю., Казаков К.С. О системных мерах по расширению применения глиняных материалов на объектах атомной отрасли // Радиоактивные отходы. – 2018 – № 4 (5). – С. 33 – 41.

Керамические матрицы для иммобилизации отходов пирохимической переработки ОЯТ

Матвеевко А.В., Варлаков А.П., Жеребцов А.А., Германов А.В., Петров В.Г.

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, г. Москва, Россия

e-mail: avd.msk11@mail.ru

²– АО «ВНИИНМ», г. Москва, Россия

³– АО «Прорыв», г. Москва, Россия

Аннотация. Радиоактивные отходы, образующиеся в результате пирохимической переработки отработавшего ядерного топлива, представляют собой электролит (смесь LiCl-KCl) с продуктами деления. Такие солевые отходы с трудом могут быть иммобилизованы в обычных матрицах, таких как цемент и стекло. В нашей работе мы исследовали образцы керамических материалов на основе природной бентонитовой глины в качестве матриц для радиоактивных отходов в виде эвтектики LiCl-KCl. Охарактеризованы фазовый состав образцов, их механическая, гидролитическая и радиационная стойкость.

Ключевые слова: пирохимия, радиоактивные отходы, иммобилизация, бентонит, керамические матрицы, отработанное ядерное топливо.

Ceramic matrices for immobilization of waste from pyrochemical processing of spent nuclear fuel

Matveenko A.V., Varlakov A.P., Zherebtsov A.A., Germanov A.V., Petrov V.G.

¹– Lomonosov Moscow State University

e-mail: avd.msk11@mail.ru

²– JSC «VNIINM», Moscow, Russia

³– JSC «Proryv», Moscow, Russia

Abstract. Radioactive waste resulting from the pyrochemical reprocessing of spent nuclear fuel is an electrolyte (LiCl-KCl mixture) with fission products. Such salt waste can hardly be immobilized in common matrices such as cement and glass. In our work, we studied samples of ceramic materials based on natural bentonite clay as matrices for LiCl-KCl eutectic radioactive waste. The phase composition of the samples, their mechanical, hydrolytic and radiation resistance are characterized.

Keywords: pyrochemical process, radioactive waste, immobilization, bentonite, ceramic matrices, spent nuclear fuel.

В настоящее время все еще наиболее разработанным является метод остекловывания высокоактивных радиоактивных отходов (ВАО) для иммобилизации радионуклидов, их хранения и дальнейшего захоронения. В частности, боросиликатные стекла остаются основной формой, используемой для иммобилизации ВАО [1], однако многие страны активно разрабатывают альтернативные стекланным матрицы [2], в основном, для особых потоков радиоактивных отходов (РАО). В пирохимической или комбинированной технологии переработки смешанного нитридного уран-плутониевого отработавшего ядерного топлива (СНУП ОЯТ) необходима конечная утилизация хлоридной смеси (ХС), представленной эвтектикой LiCl-KCl с включенными продуктами деления (ПД), а именно щелочно-земельными (ЩЗМ) и частично редкоземельными металлами (РЗМ). Одна из главных альтернатив – использовать одно- или многофазную керамику, в которой радионуклиды могут быть включены в кристаллическую структуру [3]. Стеклокерамика, состоящая из кристаллов, диспергированных в остаточном стекле, также рассматривается и изучается, как потенциальная форма для иммобилизации подобных ВАО [4].

В качестве исходного материала для керамических материалов могут выступать природных глинистые минералы, которые становятся очень прочными при отжиге и способны удерживать ионы щелочных металлов благодаря своей слоистой структуре. Кроме того, подобные матричные материалы по своему химическому и фазовому составу является максимально близким к вмещающим породам в районе пункта захоронения, что обеспечивает снижение диффузии радионуклидов из матрицы в биосферу. На данный момент существует очень небольшое количество работ, к примеру [5 – 9], посвященных рассмотрению глинистых минералов именно в ключе матричных материалов.

Экспериментальная часть

В качестве материала матрицы использовали бентонитовую глину месторождения 10-й Хутор. В таблице 1 представлен состав имитатора отработанного электролита, включаемого в матрицу на основе бентонита.

Таблица 1 – Состав исследуемых образцов на основе бентонитовой глины

Название хлоридной смеси	Компоненты, масс. %					
	LiCl	KCl	CsCl	SrCl ₂	CeCl ₃ (аналог трехвалентных f-элементов)	ZrCl ₄ (ZrOCl ₂) (аналоги четырехвалентных f-элементов)
ХС1	40	50	10	-	-	-
ХС2	40	50	5	5	-	-
ХС3	40	50	3	3	4	-
ХС4	40	50	3	3	-	4

Синтез проводили по следующей схеме: операцию смешивания совмещают с измельчением компонентов матрицы путем их помола, отжиг спрессованных заготовок проводят в два этапа, первый из которых включает их нагревание со скоростью 10 – 20 °С/мин и выдержку в течение 4 часов при температуре 400 °С. Затем таблетки (диаметр 8 мм, толщина 2-3 мм) снова измельчают и перетирают для большей гомогенности с последующим таблетированием. Второй этап включает нагревание образцов со скоростью 10 – 20 °С/мин. до температуры 900 °С и выдержку при этой температуре в течение 12 часов.

Также исследовали введение в состав керамической матрицы на стадии смешивания кремнийсодержащих добавок (микрорекристаллический кремнезем, силикат натрия, AEROSIL 200) для снижения температуры синтеза и возможного улучшения механических свойств. Массовая доля добавок составляла 10 масс.%

Полученные образцы исследовали на радиационную стойкость (облучение электронами до дозы 10⁹ Гр), измеряли их механическую прочность, химическую устойчивость (скорость выщелачивания цезия, стронция, лития, калия, алюминия и кремния), термическую стойкость (нагрев до 500 °С) и морозостойкость.

Результаты и обсуждения

Облученные до максимальной величины поглощенной дозы порядка 10⁹ Гр (электроны) образцы не теряли своих структурных и прочностных показателей (таблица 2) по сравнению с необлученными образцами.

Таблица 2 – Прочность на сжатие (МПа) керамических образцов в ходе испытаний на радиационную стойкость

Образец	Поглощенная доза и тип излучения			
	Электроны			
	0	10 ⁷ Гр	10 ⁸ Гр	10 ⁹ Гр
Б+20%ХС1	55,2±8,2	52,3±6,1	50,1±7,7	44,3±6,4
Б+20%ХС2	51,3±7,3	41,5±8,4	48,3±6,8	39,9±5,7
Б+20%ХС3	60,0±5,6	54,3±7,5	53,8±6,4	47,7±6,1
Б+20%ХС4	57,4±6,9	59,2±5,8	56,0±5,8	49,3±7,3

Скорость выщелачивания, представленная в таблице 3, для всех компонентов, включая основные элементы матричного материала ниже 10⁻⁶ г/(см²·сут).

Таблица 3 – Скорость выщелачивания цезия, стронция, лития, калия, алюминия и кремния на 28 сутки эксперимента в зависимости от дозы облучения

Состав	Доза облучения	Скорость выщелачивания, г/(см ² ·сут)					
		Li	K	Al	Si	Cs	Sr
Б+ХС1	0	1,2·10 ⁻⁷	1,0·10 ⁻⁷	4,4·10 ⁻⁹	7,4·10 ⁻⁷	7,5·10 ⁻⁸	-
	10 ⁹ (электроны) Гр	1,1·10 ⁻⁷	2,1·10 ⁻⁷	3,7·10 ⁻⁹	5,6·10 ⁻⁷	6,9·10 ⁻⁸	-
Б+ХС2	0	3,6·10 ⁻⁷	1,2·10 ⁻⁷	1,0·10 ⁻⁸	3,9·10 ⁻⁷	6,6·10 ⁻⁸	9,1·10 ⁻¹⁰
	10 ⁹ (электроны) Гр	4,8·10 ⁻⁷	1,3·10 ⁻⁷	9,6·10 ⁻⁹	5,0·10 ⁻⁷	7,2·10 ⁻⁸	1,2·10 ⁻⁹
Б+ХС3	0	4,9·10 ⁻⁷	1,3·10 ⁻⁷	9,5·10 ⁻⁹	4,9·10 ⁻⁷	6,3·10 ⁻⁸	1,9·10 ⁻⁸
	10 ⁹ (электроны) Гр	5,2·10 ⁻⁷	1,9·10 ⁻⁷	1,4·10 ⁻⁸	5,1·10 ⁻⁷	9,1·10 ⁻⁸	2,2·10 ⁻⁸
Б+ХС4	0	3,1·10 ⁻⁷	1,2·10 ⁻⁷	9,9·10 ⁻⁹	4,1·10 ⁻⁷	8,1·10 ⁻⁸	3,8·10 ⁻⁹
	10 ⁹ (электроны) Гр	3,8·10 ⁻⁷	9,8·10 ⁻⁸	9,6·10 ⁻⁹	4,7·10 ⁻⁷	6,2·10 ⁻⁸	4,4·10 ⁻⁹

Таблица 4 – Показатели механической прочности (МПа) на сжатие керамических образцов до и после термических нагрузок

	Состав			
	Б+ХС1	Б+ХС2	Б+ХС3	Б+ХС4
Контрольный образец	55,2±8,2	51,3±7,3	60,0±5,6	57,4±6,9
Нагрев до 500 °С без облучения	56,4±6,7	50,9±6,9	60,2±6,2	58,1±6,3
Нагрев до 500 °С после облучения электронами до дозы 10 ⁹ Гр	53,6±6,2	48,2±6,4	55,7±6,1	54,8±4,7

Таблица 5 – Показатели механической прочности на сжатие (МПа) керамических образцов в ходе испытаний на морозостойкость до и после облучения

Состав	Результаты измерений		
	Контроль	в ходе испытаний на морозостойкость	
		Без облучения	10 ⁹ Гр
Б+20%ХС1	55,2±8,2	55,3±7,4	45,2±5,3
Б+20%ХС4	51,3±7,3	49,7±4,8	42,0±5,2
Б+30%ХС1	60,0±5,6	58,2±3,6	49,8±4,3
Б+30%ХС4	57,4±6,9	56,1±5,1	48,2±5,4

В таблицах 4 и 5 приведены результаты определения термической стойкости и морозостойкости. Из приведенных данных видно, что механическая прочность образцов не изменилась после выдержки в течение 24 часов при 500 °С и после 30 циклов замораживания и оттаивания (–40 ... +40 °С).

Выводы

Таким образом, в работе показана принципиальная возможность использования бентонитовой глины, в том числе с введением кремнийсодержащих добавок, в качестве матричного материала для иммобилизации ВАО от пирохимической переработки ОЯТ. Все наиболее важные характеристики синтезированных компаундов свойства удовлетворяют требованиям для матриц, регламентированным согласно ГОСТ Р 52126-2003.

Список литературы

1. C.M. Jantzen, M.I. Ojovan (Ed.), *Handbook of Adv. Radioactive Waste Conditioning Tech.*, Woodhead Publishing Series in Energy, Cambridge, 2011, pp. 230 – 292.
2. W.J. Weber, A. Navrotsky, S. Stefanovsky, E.R. Vance, E. Vernaz, *MRS Bull.* 34 (2009) 46 – 53.
3. М.Ю. Каленова, А.В. Ананьев, А.В. Дмитриева, А.М. Коцеев, О.Н. Будин, А.С. Щепин, И.В. Кузнецов. *Вопросы радиационной безопасности.* 2017. № 1. 2017. С.18 – 26.
4. J.S. McCloy, A. Goel, *MRS Bull.* 42 (2017) 233 – 238.
5. R.O. Abdel Rahman et al./*Chemical Engineering Journal* 228 (2013) 772–780
6. P.K. Sinha et al./*Annals of Nuclear Energy* 36 (2009) 620–625
7. Варлаков А.П., Жеребцов А.А., Петров В.Г., Капустин В.В., Варлакова Г.А., Власова И.Э., Калмыков С.Н. *Вопросы радиационной безопасности.* 2018. № 3 (91). С. 13-20.
8. Ковалев В.П., Богуславский А.Е., Бульбак Т.А., Полянский О.П., Разворотнева Л.И., Ревердатто В.В., Серёткин Ю.В., Шведенкова С.В. Патент на изобретение RU 2361299 С1, 10.07.2009. Заявка № 2007139474/06 от 25.10.2007.
9. Муратов О.Э., Царева С.М. *Экология промышленного производства.* 2012. № 4. С. 43-55.
10. ГОСТ Р 52126-2003

Сорбция и пространственное распределение радионуклидов на минералах трещиноватых пород Нижнеканского гранитоидного массива

Родионова А.А.^{1,2}, Петров В.Г.¹, Власова И.Э.¹

¹– Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, г. Москва, Россия

e-mail: skigirla@mail.ru

²– Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН, г. Москва, Россия

Аннотация. В работе представлены данные по коэффициентам распределения (K_d) ^{137}Cs , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{241}Am на трещиноватом образце горных пород экзоконтакта Нижнеканского гранитоидного массива. Изучено микрораспределение радионуклидов на минеральных фазах вмещающих пород в зоне трещиноватости. На основании методов сравнительного анализа радиограмм и РЭМ-изображений получены данные по относительной эффективности сорбции (ОЭС), которые позволили провести количественную оценку вклада отдельной минеральной фазы образца породы из зоны трещиноватости в сорбцию изученных радионуклидов. Отмечено, что наиболее эффективной минеральной фазой для удерживания цезия и стронция является вторичный минерал хлорит, заполняющий трещиноватые зоны в образце, с ОЭС равной 2. Сорбция на цеолите и полевых шпатах оказалась менее эффективной, с параметрами ОЭС ~ 1 . В случае сорбции америция было установлено его равномерное распределение на поверхности трещиноватого образца, что подтверждается схожими значениями ОЭС на представленных минеральных фазах.

Ключевые слова: сорбция, микрораспределение радионуклидов, трещиноватые породы, Нижнеканский гранитоидный массив, цифровая радиография.

Sorption and spatial distribution of radionuclides on minerals of fractured rocks of the Nizhnekansky granitoid massif

Rodionova A.A.^{1,2}, Petrov V.G.¹, Vlasova I.E.¹

¹– Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russia

e-mail: skigirla@mail.ru

²– V.I. Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry of RAS, Moscow, Russia

Abstract. The paper presents data on the distribution coefficients (K_d) of ^{137}Cs , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{241}Am on a fractured sample of rocks of exocontact zone of the Nizhnekansky granitoid massif. Microdistribution of radionuclides on mineral phases of the fractured sample was studied. Based on the methods of comparative analysis of radiograms and SEM-images, the data on relative sorption efficiency (RSE) were obtained, which made it possible to quantify the contribution of a separate mineral phase of the fractured rock sample to the sorption of the studied radionuclides. It was noted that the most effective mineral phase for cesium and strontium retention is the secondary mineral – chlorite filling the fractured zones in the sample (RSE = 2). The sorption of cesium and strontium on zeolite and feldspars was less effective with RSE parameters ~ 1 . Americium sorbed uniformly on the surface of the fractured sample, which is confirmed by similar RSE values on the mineral phases of the sample.

Keywords: sorption, microdistribution of radionuclides, fractured rocks, Nizhnekansky granitoid massif, digital autoradiography.

В настоящее время в России реализуется проект по созданию пункта окончательной изоляции радиоактивных отходов 1-ого и 2-ого класса на участке «Енисейский» в зоне экзоконтакта Нижнеканского гранитоидного массива (НГМ) на территории Красноярского края [1, 2]. Для обоснования безопасности хранилища предварительно планируется создание подземной исследовательской лаборатории, в которой особое внимание будет уделено проведению геохимических исследований, в т. ч. миграции радионуклидов в трещинных водах [3]. Ключевыми процессами, контролирующими миграцию радионуклидов в среде вмещающих пород, является процессы сорбции/десорбции, поэтому особое внимание уделяется изучению удерживающих свойств кристаллических пород. Исследование общих закономерностей сорбции радионуклидов породами должно быть дополнено пониманием роли отдельных минеральных фаз в удерживании мобилизованных компонентов отходов. Такая информация поможет проводить более детальное моделирование миграции радионуклидов в районе захоронения, так как доля минеральных фаз, преимущественно удерживающих те или иные радионуклиды, значительно варьирует в массиве. Особое значение представляют минеральные выделения зон трещиноватости, которые могут стать как основными путями миграции радионуклидов, так и зонами их удерживания в пористой матрице породы, выполненной тонкодисперсными минеральными фазами [4, 5].

Экспериментальная часть

Для изучения микрораспределения радионуклидов на поверхности породы с наличием трещиноватых зон был взят керн образца из скважины Р-11 участка «Енисейский» зоны экзоконтакта Нижнеканского гранитоидного массива с глубины 249 м. Образец представляет собой скарноид весьма сложного неоднородного состава. Керн диаметром 6,5 см был разрезан на диски толщиной 6 мм, которые были отшлифованы с одной стороны для проведения сорбции и дальнейшей радиографии. Для проведения сорбционных экспериментов были приготовлены растворы, имитирующие подземную природную воду участка «Енисейский». Состав раствора был следующим: Cl^- – 36 мг/л, SO_4^{2-} – 15 мг/л, CO_3^{2-} – 18 мг/л, HCO_3^- – 79 мг/л, Na^+ – 32,6 мг/л, K^+ – 3,9 мг/л, Mg^{2+} – 10,2 мг/л, Ca^{2+} – 18,5 мг/л, рН раствора 7-8, $I=0,01$ моль/л. Сорбция рассматривалась на примере радионуклидов ^{137}Cs , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{241}Am с концентрацией 10^{-9} М. Эксперименты проводились в пластиковой посуде при соотношении объема раствора к площади поверхности образца, равном ~ 1 мл/см², в статических условиях в течение времени, необходимого для установления равновесия. Концентрацию радионуклидов в растворах определяли методом жидкостной сцинтилляционной спектроскопии (Tri-Carb 2810 TR, Perkin Elmer).

Минеральный состав образца Р-11 был исследован на примере одного из дисков керна с применением растровой электронной микроскопии с рентгено-спектральным микроанализом (РЭМ с РСМА). Для анализа микрораспределения радионуклидов по поверхности дисков использовали систему цифровой радиографии Cyclone Storage System (Perkin Elmer) с гибкими запасающими пластинами.

После установления равновесия в системе для каждого радионуклида был определен коэффициент распределения (K_a), рассчитанный на площадь поверхности диска, непосредственно контактирующей с раствором, на основе следующего уравнения:

$$K_a \text{ (мл/см}^2\text{)} = \frac{I_0 - I_\infty}{I_\infty} \cdot \frac{V}{S} \quad (2),$$

где I_0 – скорость счета (Срт) радионуклида в исходном растворе, I_∞ – скорость счета радионуклида в растворе в момент равновесия системы, V – объем раствора, S – площадь поверхности диска, контактирующего с раствором.

Параметр относительной эффективности сорбции (ОЭС) был определен, исходя из следующего соотношения:

$$\text{ОЭС}_{i,j} = \frac{I_{i,j}/I_{j,0}}{S_i/S_0},$$

где $I_{i,j}$ – интенсивность фотостимулированной люминесценции (ФСЛ), соответствующая радионуклиду j , сорбированному на минеральной фазе i , $I_{j,0}$ – интенсивность ФСЛ, соответствующая радионуклиду j , сорбированному на всей поверхности диска (образца), S_i – площадь поверхности, занимаемая минеральной фазой i , S_0 – площадь поверхности диска.

Результаты и обсуждения

В результате работы для каждого из изученных радионуклидов были определены коэффициенты распределения (K_a), рассчитанные на площади поверхности дисков образца Р-11, для ^{137}Cs , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{241}Am они

составили (мл/см²): 6,6; 0,9; 26,1 соответственно. Таким образом, сорбционная способность изученного образца Р-11 по отношению к радионуклидам увеличивается в ряду $\text{Sr-90/Y-90} < \text{Cs-137} < \text{Am-241}$, где америций является наиболее удерживаемым радионуклидом на данном образце. По данным коэффициентов распределения удалось установить общую сорбционную способность образца по отношению к изученным радионуклидам, в то время как сам образец является достаточно неоднородным и представлен рядом минеральных фаз с различной сорбционной способностью.

На основании элементного анализа, проведенного методом РЭМ с РСМА, были определены минеральные фазы, входящие в состав образца скарноида Р-11. В результате были установлены следующие фазы: кварц, слоистые алюмосиликаты (хлорит), островные силикаты (эпидот), каркасные алюмосиликаты (полевые шпаты, цеолит), оксиды (рутил), карбонаты (кальцит).

Микрораспределение ^{137}Cs , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{241}Am на поверхности образца Р-11 было изучено на основании полученных черно-белых изображений радиограмм. Было установлено, что радионуклиды ^{137}Cs и $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ распределяются по поверхности образца скарноида Р-11 крайне неравномерно, в то время как ^{241}Am сорбировался с близкими значениями эффективности на все минеральные фазы и чуть менее на кварц и кальцит.

Распределение цезия на поверхности образца Р-11 представлено на рисунке 1. Наиболее эффективным сорбентом по отношению к цезию оказался хлорит, который относится к группе слоистых алюмосиликатов. Средней сорбционной способностью по отношению к цезию обладает цеолит, остальные минеральные фазы не оказали достаточного влияния на сорбцию цезия, в особенности кальцит, который обладает наименьшей сорбционной способностью (рис. 1).

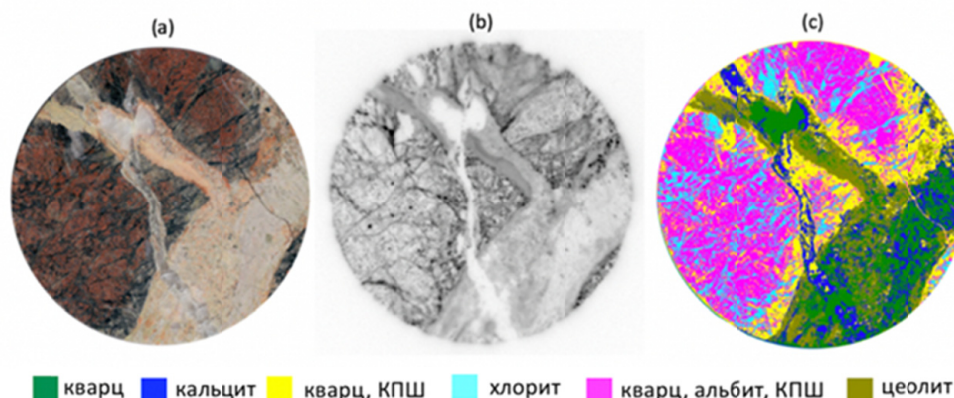


Рис.1 (а) – оптическое изображение образца скважины Р-11, (б) – радиограмма сорбции Cs на образце Р-11, (в) – оптическое изображение образца скважины Р-11 с определением минеральных фаз

Методом РЭМ с РСМА было подтверждено, что сильно-затемненные области на радиограмме (рис. 1б) соответствуют зонам трещин, заполненным вторичным минералом – хлоритом, либо выкрошенными минеральными фазами, в состав которых также входил хлорит.

Распределение стронция по минеральным фазам образца повторяет поведение цезия, стронций также хорошо сорбируется на хлорите, менее на цеолите и хуже всего на кальците. Такое схожее поведение стронция с цезием может объясняться аналогичным механизмом сорбции стронция на минеральных фазах.

Для определения количественной оценки сорбционной эффективности отдельных минеральных фаз ранее в работах [6,7] была разработана методика по определению параметра относительной эффективности сорбции (ОЭС), характеризующего вклад каждой минеральной фазы гетерогенной системы в сорбцию различных радионуклидов. Методика по определению параметра ОЭС основывается на проведении сравнительного анализа радиограммы, характеризующей микрораспределение радионуклидов по поверхности образца породы, с РЭМ-изображением, на котором были выделены минеральные фазы. Проведение сравнительного анализа было осуществлено двумя методами: с применением программы ImageJ и с использованием языка программирования Python (полуавтоматический метод). Для ^{137}Cs и $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ относительная эффективность сорбции была рассчитана на основе метода с применением программы ImageJ. Для ^{241}Am наиболее подходящим методом оказался полуавтоматический метод на основе пакета scikit-image (Python). Данные по ОЭС представлены в таблице 1. Стоит уточнить, что при обработке изображений описанными методами удалось разграничить не все минеральные фазы, так как некоторые являются тонко-перемешанными (кварц, полевые шпаты, цеолит), либо попадают в одинаковый диапазон значений ФСЛ (кварц, кальцит), поэтому для них дано общее значение по ОЭС.

Таблица 1. Данные по относительной эффективности сорбции ^{137}Cs , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{241}Am цезия на образце Р-11

Минеральные фазы	Относительная эффективность сорбции		
	^{137}Cs	$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	^{241}Am
кварц, кальцит	0,6	0,4	1
цеолит, полевые шпаты, кварц	1,2	1	1
хлорит	2	1,8	1

Полученные данные по ОЭС в целом не противоречат ранее сделанным выводам о поведении радионуклидов: ^{241}Am распределяется в равной степени по всем минеральным фазам со значениями ОЭС равными 1, тогда как для ^{137}Cs и $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ наиболее эффективной удерживающей фазой является хлорит с относительной эффективностью сорбции равной 2 и 1,8 соответственно, что в два раза выше средних значений по относительной эффективности сорбции.

Выводы

В представленной работе были изучены сорбционные свойства цельного образца трещиноватой породы из скважины Р-11 зоны Нижнеканского гранитоидного массива по отношению к Cs, Sr/Y, Am. Отмечено, что сорбционная способность изученного образца по отношению к радионуклидам увеличивается в ряду $\text{Sr}/\text{Y} < \text{Cs} < \text{Am}$, где америций является наиболее удерживаемым радионуклидом на данном образце. Установлены значения ОЭС цезия, стронция, америция на поверхности минеральных фаз трещиноватого образца пород экзоконтакта Нижнеканского гранитоидного массива. На основании полученных данных по ОЭС для каждого изученного радионуклида, за исключением америция, были установлены наиболее эффективные фазы сорбции. Показано, что цезий и стронций преимущественно удерживаются в трещинах, заполненных хлоритом. Цеолит является менее эффективным сорбентом по отношению к цезию и стронцию. Америций сорбировался с одинаковыми значениями эффективности на все минеральные фазы.

Список литературы

1. Подземная изоляция радиоактивных отходов / Е.Б. Андерсон, С.Е. Белов, С.В. Камнев и др. – Москва: Горная книга, 2011. – 592 с.
2. Анализ данных по радионуклидному составу РАО в контексте оценки долговременной безопасности их захоронения / Т.А. Александрова, П.А. Блохин, А.А. Самойлов, А.В. Курындин // Радиоактивные отходы. – 2018. – №2 (3). – С. 44-51.
3. Подземная исследовательская лаборатория в Нижнеканском массиве: Эволюционная проработка облика / А.А. Абрамов, Л.А. Большов, А.Н. Дорофеев [и др.] // Радиоактивные отходы. – 2020. – №1 (10). – С. 9-21.
4. Gupalo V.S. Spatial characterization of the physical process parameters in rock mass during construction of the underground facility for the RW disposal / V.S. Gupalo // Russ. J. Earth Sci. – 2019. – Vol. 19. – № 6. – P. 1–13.
5. Solute transport in fractured rocks with stagnant water zone and rock matrix composed of different geological layers-Model development and simulations / B. Mahmoudzadeh, L. Liu, L. Moreno, I. Neretnieks // Water Resour. Res. – 2013. – Vol. 49. – № 3. – P. 1709–1727.
6. Цифровая радиография для оценки относительной эффективности сорбции радионуклидов различными минералами скальных пород / А.А. Родионова, В.Г. Петров, И.Э. Власова [и др.] // Радиохимия. – 2019. – №1 (61). – С. 37-44.
7. Preferential sorption of radionuclides on different mineral phases typical for host rocks at the site of the future Russian high level waste repository / V.G. Petrov, I.E. Vlasova, A.A. Rodionova [et al.] // Appl. Geochemistry. – 2019. – Vol. 100. – P. 90–95.

Оценка возможности использования глинистых материалов для захоронения радиоактивных отходов 3 и 4-го классов опасности Белорусской АЭС

Н.А. Маковская, А.А. Баклай, Т.Г. Леонтьева, Д.А. Кузьмук

Научное учреждение «ОИЭЯИ-Сосны», г. Минск, Республика Беларусь

nata.mak@sosny.bas-net.by

В соответствии с критериями проектирования пункта захоронения радиоактивных отходов (ПЗРО) Белорусской АЭС материалы защитных барьеров (глинистые материалы) должны обладать низкой водопроницаемостью и высокой сорбционной способностью в отношении радионуклидов. Поэтому, исходя из периода потенциальной опасности радиоактивных отходов (РАО) 3 и 4-го класса опасности и времени их хранения до 500 лет, на практике в качестве долговечных и слабопроницаемых материалов применяют глины [1]. Целью исследований являлось изучение качества добываемых глинистых материалов Республики Беларусь, в том числе сорбционных свойств в отношении радионуклидов ^{137}Cs и ^{85}Sr .

Исследования сорбционных свойств глин и суглинков Республики Беларусь в отношении радионуклидов ^{137}Cs и ^{85}Sr показали, что высокими сорбционными показателями в отношении данных радионуклидов обладают глины из месторождений «Городное» Брестской области и «Марковское» Гомельской области, а также суглинки месторождений «Фанипольское» Минской области и «Купейский сад» Гомельской области.

Исследование влияния изменения гидрогеологических условий (концентрации химических веществ, кислотности) на поглощение радионуклидов ^{137}Cs и ^{85}Sr глинистыми материалами в составе защитных барьеров ПЗРО позволило установить, что при моделировании реальных гидрогеологических показателей грунтовых вод в месте расположения АЭС указанные радионуклиды наиболее сильно сорбируются глинистыми материалами из нейтральных и слабощелочных сред и мало сорбируются в сильно кислотных и щелочных средах. При увеличении в грунтовых водах концентрации макрокатионов K^+ , Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} сорбция ^{137}Cs и ^{85}Sr глинистыми материалами уменьшается.

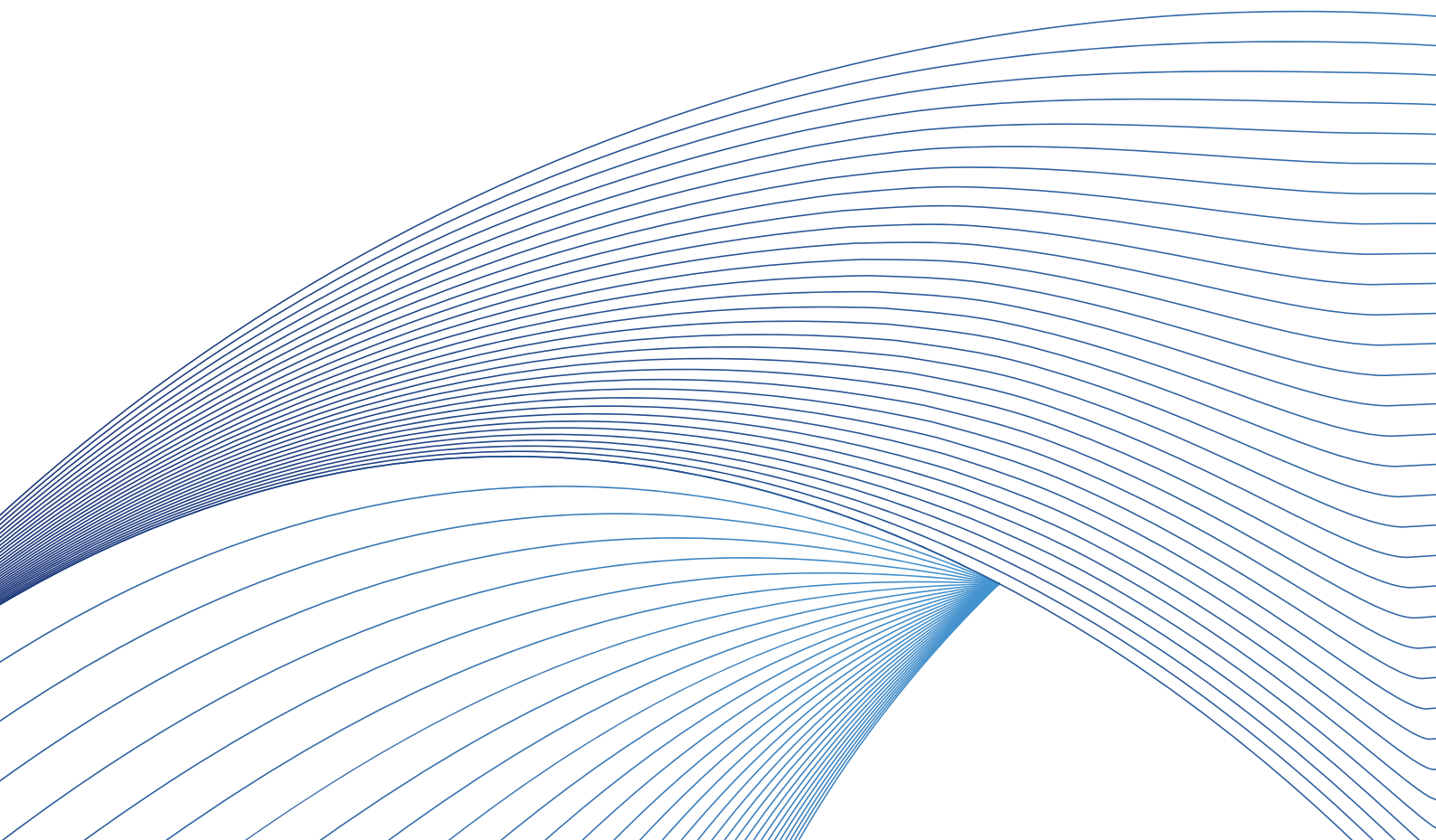
Изучены основные физико-химические показатели, определяющие гидроизоляционные и сорбционные свойства образцов глинистых материалов, добываемых на территории Беларуси (коэффициент распределения и степень сорбции ^{137}Cs и ^{85}Sr , емкость катионного обмена, содержание монтмориллонита, число пластичности, коэффициент фильтрации и др.). Установлено, что по указанным показателям глины месторождений «Марковское», «Городное» и суглинки месторождений «Фанипольское» и «Крупейский сад» соответствуют установленным критериям качества и могут быть использованы в составе подстилающего экрана (сорбционный слой глины) для заглубленной конструкции приповерхностного ПЗРО Белорусской АЭС и подстилающего экрана (сорбционный слой суглинка) при траншейном типе ПЗРО.

Список литературы

1. Савоненков, В.Г. Глины как геологическая среда для изоляции радиоактивных отходов / В.Г. Савоненков, Е.Б. Андерсон, С.И. Шабалев. – СПб.: ИД «Инфо Ол», 2012. – 216 с.

СЕКЦИЯ III

Радиоэкологический мониторинг
и радиационный контроль



Проблемы детритизации низкоактивных водных радиоактивных отходов

Э.П. Магомедбеков, И.Л. Растунова

Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева, Москва, 125047, Миусская пл., 9

e-mail: eldar@muctr.ru

Аннотация. Проблема обращения с водными тритийсодержащими отходами является актуальной для многих стран мира. Основными техногенными источниками трития в настоящее время являются ядерные реакторные установки различного назначения и заводы по переработке отработавшего ядерного топлива. Очистка от трития водных потоков возможна только с использованием физико-химических методов разделения изотопов водорода, наиболее перспективными из которых являются ректификация воды под вакуумом и химический изотопный обмен между водородом и водой. Представлен анализ предлагаемых способов детритизации легкой и тяжелой воды с точки зрения технологических и экологических аспектов.

Ключевые слова: тритийсодержащие водные отходы, детритизация, вакуумная ректификация воды, изотопный обмен в системе вода-водород.

Problems of detritization of low-level water radioactive waste

E.P. Magomedbekov, I.L. Rastunova

D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia, 9 Miusskaya sq., 125047, Moscow, Russia,

e-mail: eldar@muctr.ru

Abstract. The problem of handling aqueous tritium-containing waste is relevant for many countries of the world. At present, the main man-made sources of tritium are nuclear reactors for various purposes and plants for the reprocessing of spent nuclear fuel. The removal of tritium from water streams is possible only with the use of physicochemical methods for separating hydrogen isotopes, the most promising of which are the rectification of water under vacuum and chemical isotope exchange between hydrogen and water. The analysis of the proposed methods of detritization of light and heavy water from the point of view of technological and environmental aspects is presented.

Keywords: tritium-containing water waste, detritiation, vacuum rectification of water, isotope exchange in the water-hydrogen system.

Проблема улавливания трития, образующегося при эксплуатации ядерных реакторных установках различного типа, имеет большое экологическое значение. Образование легководных тритийсодержащих водных отходов происходит как на АЭС, причем его количество напрямую зависит от типа и мощности реактора. так и на заводах по переработке отработавшего ядерного топлива [1, 2]. В настоящее время наиболее остро проблема обращения с тритийсодержащими водными отходами в частности стоит перед Японией, где в результате аварии на АЭС «Фукусима-дайити» в 2011 г. продолжается образование ЖРО, которые после очистки от всех радионуклидов кроме трития складываются в специальных емкостях на площадке АЭС. По имеющимся данным, к середине 2019 г. количество таких ЖРО с концентрацией трития в различных емкостях в диапазоне $(2-22) \times 10^5$ Бк/кг превышало $1,1 \times 10^6$ м³, а к концу 2020 г. прогнозировалось их увеличение до $1,3 \times 10^6$ м³ [3, 4].

В большинстве стран мира концепция снижения воздействия техногенного трития на окружающую среду включает в себя использование систем детритизации водных и газовых потоков с уменьшением объемов тритийсодержащих отходов, подлежащих дальнейшему безопасному хранению или захоронению [1, 2, 5].

Очистка водных технологических потоков от трития с его одновременным концентрированием может осуществляться только на основе методов разделения изотопов водорода, наиболее перспективными из которых считаются химический изотопный обмен (ХИО) водорода с водой и вакуумная ректификация воды.

Разделение изотопов водорода методом ХИО между водородом и водой является, пожалуй, наиболее привлекательным способом вследствие высоких значений коэффициента разделения (например, при $T=333$ К для изотопной смеси Н-Т $\alpha=5.18$, а для D-Т $\alpha=1.54$), нетоксичностью рабочих веществ и проведением процесса при атмосферном давлении. Разработка гидрофобных катализаторов в ряде стран мира [6-9], в том числе и в России, позволили реализовать данную технологию в виде колонны изотопного обмена с электролизером в качестве нижнего узла обращения потоков (НУОП). Вследствие гидрофобных свойств катализатора, колонны ХИО имеют небольшую пропускную способность (обычно линейная скорость водорода не превышает 30 см/с), при этом диаметр известных колонн ХИО обычно не более 100 мм. Типичные значения высоты эквивалентной теоретической ступени разделения (ВЭС) для активных катализаторов в колоннах диаметром до 10 см при температурах 333-345 К лежат в диапазоне 20 – 30 см [2, 10-11]. На рис. 1. представлены принципиальные технологические схемы установок ХИО для решения задач детритизации.

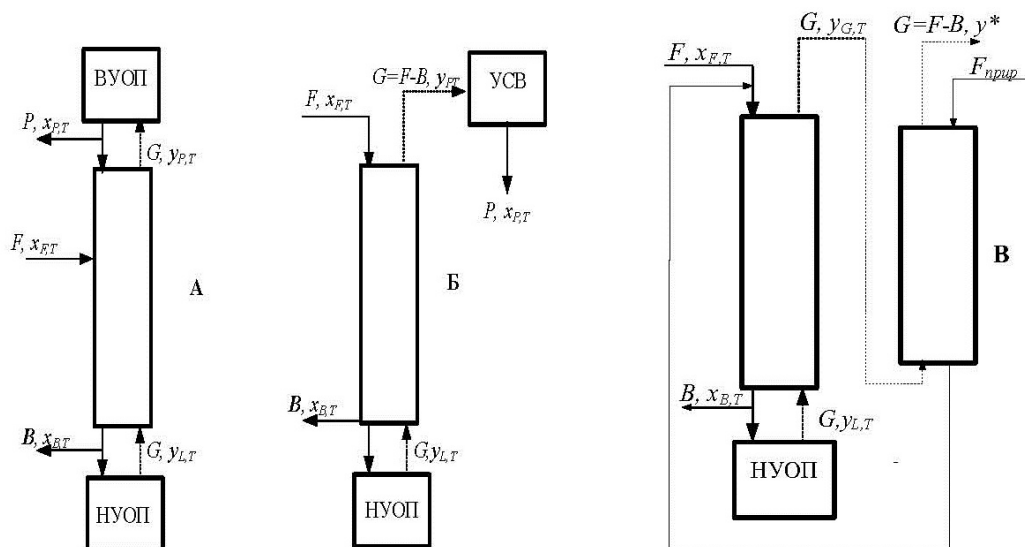


Рисунок 1 – Принципиальные схемы разделительных установок детритизации методом ХИО в системе вода-водород: А – с верхним узлом обращения потоков, Б – с узлом сжигания водорода, В – с дополнительной колонной ХИО

Разделительная колонна на рис. 1А позволяет одновременно проводить очистку питающего потока F от трития с одновременным концентрированием радионуклида, причем степени очистки и концентрирования зависят только от высот концентрирующей (от $x_{F,T}$ до $x_{B,T}$) и исчерпывающей (от $x_{F,T}$ до $x_{P,T}$) частей. «Открытая» схема на рис. 1Б предназначена для концентрирования тяжелого изотопа, а концентрация трития в очищенном потоке P , выходящем из узла сжигания водорода (УСВ) не может быть меньше, чем $x_{F,T}/\alpha$. Вследствие проблем, связанных с созданием надежного и безопасного аппарата УСВ, в последние годы все большее распространение находит схема (рис. 1В), в которой вторая колонна ХИО, орошаемая природной водой, используется для извлечения трития и доведения его концентрации в очищенном потоке водорода G до значений, соответствующих сбросным нормам [12-14]. Кроме отмеченной выше проблемы окисления водорода, использование в качестве НУОП электролизера также создает ряд проблем,

связанных с высокими энергозатратами, радиационной стойкостью конструкционных материалов и высокой вероятностью авторадииолиза электролита [15-16]. Несмотря на это, процесс ХИО находит применение, в основном, для детритизации тяжелой воды [17-19].

Ректификация воды широко используется для решения задач, связанных с разделением изотопов как водорода, так и кислорода [20]. Вследствие близости к единице значений коэффициентов разделения, извлечение при однократном разделительном эффекте мало, что требует переработки больших потоков и большого числа теоретических ступеней разделения. В связи с этим процесс проводят под вакуумом, обычно при 0.02-0.03 МПа. Основными достоинствами метода являются абсолютная экологическая безопасность, организации технологического процесса, отсутствие проблем с коррозией и возможность применения для решения задач, отличающихся по производительности от нескольких килограммов до тонн в год [21]. Разработка высокоэффективных насадочных контактных устройств позволяет существенно сократить высоты колонн, обеспечивая при этом возможность переработки существенно больших потоков по сравнению с методом ХИО [20].



Рис. 2 – Некоторые виды насадок: А – нерегулярная спирально-призматическая насадка (СПН), Б – регулярная насадка Sulzer CY, В – регулярная рулонная ленточно-винтовая насадка (РЛВН)

Применительно к процессу ректификации воды наибольшее использование находят насадки из нержавеющей стали, наиболее популярной из которых является спирально-призматическая насадка (СПН) (рис. 2А). В работе [22] представлены результаты исследования СПН с размером элементов от 2 до 10 мм в колоннах диаметром 60 и 120 мм, и показано, что при увеличении размера элемента насадки в 5 раз величина удельной пропускной способности пропорционально возрастает (при $P=0.02$ МПа – от $L_{уд}^* = 912$ кг/(чхм²) до $L_{уд}^* = 4600$ кг/(чхм²)), а ВЭТС возрастает более чем в 7 раз (с 1.9 мм до 14.2 см). При этом отмечена крайне слабая зависимость ВЭТС от диаметра колонны.

Регулярные насадки характеризуются упорядоченной структурой, обладают существенно большей пропускной способностью и меньшим гидравлическим сопротивлением по сравнению с нерегулярными. Широкое применение при разделении смесей с близкими свойствами, в том числе в изотопном производстве, находит насадка Sulzer Mellapak типа CY (рис. 2Б). Следует также отметить рулонную ленточно-винтовую насадку (РЛВН), разработанную в РХТУ им. Д.И. Менделеева, отличительной особенностью которой является то, что блоки могут быть изготовлены высотой, соответствующей высоте царги колонны (рис. 2В), в отличие от насадки Sulzer, выпускающейся в виде блоков стандартных размеров. Сравнение с насадкой Sulzer Mellapak 750 CY при давлении 0,02 МПа показало, что значения ВЭТС для РЛВН оказались более чем в 2 раза выше (16 см и 8 см соответственно), однако ее пропускная способность, равная $L_{уд}^* = 6600$ кг/(чхм²), примерно в 1.5 раза выше и недостижима для насадки Sulzer [23]. На основании этого можно считать, что, с учетом более высокой пропускной способности и практически полного отсутствия зависимости ВЭТС от потока и диаметра колонны, РЛВН является перспективной для ее использования в процессе разделения изотопов при вакуумной ректификации воды.

Примеры использования ректификации воды для детритизации немногочисленны. В работах [24-25] представлены расчеты каскадов депротизации и детритизации тяжелой воды с использованием математической модели, основанной на методе расчета «от ступени к ступени» с учетом гидродинамических и других характеристик контактных устройств. В [26] описана комплексная технология детритизации различных отходов, образующихся при получении меченых тритием препаратов в компании GE Healthcare (Cardiff) с использованием ректификации воды для предварительного концентрирования трития от 3 до 2000 ppm.

В работе [27] предлагается комплексная схема детритизации, включающая в себя ректификацию воды в сочетании с ХИО в системе вода-водород. В работе [28] проводится сравнение методов ХИО и вакуумной ректификации воды на примере установки детритизации 100 кг/ч воды, в результате которого авторы сделали заключение

о том, что объем ректификационной установки почти в 50 раз превышает объемы требуемой колонны ХИО, при сопоставимых энергозатратах. Следует отметить, что, на наш взгляд, данное сравнение не вполне корректно, поскольку возможность использования дешевого низкопотенциального пара на АЭС, а также работы в области рекуперации тепла [29] в случае использования ректификации воды, позволит снизить стоимость энергозатрат относительно ХИО, где для работы НУОП необходима электрическая энергия.

В работе [30] рассмотрен вариант использования каскада колонн вакуумной ректификации воды для детритизации низкоактивных водных отходов на базе атомной электростанции. Принципиальная схема процесса представлена на рис. 3. Установка рассчитана на переработку 100 кг/ч воды с содержанием трития $3,7 \times 10^6$ Бк/кг с обеспечением очистки воды до уровня $7,6 \times 10^3$ Бк/кг, соответствующему российским нормам по сбросным водам. Установка представляет собой каскад ректификационных колонн с исчерпыванием, который включает в себя концентрирующую часть (двухступенчатый каскад с сокращением потоков) и исчерпывающую часть.

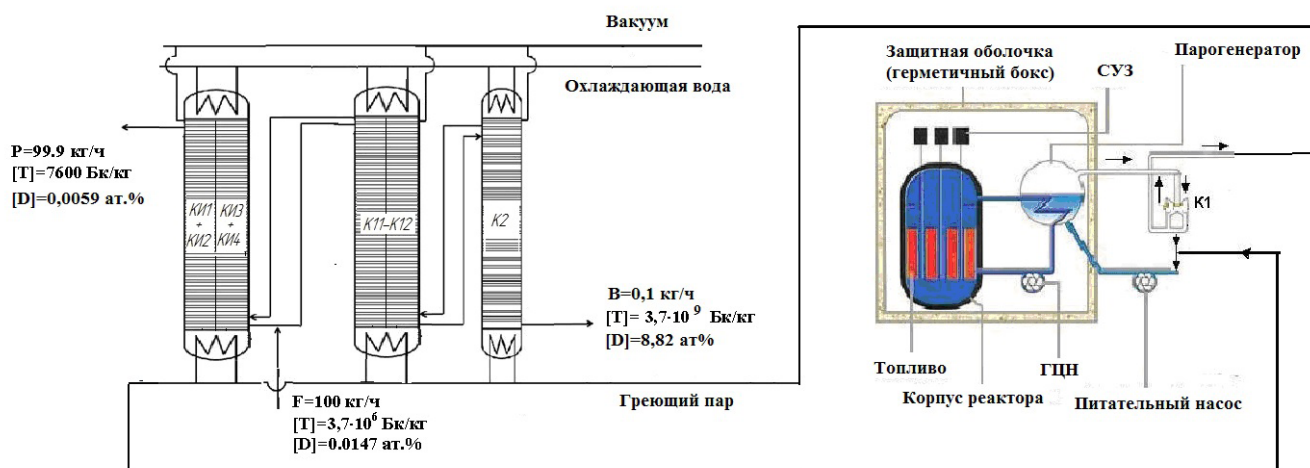


Рис. 3 – Принципиальная схема установки детритизации низкоактивных тритийсодержащих водных отходов на базе АЭС

В заключение следует отметить, что в настоящее время разработаны различные технологии разделения изотопов водорода, которые могут быть использованы для решения задач очистки от трития водных технологических потоков и водных тритийсодержащих радиоактивных отходов. При этом выбор технологии будет определяться условиями конкретной задачи с учетом необходимой производительности, привязки к объекту и требований к массогабаритным характеристикам разделительного оборудования. По мнению авторов, для решения крупномасштабных задач детритизации воды, таких как очистка тритийсодержащих технологических потоков АЭС или ликвидация накопленной низкоактивной воды на Фукусиме, наиболее целесообразно использовать вакуумную ректификацию воды в колоннах больших диаметров с регулярной насадкой.

Список литературы

1. Fairlie I. Tritium Hazard Report: Pollution and Radiation Risk from Canadian Nuclear Facilities. Greenpeace. June 2007. 92 p.
2. DOE Handbook: Tritium Handling and Safe Storage. DOE-HDBK-1129-YR. U.S. Department of Energy. Washington. D.C.20585. 2008. p. 149.
3. Song J., An S., Kim T., Ha K. Post-fukushima challenges for the mitigation of severe accident consequences// Nuclear Engineering and Technology. 2020, V.52. P.2511-2521.
4. Yamanishi T., Kakiuchi H., Tauchi H., et al. Discussions on Tritiated Water Treatment for Fukushima Daiichi Nuclear Power Station // Fusion Science and Technology. 2020. V. 76. P. 430-438.
5. Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты российской Федерации [Электронный ресурс]: Федеральный закон от 11.07.2011 № 190-ФЗ.
6. Bruggeman A.E., Leysen R.F.R., Vermeiren P., Monsecour M. A process for the preparation of a catalyst for an isotopic exchange column, and thus prepared catalyst. Belgian Patent No. 893715, 1982..
7. Ionita G., Peculea M. Preparation of Hydrophobic Platinum Catalyst: Romanian Patent No. 107842. 1991.
8. Izawa H., Isomura S., Nakane R. Gaseous Exchange Reaction of Deuterium between Hydrogen and H. Water on Hydrophobic Catalyst Supporting Platinum // Journal of Nuclear Science and Technology. 1979. V.16. P. 741-749.

9. Сахаровский Ю.А., Никитин Д.М., Магомедбеков Э.П. и др. Способ приготовления платинового гидрофобного катализатора изотопного обмена водорода с водой: Пат. № 2307708 Рос. Федерация. 2006.
10. Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П., Розенкевич М.Б., Сахаровский Ю.А. Гетерогенные реакции изотопного обмена трития. М.: Эдиториал УРСС. 1999. 208с.
11. Alekseev I.A., Bondarenko S.D., Fedorchenko O.A., et al. Fifteen Years of Operation of CECE Experimental Industrial Plant in PNPI // *Fusion Science and Technology*. 2011. V.60. No. 4. P. 1117–1120.
12. Boniface H.A., Castillo I., Everatt A.E., Ryland D.K. A Light-Water Detritiation Project at Chalk River Laboratories // *Fusion Science and Technology*. 2011. V.60. P. 1327-1330.
13. Perevezentsev A.N., Rozenkevich M.B., Subbotin M.L. Concept of the Fuel Cycle of the IGNITOR Tokamak // *Physics of Atomic Nuclei*. 2019. Vol. 82. P.1055–1059.
14. Fedorchenko O.A., Alekseev I.A., Bondarenko S.D., Vasyanina T.V. Light water detritiation // *Fusion Science and Technology*. 2015. V. 67. P. 332-335.
15. Thomson S.N., Carson R., Ratnayake A., et al. Characterization of commercial proton exchange membrane materials after exposure to beta and gamma radiation // *Fusion Science and Technology*. 2015. V. 67 P. 443–446.
16. Suppiah S., McCrimmon K., Lalonde S., et al. Tritium Handling Experience at Atomic Energy of Canada Limited // *Fusion Science and Technology*. 2015. Vol. 67 P. 588–591.
17. Song K.M., Sohn S.H., Kang D.W., et al. Installation of liquid phase catalytic exchange column for the Wolsong tritium removal facility // *Fusion Engineering and Design*, 2007, V. 82, P. 2264-2268.
18. Miller J.M., Graham W.R.C., Celovsky S.L. et al. Design and operational experience with a pilot-scale CECE detritiation process // *Fusion Science and Technology*, 2002, V. 41, P 1077-1081.
19. Bondarenko S.D., Alekseev I.A., Fedorchenko O.A., Vasyanina T.V. The Current Status of the Heavy Water Detritiation Facility at the NRC (Kurchatov Institute) – PNPI // *Fusion Science and Technology*, 2020, V.76, P– 690-695.
20. Магомедбеков Э.П., Растунова И.Л., Кулов Н.Н. Ректификация воды как метод разделения изотопов водорода и кислорода: состояние и перспективы // *Теоретические основы химической технологии*. 2021. Т. 55. № 1. С. 3-15.
21. Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П., Розенкевич М.Б. и др. Разделение изотопов биогенных элементов в двухфазных системах. М.: ИздАТ, 2003. 376 с.
22. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Селиваненко И.Л., Растунова И.Л. Массообменные характеристики спирально-призматической насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // *Теоретические основы химической технологии*. 2016. Т.50. № 5. С. 502–507.
23. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Селиваненко И.Л., Растунова И.Л. Массообменные характеристики регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // *Теоретические основы химической технологии*. 2016. Т.50. № 4. С. 408-413.
24. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Растунова И.Л. и др. Математическое моделирование и оптимизация каскада депротизации тяжеловодного замедлителя // *Теоретические основы химической технологии*. 2017. Т. 51. № 2, С. 131-139.
25. Магомедбеков Э.П., Белкин Д.Ю., Растунова И.Л. и др. Ректификация воды как метод депротизации тяжеловодного замедлителя // *Теоретические основы химической технологии*. 2017. Т. 51, № 4. С. 376-383.
26. Bonnet I., Busigin A., Shapiro A. Tritium Removal and Separation Technology Developments // *Fusion Science and Technology*, 2008, V.54, P. 209-214.
27. Сумченко А.С., Букин А.Н., Марунич С.А. и др. Влияние способа запуска насадочной колонны на эффективность процессов ректификации воды и депротизации газов методом фазового изотопного обмена // *Теоретические основы химической технологии*. 2015. Т. 49. С. 267-276.
28. Kveton O.K., Yoshida H., Koonce J.E. et al. Design of the water detritiation and isotope separation systems for ITER // *Fusion Technology*, 1995, V. 28, P. 636-640.
29. Разумовский Г.Н., Селиваненко И.Л. Применение компрессионного теплового насоса для рекуперации энергии в процессе ректификации воды под вакуумом // *Химическая промышленность сегодня*. 2017. № 2. С. 17-26.
30. Магомедбеков Э.П., Растунова И.Л. Обращение с тритийсодержащими водными отходами // *Химическая промышленность сегодня*. 2019. № 3. С. 62-68.

Улавливание инертных радиоактивных газов и продуктов их распада в статических и динамических условиях высокопористыми материалами

Магомедбеков Э.П., Меркушкин А.О., Обручиков А.В.

Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева, г. Москва
alexobruch@mail.ru

Аннотация. В работе получены изотермы адсорбции аргона, криптона и ксенона в статических и динамических условиях на активированном угле марки ВСК-5. Предложены методы описания полученных зависимостей для расчета констант Генри. При импульсной подаче инертного газа в динамических условиях определение этих значений сводится к решению уравнения Шилова после обработки выходных кривых. Найдены подходы для определения эффективности улавливания радона из воздуха хранилищ РАО.

Ключевые слова: радиоактивные инертные газы, сорбция, адсорбенты, эффективность улавливания, коэффициент адсорбции.

Trapping of noble radioactive gases and their decay products under static and dynamic conditions by highly porous materials

Magomedbekov E.P., Merkusshkin A.O., Obruchikov A.V.

D.I. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia, Moscow
alexobruch@mail.ru

Abstract. The paper presents the obtained adsorption isotherms for the noble gases argon, krypton, xenon under static and dynamic conditions on the VSK-5 charcoal. Methods for describing the obtained dependences for calculating Henry's constants are proposed. When the pulse supplying noble gas under dynamic conditions the determination of these values reduces to solving Shilov's equation after treatment adsorptive output curves. Approaches have been found for determining the radon trapping efficiency from the air of RW storage facilities.

Keywords: radioactive noble gases, sorption, adsorbents, trapping efficiency, adsorption coefficient.

При эксплуатации объектов, вовлеченных в сферу деятельности с радиоактивными веществами, особое внимание должно уделяться газообразным радионуклидам и их выбросам, как наименее контролируемым. В отдельную группу следует выделить инертные радиоактивные газы, которые можно условно разделить на искусственные и природные.

Согласно рекомендации МАГАТЭ [1], при эксплуатации атомных станций важным фактором воздействия на окружающую среду следует считать радиоактивные изотопы инертных газов: аргона, криптона и ксенона. Изотопы криптона и ксенона образуются при делении ядерного топлива; радиоактивный изотоп Ar-41 образуется при активации нейтронами стабильного изотопа Ar-40, содержащегося в воздухе и технологических потоках ядерных реакторов. Одновременно с этим нельзя не учитывать тот факт, что основной вклад в дозу облучения населения при воздействии природных источников ионизирующего излучения вносят радон и дочерние продукты его распада [2]. Установлено, что он способен накапливаться в помещениях, создавая в них значительные концентрации, длительное воздействие которых вызывает негативные последствия для здоровья человека. Изотопы радона поступают в атмосферу из верхних слоёв земной поверхности вследствие распада дочерних продуктов урана и тория, которые присутствуют в различных породах земной коры [3], например, в гранитах, фосфоритах и т. п. Другой путь поступления радона в атмосферу помещений связан с эксхалацией его из строительных материалов, которые содержат повышенные концентрации радия [3].

Для эффективного удаления радиоактивных инертных газов из технологических потоков предприятий атомной отрасли применяются активированные угли различных марок. Согласно действующему в России отраслевому стандарту [4], определение сорбционной способности активированного угля по отношению к криптону и ксенону проводится в статических условиях. Для этого определяют коэффициент адсорбции (константу Генри). В данной работе с помощью автоматического анализатора Quadrasorb были получены изотермы адсорбции аргона, криптона и ксенона на активированном угле марки ВСК-5 при температурах в интервале от 15 до 80°C. Расчёт коэффициента адсорбции проводили по нескольким точкам изотермы по уравнениям Генри или Ленгмюра. Однако, расчетное значение коэффициента адсорбции по модели Генри существенно зависит от количества обрабатываемых точек (рис. 1а). На графике представлено математическое описание данных с применением уравнения Ленгмюра, которое является предпочтительным для описания начального участка изотермы.

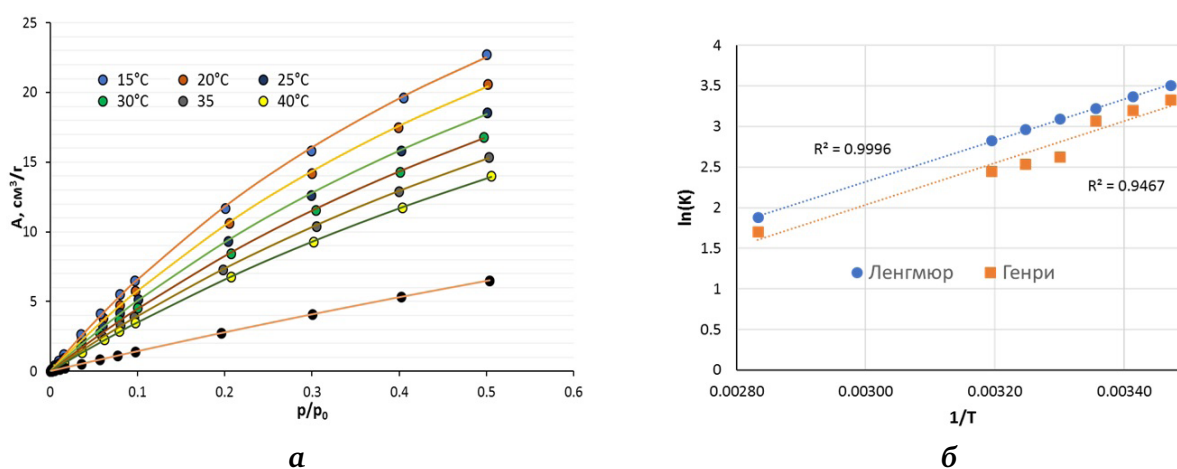


Рис. 1. Описание данных изотерм адсорбции криптона на активированном угле ВСК-5 (а); зависимость логарифма константы Генри от обратной температуры (б)

Это можно проиллюстрировать, построив зависимости полученных констант от обратной температуры в полупологарифмических координатах (рис. 1б). Из представленных графиков видно, что точки, найденные по модели Генри, не лежат на прямой линии, а их значения несколько занижены.

Несмотря на достаточно воспроизводимые данные, полученные в статических условиях, очевидно, что в динамических условиях, тем более, в среде газа-носителя воздуха, константы Генри будут отличаться от значений, полученных при адсорбции из среды чистого адсорбтива, что может привести к последующим неверным технологическим расчетам.

Для исследования адсорбции инертных газов в динамических условиях был создан стенд, принципиальная схема которого показана на рис. 2. Основные узлы установки – это термостатируемая колонна с сорбентом (1), а также масс-спектрометрический газоанализатор OmniStar Pfeiffer (4).

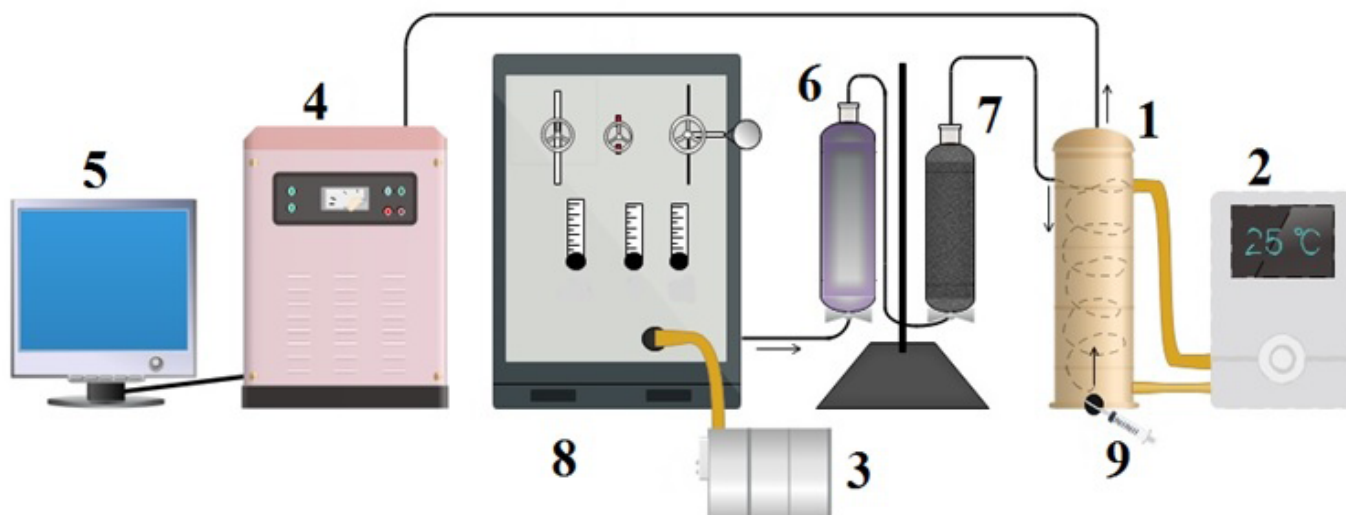


Рис. 2. Принципиальная схема стенда для изучения адсорбции инертных газов в динамических условиях:
 1 – адсорбционная колонка; 2 – термостат; 3 – компрессор; 4 – газоанализатор; 5 – персональный компьютер;
 6 – колонка с силикагелем; 7 – колонка с углем; 8 – стенд с регуляторами расхода газа-носителя;
 9 – ввод смеси инертных газов.

На представленном стенде получали выходные кривые динамической адсорбции, как временные зависимости относительной концентрации инертного газа во фронтальном режиме.

В этом случае для расчёта коэффициента адсорбции для малых концентраций инертного газа (участок Генри) было использовано уравнение (1), вытекающее из условия материального баланса адсорбционной колонны и учитывающее количество поданного инертного газа за вычетом его количества, прошедшего через колонну, и количества, оставшегося во всех полостях адсорбционной колонны, включая межзерновое пространство и макропоры сорбента:

$$K_{\Gamma} = \frac{\rho_k}{m} \cdot \left[v \cdot \left(t_0 - \int_0^{t_0} C_r(t) dt \right) - \left(V_0 + \frac{m}{\rho_H} \cdot \varepsilon + V_{\Pi} \cdot m \right) \right] \quad (1)$$

где K_{Γ} – константа Генри; ρ_k – плотность частиц адсорбента (кажущаяся плотность), г/см³; ρ_H – насыпная плотность адсорбента, г/см³; m – масса адсорбента, г; v – объёмная скорость газовой смеси на входе в слой угля, мл/мин; t_0 – продолжительность подачи адсорбтива, мин; V_0 – свободный объём колонны, см³; ε – доля свободного объёма в слое угля; V_{Π} – удельный объём открытых пор, см³/г; $C_r(t)$ – функция концентрации адсорбтива на выходе из колонки в момент времени t .

Другим способом получения данных о коэффициентах адсорбции является вариант импульсной подачи смеси инертных газов в колонну (вытеснительный режим). В этом случае появляется возможность получения выходных кривых сразу нескольких компонентов смеси одновременно (рис. 3). При импульсной подаче инертного газа определение константы Генри сводится к решению уравнения Шилова [5], из которого следует, что константа Генри прямо пропорциональна времени удерживания адсорбтива и связана с ним соотношением (2), вытекающим из теории равновесной хроматографии.

$$K_{\Gamma} = \frac{\tau \cdot v}{m / \rho_k} \quad (2)$$

где τ – исправленное время выхода адсорбтива, учитывающее поправку на скорость перемещения газа-носителя через свободный объём и представляющее собой разность между временем выхода (максимумом пика) адсорбтива и временем выхода гелия.

Результаты, полученные обоими способами, совпадают в пределах погрешности.

Полученные данные показывают корреляцию значений константы Генри, полученных при различных температурах, и температуры кипения адсорбтива. Таким образом, первый путь для нахождения коэффициентов адсорбции для радона – это экстраполяция полученных зависимостей на точку кипения радона (рис. 4).

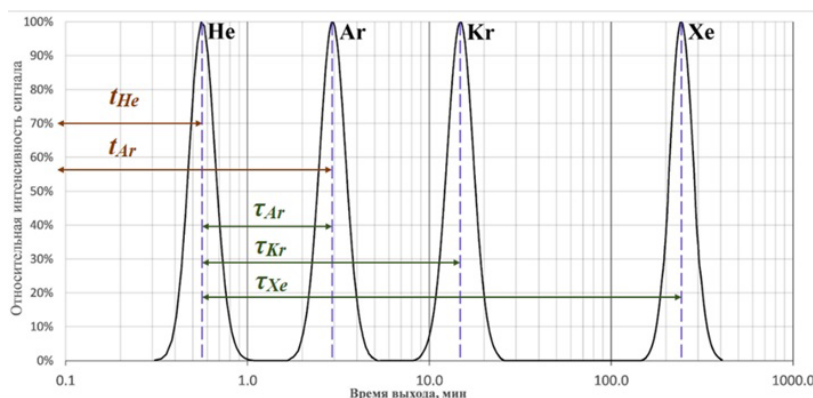


Рис. 3. Выходные кривые для инертных газов, полученные при динамической адсорбции на ВСК-5 при 20°C

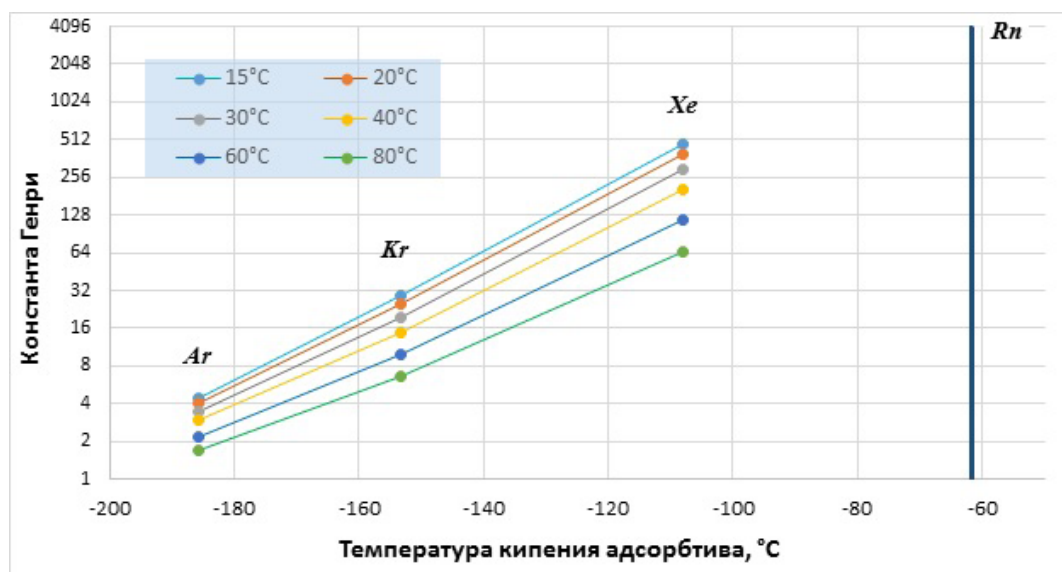


Рис. 4. Логарифмическая зависимость констант Генри от температуры кипения адсорбтива

Другой путь – это непосредственное экспериментальное определение сорбционной способности пористых материалов по отношению к радону в динамических условиях. Такие эксперименты удобно проводить с использованием торона (радона-220), являющегося продуктом распада тория-228. Связано это, в первую очередь, с тем, что установление радиоактивного равновесия происходит значительно быстрее, чем в случае радона-222. Вторая причина – это удобство радиометрии. Примерно через 10-15 минут после окончания эксперимента активность уловленного радона-220 определяется свинцом-212, который, в свою очередь, имеет достаточный для надёжного измерения период полураспада и две характеристические линии гамма-спектра 77 кэВ и 239 кэВ. Радиометрию проводили на гамма-рентгеновском спектрометре в одинаковой геометрии. По полученным данным строили зависимость удельной активности от высоты сорбционного слоя. Как видно из графиков (рис. 5), в достаточно широком диапазоне скоростей подачи газа эта зависимость линейна. Тогда для перехода к расчету коэффициентов очистки для другого изотопа радона (222) можно воспользоваться уравнением для стационарной хроматографии радиоактивных газов [6]. В этом случае высота сорбционного слоя (x) для радона-222 при требуемом коэффициенте очистки будет легко вычисляться из следующего отношения:

$$\frac{x_{222}}{x_{220}} \approx \frac{\lambda_{220} \cdot u_{222}}{\lambda_{222} \cdot u_{220}} \quad (3)$$

где λ – постоянная распада для данного изотопа, u – линейная скорость газового потока.

Таким образом, были предложены подходы к определению сорбционных характеристик различных материалов по отношению к инертным газам и, в частности, радону. Планируется серия исследований, подтверждающая корреляцию коэффициентов адсорбции в ряду аргон-криптон-ксенон-радон для других высокопористых материалов. При этом будет расширен диапазон температур от -40 до 80°C.

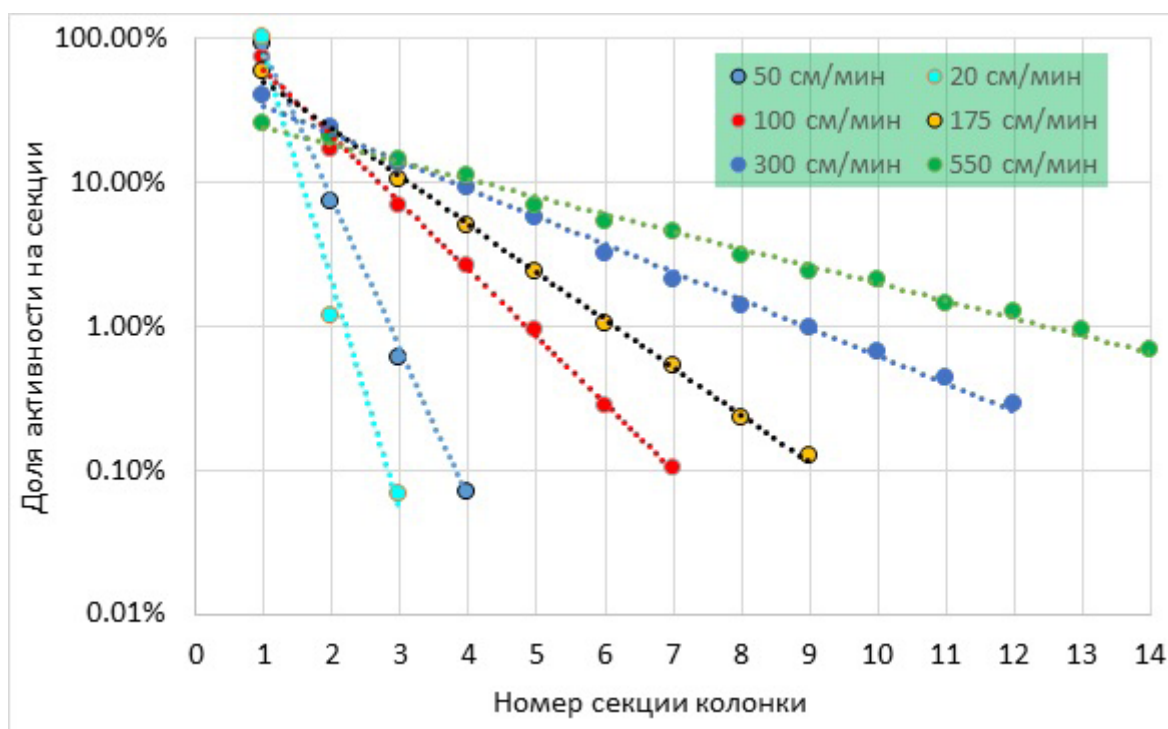


Рис. 5. Распределение активности радона-220 вдоль слоя активированного угля ВСК-5

Также планируется изучение сорбционных свойств таких материалов, как активированные угли, силикагели, цеолиты и другие перспективные сорбенты, по отношению к радону с последующим выбором наиболее эффективного и подходящего для решения задач газоочистки. Разработанные подходы позволят в конечном итоге рассчитать необходимое количество сорбента при требуемой кратности воздухообмена для очистки воздуха от радиоактивных изотопов инертных газов, включая радон из воздуха хранилищ РАО, до нормируемых уровней.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского химико-технологического университета им. Д.И. Менделеева (проект № 2020-008).

Список литературы

1. INPRO Methodology for Sustainability Assessment of Nuclear Energy Systems: Environmental Impact, IAEA, Vienna, IAEA Nuclear Energy Series N° NG-T-3.15, 2016. P. 40-44.
2. Карпин В. А. Современные экологические аспекты естественной эманации изотопов радона: обзор литературы // Экология человека. 2020. № 6. С. 34–40.
3. Киселёв С.М., Стамат И.П., Маренный А.М., Ильин Л.А. Обеспечение защиты населения от облучения радоном. Проблемы и пути решения // Гигиена и санитария. 2018. Т. 97. № 2. С. 101-110.
4. Определение допустимого количества фильтроциклов и оценка остаточного срока службы фильтрующего элемента фильтров-адсорберов системы спецгазоочистки, АО «Концерн Росэнергоатом», Москва, Стандарт организации СТО 1.1.1.03.004.1633-2019, 2019.
5. Матвейкин В.Г., Погонин В.А., Путин С.Б., Скворцов С.А. Математическое моделирование и управление процессом короткоциклового безнагревной адсорбции. Москва: Машиностроение-1, 2007. 140 с.
6. Полуэктов П.П., Растунов Л.Н. Нестационарная хроматография радиоактивных газов // Атомная энергия. 1996. Т. 81. №3. С. 184-186.

Концепция безопасной эксплуатации пункта приповерхностного захоронения твердых радиоактивных отходов III и IV классов филиала «Северский» ФГУП «НО РАО»

Самосудова А.В.¹, Иванов К.А.¹, Кокорев О.Н.²

¹-СТИ НИЯУ МИФИ, 636036, г. Северск, Томской обл., пр. Коммунистический, 65,

²- ФГУП «НО РАО» филиал «Северский», 636036, г. Северск, Томской обл., пр. Коммунистический, 8,
e-mail: A.V.Samosudova@gmail.com

Аннотация. Представлена концепция безопасной эксплуатации пункта приповерхностного захоронения твердых радиоактивных отходов (ППЗРО) III и IV классов. Разработанная концепция позволит гарантировать отсутствие отрицательного влияния объекта на окружающую среду и население в процессе строительства и эксплуатации.

Ключевые слова: концепция, безопасная эксплуатация, пункт приповерхностного захоронения твердых радиоактивных отходов, радиационно-экологический мониторинг.

The concept of safe operation of the surface disposal of solid radioactive waste III and IV the Federal state unitary enterprise «National operator for radioactive waste management» the branch «Severskiy»

Samosudova A.V.¹, Ivanov K.A.¹, Kokorev O.N.²

¹-Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia

²-The Federal State Unitary Enterprise «National operator for radioactive waste management» the branch «Severskiy», Seversk, Russia

Abstract. The concept of safe operation of a near-surface disposal site for solid radioactive waste of classes III and IV is presented. The developed concept will ensure the absence of a negative impact of the facility on the environment and population during construction and operation.

Keywords: concept, safe operation, near-surface disposal site for solid radioactive waste, radiation and environmental monitoring.

Приповерхностный пункт захоронения радиоактивных отходов – стационарный объект предназначенный для приповерхностного захоронения радиоактивных отходов, размещенный в пределах определенной проектом территории и оснащенный необходимыми для обращения с РАО системами и оборудованием.

Приповерхностный пункт захоронения радиоактивных отходов III и IV классов (ППЗРО) филиала «Северский» представляет собой единый комплекс основных и вспомогательных производств, зданий и сооружений технологического, вспомогательного и складского назначения (административно-бытового и технологического корпуса с навесом для временного хранения упаковок РАО, площадки для сбора бытовых отходов, навеса для хранения сосуда Дьюара, сооружений для захоронения РАО, наблюдательных и режимных скважин и тп), объектов энергокомплекса и транспортной инфраструктуры [1].

При анализе геоморфологических условий и геолого-литологического строения площадки размещения ППЗРО установлено, что из опасных экзогенно-геологических процессов на площадке фиксируются морозное пучение грунтов и подтопление (согласно СП 115.13330.2016). Наличие подземных вод спорадического распространения, залегающих близко к дневной поверхности, относится к группе гидрогеологических факторов, влияющих на условия строительства и эксплуатации проектируемого объекта ППЗРО. По условиям развития процесса подтопления район площадки размещения ППЗРО можно классифицировать как подтопленный в естественных условиях. По времени развития процесса – как сезонно (ежегодно) подтопленный.

В процессе строительства зданий, сооружений и прокладки инженерных коммуникаций специалистами филиала «Северский» ФГУП «НО РАО» выполняется гидрогеологический мониторинг в пределах созданной специальной сети наблюдений на площадке размещения ППЗРО. После завершения строительства в рамках эксплуатации ППЗРО, и контроля радиационной безопасности, планируется создание системы мониторинга захоронений РАО (включающий гидрогеологический контроль).

Мониторинг системы захоронения РАО проводится для подтверждения безопасности захоронения РАО, согласно НП-069-14 «Приповерхностное захоронение радиоактивных отходов, а также требований других нормативных документов в области радиационной безопасности, охраны окружающей среды и состояния недр. Актуальностью выполнения мониторинга системы захоронения РАО является оценка технического состояния подземных сооружений, инженерных и естественных барьеров при эксплуатации ППЗРО, определения степени соблюдения и установления тенденций изменения радиационной обстановки на ППЗРО. Целью гидрогеологического мониторинга площадки размещения ППЗРО III и IV классов филиала «Северский», является проведение регулярных наблюдений за режимом и свойством подземных вод спорадического распространения (делювиальных и озерных образований dQII-III+lQIItg) [2]. Целью мониторинга системы захоронения РАО в процессе эксплуатации ППЗРО III и IV классов филиала «Северский», является оценка безопасности изоляции ППЗРО и его влияние на персонал, население, окружающую среду и качественный состав подземных вод, а также контроль миграции радионуклидов в окружающую среду при эксплуатации ППЗРО.

Для достижения цели при выполнении мониторинга при строительстве и эксплуатации (контроля состояния инженерных и естественных барьеров) решаются следующие задачи:

1. Создание, сохранение и расширение сети наблюдательных скважин (в количестве не менее 9 штук). Наблюдения за режимом и состоянием подземных вод в процессе строительства и эксплуатации ППЗРО, выполняются контрольно-измерительными приборами замера уровня непрерывно в режиме реального времени. Информация по выпадению осадков на площадке размещения ППЗРО поступает со стационарной оптической метеостанции, установленной на территории пункта глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов (ПГЗ ЖРО) филиала «Северский» ФГУП «НО РАО» [5]. Контроль содержания радионуклидов и других загрязняющих веществ в процессе эксплуатации ППЗРО, осуществляется в рамках радиационно-экологического мониторинга. В первоначальный период эксплуатации ППЗРО проботбор подземных вод из наблюдательных скважин проводится круглогодично. Для проведения пробоотбора и с целью искусственного понижения уровня подземных вод спорадического распространения сеть мониторинга оборудуется скважинными насосами (управление производится автоматизированно). В пробах подземных вод определяется, суммарная альфа-активность (Бк/л), суммарная бета-активность (Бк/л), а также радионуклидный и гидрохимический состав проб. Выполнение геофизических исследований по скважинам методами резистивиметрии, термо- и гамма-каротажа в скважинах. Периодичность отбора проб и точки пробоотбора, а также геофизические исследования определяются из условий эксплуатации ППЗРО и отражается в «Программе радиационно-экологического мониторинга...».

2. Проведение периодического и сезонного осмотра состояния строительных конструкций зданий и сооружений ППЗРО. Плановое обследование технического состояния зданий и сооружений ППЗРО должно проводиться не позднее чем через два года после ввода в эксплуатацию. В дальнейшем обследование технического состояния зданий и сооружений должно проводиться не реже одного раза в 4 года (методами электромагнитной дефектоскопии-толщинометрии, акустической цементометрии, видеокаротажа, шаблонирования, термо- и гамма-каротажа для скважин) и 10 лет (остальные сооружения и конструкции зданий).

3. Проведение дополнительного обследования и мониторинга технического состояния зданий и сооружений ППЗРО, которое необходимо проводить:

- при обнаружении значительных дефектов, повреждений и деформаций в процессе технического обслуживания;
- при обнаружении загрязнения в контрольных наблюдательных скважинах;
- по результатам последствий нештатных ситуаций;
- по предписанию органов, уполномоченных на ведение государственного строительного надзора.

По результатам проведения мониторинга системы захоронения РАО предусматривается оценка и прогноз изменений состояния окружающей среды и подземных вод под воздействием природных и антропогенных факторов, а также изменений природной геологической среды, окружающей сооружения ППЗРО для захоронения РАО, характеристики которой могут измениться под воздействием размещенных в нем РАО, и воздействующей либо способной оказать воздействие на инженерные барьеры сооружения и размещенные в нем РАО.

Реализация концепции безопасной эксплуатации ППЗРО позволит гарантировать отсутствие отрицательного влияния объекта на окружающую среду и население в процессе строительства и эксплуатации.

Основными преимуществами при реализации данной концепции являются:

- сокращение затрат на функционирование ППЗРО за счет повышения эффективности обслуживания объекта;
- повышение безопасности работы ППЗРО благодаря реализации системы удаленного мониторинга.

Список литературы

1. Храмов Д.А. Осуществление геодезического контроля при строительстве пункта приповерхностного захоронения радиоактивных отходов 3 и 4 классов филиала «Северский» ФГУП «НО РАО» // X Школа-конференция молодых атомщиков Сибири. Тез. докл. Томск, Кемерово: Практика, 2020. С. 69.
2. Программа гидрогеологических наблюдений на площадке размещения пункта приповерхностного захоронения твердых радиоактивных отходов (ППЗРО) 3 и 4 классов филиала «Северский» ФГУП «НО РАО» в 2021 г. № П-319-2/318-2020», Северск, ФГУП «НО РАО», 2020 г.
3. Анненков А.А. Государственный мониторинг состояния недр-современное состояние и перспективы развития / А.А. Анненков, С.В. Спектор // «Всероссийское совещание «Государственный мониторинг состояния недр» (4-5 июня 2019 г.): сборник тезисов. – Москва, 2019. – С. 5 – 6.
4. Балобаненко А.А., Егоров Б.А. «Информационный бюллетень о состоянии недр Сибирского федерального округа за 2018 год». Выпуск 15. Филиал «Сибирский региональный центр ГМСН» ФГБУ «Гидроспецгеология». Томск, 2019.
5. Кокорев О.Н., Адонин Н.Р., Носков М.Д. и др. Автоматизированная система гидродинамического мониторинга для обеспечения экологической безопасности пункта глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов // Известия вузов. Физика. 2021. Т.64. №2-2. С. 46–51.
6. Кокорев О. Н. Концепция автоматизированной системы контроля уровня пластовых вод, с целью управления технологическим процессом эксплуатации ППЗ ЖРО / О.Н. Кокорев, М.Д. Носков, А.А. Щипков, А.Е. Козлов // IX Школа-конференция молодых атомщиков Сибири: (17-19 октября 2018 г.): сборник тезисов докладов. – Томск, 2018. – С. 150.
7. Кокорев О. Н. Система гидродинамического мониторинга пункта глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов / О.Н. Кокорев, Т.А. Гибадулина // XVI Международная конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Перспективы развития фундаментальных наук»: (23-26 апреля 2019 г.): сборник трудов конференции. – Северск, 2019
8. Спасов В.С. Оценка баланса грунтовых вод по данным режима их уровня // Ресурсы подземных вод: современные проблемы изучения и использования. Тез. докл. Москва: Москва РУДН, 2010. С. 338–344.

Метод совместного выделения актинидов и Tc из водных растворов для целей радиологического мониторинга

А. К. Рожкова^{1, 2}, А.М. Сибирцев¹, Н. В. Кузьменкова^{1, 2}, В.Г. Петров¹

¹– Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова, г. Москва, Россия

e-mail: rozhkovaak@gmail.com

²– Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН, г. Москва, Россия

Аннотация. Одной из задач радиоэкологического мониторинга является определение содержания долгоживущих радионуклидов в природных водах. Решение этой задачи затруднено низким содержанием определяемых радионуклидов, что требует предварительной стадии их концентрирования из больших объемов проб природной воды. Метод осаждения является эффективным методом прекоцентрирования. Однако в настоящее время не существует методик одновременного выделения актинидов и технеция из природных вод. В данной работе проверена возможность соосаждения технеция и актинидов с гидроксидами железа (II и III) и диоксидом марганца с последующим разделением с использованием различных хроматографических смол. В результате разработана методика совместного выделения и определения Am, Pu, U и Tc из природных проб больших объемов с выходами 40-70%.

Ключевые слова: актиниды, технеций, соосаждение, природные пробы, радиоэкологический мониторинг.

Method of simultaneous isolation of actinides and Tc from aqueous solutions for the purposes of radiological monitoring

Rozhkova A.K., Sibirtsev A.M., Kuzmenkova N.V., Petrov V.G.

¹– Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russia

e-mail: rozhkovaak@gmail.com

²– V.I. Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry of RAS, Moscow, Russia

Abstract. One of the tasks of radioecological monitoring is to determine the content of long-lived radionuclides in natural waters. This problem is difficult due to the low content of the determined radionuclides, which requires a preliminary stage of their concentration from large volumes of natural water samples. The coprecipitation method is an effective preconcentration method. However, there are currently no methods for the simultaneous isolation of actinides and technetium from natural waters. In this work, we tested the possibility of coprecipitation of technetium and actinides with iron (II and III) hydroxides and manganese dioxide, followed by separation using various chromatographic resins. As a result, a method was developed for the simultaneous isolation and determination of Am, Pu, U, and Tc from natural samples of large volumes with yields of 40-70%.

Keywords: actinides, technetium, coprecipitation, natural samples, radioecological monitoring.

С середины прошлого века большое количество искусственных радионуклидов поступило в окружающую среду. Определение содержания долгоживущих радионуклидов в природных водах не только позволяет оценить радиационную обстановку, но и отследить пути миграции радиоактивных веществ, а также служат метками для анализа движения водных масс, оценки уровня загрязнения и эрозии почв.

Анализ содержания долгоживущих радионуклидов затруднен их низкими концентрациями, что требует предварительной стадии их концентрирования из больших объемов проб природной воды. В литературе представлено большое количество различных сорбентов для извлечения радионуклидов из водных сред [1,2]. Метод соосаждения является эффективным методом преконцентрирования актинидов и технеция [3-7]. Однако в литературе не представлены методы для совместного выделения и концентрирования актинидов и технеция из больших объемов природных образцов, что и определило цель данной работы.

Экспериментальная часть

Для совместного концентрирования и выделения актинидов (U, Pu, Am) и Tc из морской и пресной воды были опробованы методики осаждения с гидроксидом железа (II) и диоксидом марганца с последующим выделением радионуклидов с использованием экстракционной хроматографии (TrisKem Int). Был проведен ряд модельных экспериментов с пресной и морской водой. В первом модельном эксперименте источником железа являлась твердая соль $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, которая одновременно выступала восстановителем. Во втором модельном эксперименте в качестве источника железа была выбрана твердая соль $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, а в качестве восстановителя использовалась твердая соль $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_5$.

Модельные растворы морской и пресной воды были приготовлены на основании данных о составе реальных составов природных водоемов [8].

Для определения содержания технеция и актинидов использовали жидкостно-сцинтилляционный спектрометр – Tri-Carb 2810TR, спектры обрабатывали с помощью программного обеспечения SpectraDec. Для учета эффективности регистрации при расчете активности технеция строили кривую гашения.

Результаты и обсуждения

После первых модельных экспериментов по стандартным методиками стало очевидно, что необходимо адаптировать исходное содержание железа, т.к. при его высоком содержании возникают проблемы с малым коэффициентом концентрирования (большие объемы вторичных растворов после растворения осадка), а малое содержание железа приводит к малым выходам соосаждения технеция.

Подобранные условия проведения соосаждения, подходящие для технеция были применены на модельном растворе в смеси радионуклидов (^{241}Am , ^{239}Pu , ^{233}U и ^{99}Tc). В результате применения адаптированной методики для выделения актинидов из модельных растворов морской и пресной воды получены хорошие выходы для актинидов (40-70%), которые позволяют применять адаптированную методику для определения совместного содержания радионуклидов в природных образцах.

В качестве альтернативного метода концентрирования актинидов и технеция был опробован метод соосаждения с диоксидом марганца. Были получены высокие выходы соосаждения актинидов (70-95%). Однако соосаждения технеция не происходит. Таким образом, для анализа природных проб при совместном выделении актинидов и технеция предпочтительнее универсальная методика соосаждения радионуклидов с $\text{Fe}(\text{OH})_2$, с последующим выделением и разделением актинидов на хроматографических смолах.

Выводы

Разработана методика совместного выделения и определения Am, Pu, U и Tc из природных проб больших объемов с выходами 40-70%. При осаждении гидроксида железа (II) из больших объемов природных вод (50-200 л) происходит соосаждение всех радионуклидов. Актиниды отделяют от технеция с использованием экстракционно хроматографических смол (TEVA, TRU). Соосаждение с диоксидом марганца позволяет с высокими выходами сконцентрировать отдельно актиниды из больших объемов проб, но соосаждения Tc с диоксидом марганца не происходит.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 21-43-00025).

Список литературы

1. Мясоедова Г. В., Никашина В. А. Сорбционные материалы для извлечения радионуклидов из водных сред // *Российский химический журнал*. – 2006. – Т. 50. – №. 5. – С. 55-63.
2. Holm E., Gafvert T, Lindahl P. et al. In situ sorption of technetium using activated carbon // *Appl. Rad. Isot.* – 2000. – V. 52. – No 1-2. – P. 153–157.
3. Nicholson S., Sanders T.W., Blaine L.M. The determination of low levels of Tc in environmental samples by inductively coupled plasma-mass spectrometry // *Sci. Total Environ.* – 1993. – V. 130–131. – P. 275–284.
4. Zheng J., Yamada M. Determination of plutonium isotopes in seawater reference materials using isotope-dilution ICP-MS // *Applied Radiation and Isotopes*. – 2012. – Т. 70. – №. 9. – С. 1944-1948.
5. Maxwell S. L. et al. Rapid determination of actinides in seawater samples // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2014. – Т. 300. – №. 3. – С. 1175-1189.
6. Wong K., Brown G., Noshkin V. A rapid procedure for plutonium separation in large volumes of fresh and saline water by manganese dioxide coprecipitation // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 1978. – Т. 42. – №. 1. – С. 7-15.
7. La Rosa J. et al. Recent developments in the analysis of transuranics (Np, Pu, Am) in seawater // *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*. – 2005. – Т. 263. – №. 2. – С. 427-436.
8. Heber M. A. Short-term methods for estimating the chronic toxicity of effluents and receiving waters to freshwater organisms. // *US Environmental Protection Agency, Environmental Monitoring Systems Laboratory*. – 1994. – P. 25-27

Новые мембранные контактные устройства для детритизации водных тритийсодержащих ОТХОДОВ

И.Л. Растунова, А.Ю. Чеботов

Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева Москва, 125047, Миусская пл., 9

e-mail: rastunov@muctr.ru

Аннотация. В статье представлены новые контактные устройства мембранного типа с мембраной типа Nafion для детритизации водных низкоактивных отходов методом изотопного обмена в системе вода–водород. Конструкция таких контактных устройств открывает перспективы для создания мобильных установок для очистки от трития водных радиоактивных отходов с одновременным уменьшением объемов отходов, подлежащих длительному хранению.

Ключевые слова: тритийсодержащие водные отходы, детритизация, мембранные контактные устройства, мембрана Nafion

New membrane contact devices for detritization of water tritium-containing waste

I.L. Rastunova, A.Yu. Chebotov

D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia 9 Miusskaya sq., 125047, Moscow, Russia

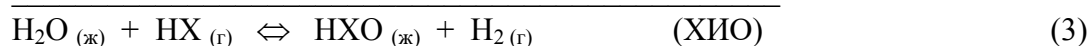
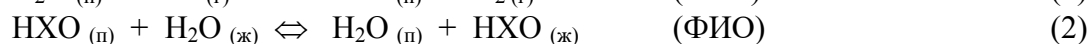
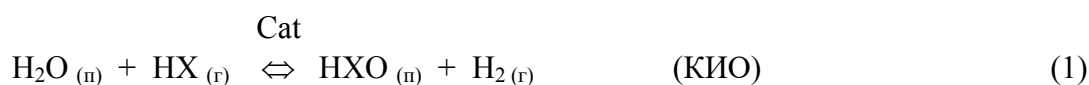
e-mail: rastunov@muctr.ru

Abstract. The article presents the new membrane contact devices with the Nafion-type membrane for tritium-containing water waste detritiation by the isotope exchange method in a water-hydrogen system. The design of such contact devices opens up prospects for creation of mobile plants for the purification of tritium from aqueous radioactive waste while reducing the amount of waste to be stored.

Keywords: tritium-containing water waste, detritiation, membrane contact devices, Nafion membrane

Среди вопросов обращения с техногенными радионуклидами особое место занимает тритий (Т, ^3H) – радиоактивный изотоп водорода, мягкий β -излучатель с периодом полураспада 12,35 года. Выделение проблемы трития в качестве отдельного направления обращения с техногенными радионуклидами обусловлено его специфическими особенностями, в первую очередь тем, что он в составе практически любых водородсодержащих веществ, главным образом воды, может, поступая из окружающей среды, оказывать повреждающее и мутагенное воздействие на организм человека. Образование техногенного трития происходит при работе ядерных установок гражданского и военного назначения, на предприятиях по производству ядерного оружия и переработке отработавшего ядерного топлива, а также в различных научных центрах, ведущих работы в области радиохимии и радиационной химии. Для снижения дозовой нагрузки на персонал и минимизации экологического ущерба необходимо проводить очистку от трития образующихся жидких радиоактивных отходов с использованием специальных физико-химических методов разделения изотопов водорода, одним из которых является химический изотопный обмен (ХИО) в системе вода-водород.

В присутствии гетерогенного катализатора изотопный обмен в этой системе происходит в две стадии, первая из которых является каталитическим изотопным обменом (КИО), а вторая представляет собой фазовый изотопный обмен (ФИО) воды:



где Х – тяжелый изотоп водорода (дейтерий (D) или тритий (T)).

Традиционные контактные устройства насадочного типа, применяемые в противоточных разделительных установках для изотопного обмена в системе H_2 – H_2O , представляют собой послойную загрузку или равномерную смесь гидрофобного катализатора и гидрофильной насадки. Для осуществления этого процесса в ряде стран мира (Канаде, Японии, России, Бельгии, Румынии и др.) были созданы платинированные гидрофобные катализаторы, не теряющие свою активность при контакте с жидкой водой [1-4]. Такие контактные устройства, вследствие гидрофобных свойств частиц катализатора, обладают невысокой пропускной способностью, что ограничивает применение технологии ХИО относительно маломасштабными задачами разделения изотопов водорода, а также требуют вертикального расположения разделительных колонн высотой порядка десятка метров [1, 4].

В РХТУ им. Д.И. Менделеева в последние годы разрабатывается контактное устройство мембранного типа (КУМТ), в котором реализовано пространственное отделение катализатора, через который проходит парогазовый поток, от потока жидкой воды с помощью мембраны, проницаемой для молекул воды [5, 6]. При этом стадия КИО происходит в парогазовом пространстве, а ФИО – на поверхности мембраны. Такая конструкция контактного устройства позволяет повысить его пропускную способность и не требует вертикального расположения контактных устройств для организации противоточного процесса разделения.

На рис. 1 представлены принципиальные схемы контактных устройств с плоскими (рис. 1а) и трубчатыми (рис. 1б) мембранами.

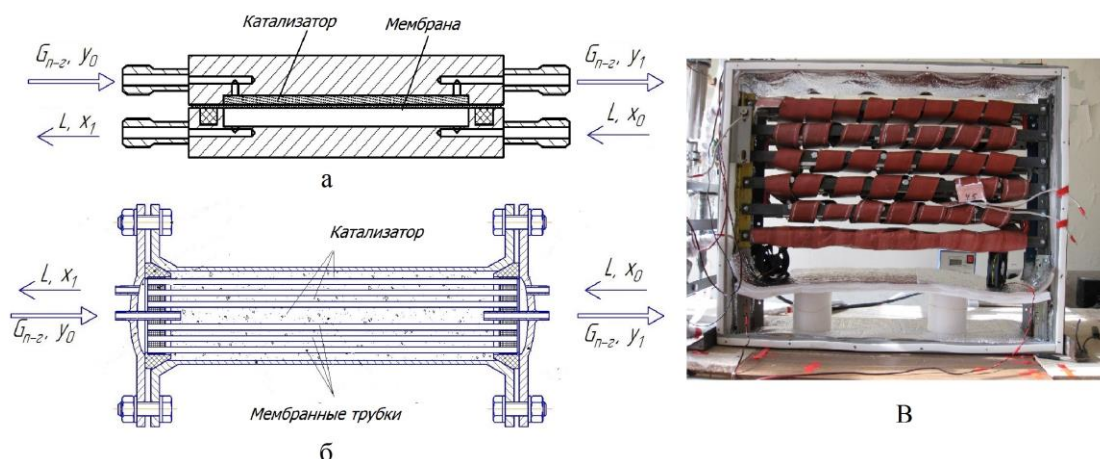


Рис. 1. Контактное устройство мембранного типа:

а – с плоской мембраной; б – с трубчатой мембраной; в – противоточный разделительный модуль с КУМТ

В таблице 1 представлены сравнительные характеристики габаритов (объем КУМТ ($V_{\text{КУМТ}}$) и объем катализатора ($V_{\text{кат}}$)) и массообменных характеристик (число единиц переноса (ЧЕП, N_y) и коэффициент массопередачи ($K_{\text{оу}}$)) контактных устройств с плоской (КУМТ) и трубчатой (КУМТ-ТМ) мембранами [7-8] в процессе изотопного обмена при атмосферном давлении и температуре 60°C. В данной серии экспериментов использовали перфторированные сульфокатионитные мембраны МФ-4СК и ТФ-4СК [9], представляющие собой отечественный аналог мембраны Nafion [10], и отечественный платинированный гидрофобный катализатор РХТУ-3СМ.

Таблица 1.
Сравнение параметров контактных устройств с плоской и трубчатой мембраной

Параметр	$V_{\text{КУМТ}}, \text{см}^3$	$V_{\text{кат}}, \text{см}^3$	N_y	$K_{\text{оу}} \cdot 10^3, \text{м}^3/(\text{м}^2 \text{с})$
КУМТ, мембрана МФ-4СК: $\delta=250$ мкм, $S_M = 42 \text{ см}^2$	20,5	10	0,52	4,3±0,2
КУМТ-ТМ, мембрана ТФ-4СК: $\delta=150$ мкм, $S_M = 34 \text{ см}^2$	10,8	9	1,47	15,0±0,3

Как видно из таблицы, конструкция КУМТ-ТМ с трубчатыми мембранами позволяет повысить коэффициент массопередачи в 3,5 раза по сравнению с КУМТ с плоской мембраной при сокращении в 2 раза суммарного объема контактного устройства.

На рисунке 1в представлен вид сборки противоточного разделительного модуля с КУМТ в составе экспериментальной установки детритизации воды с концентрирующей (6 КУМТ) и исчерпывающей (12 КУМТ) частями и электролизером в качестве нижнего узла обращения потоков. Питание колонны осуществлялось водой с меткой трития, подаваемой в среднюю часть колонны, а на орошение исчерпывающей части поступала вода природного изотопного состава.

В таблице 2 представлены значения степеней разделения (К), числа теоретических ступеней разделения (ЧТСР, N), ЧЕП и коэффициента массопередачи для типичных экспериментов, в которых максимальная скорость пароводородного потока в слое катализатора достигала 2,0 м/с.

Таблица 2
Характеристики процесса детритизации в экспериментальной установке с КУМТ
при $P = 0,1$ МПа; $T=60$ °С

$G_{\text{H}_2}, \text{дм}^3/\text{ч}$ (н.у.)	Концентрирующая часть			Исчерпывающая часть			$K_{\text{суммарн}}$	$K_{\text{оу}} \cdot 10^3, \text{м/с}$
	$K_{\text{конц}}$	$N_{\text{конц}}$	$N_{y,\text{конц}}$	$K_{\text{исч}}$	$N_{\text{исч}}$	$N_{y,\text{исч}}$		
60	1,51	0,62	1,24	24,10	9,49	10,81	36,40	4,05
100	1,25	0,33	0,68	13,05	7,69	8,76	10,95	5,13
150	1,05	0,07	0,15	7,95	6,18	7,04	7,36	6,08

На основании полученных данных была проведена оценка габаритов мобильной установки детритизации небольших объемов водных радиоактивных отходов с содержанием трития $3,7 \cdot 10^6$ Бк/кг производительностью по очищаемой воде 18,4 м³/год при степенях очистки и концентрирования, равных 100. В результате работы установки количество жидких радиоактивных отходов составит не более 1% от перерабатываемого потока. Оценка показала, что для создания разделительного модуля с КУМТ потребуется 14 м² мембраны МФ-4СК, 20 дм³ и катализатора РХТУ-3СМ. Оценка массогабаритных параметров установки показывает, что весь разделительный комплекс с учетом электролизного блока на базе щелочного электролизера производительностью 5 м³/ч (н.у.) (масса 2 т, размеры 1800×1100×2300 мм) в качестве нижнего узла обращения потоков может быть размещен на автомобильной платформе грузоподъемностью не более 5 т.

В заключение следует отметить, что такого типа установки также могут применяться для комплексной переработки ЖРО в составе мобильного комплекса типа «Эко» ФГУП «Радон» [11], осуществляющего очистку жидких отходов с низким солесодержанием от различных радионуклидов за исключением трития. Введение в комплекс модуля детритизации позволит решить задачу комплексно и предотвратить попадание трития в окружающую среду при сбросе очищенной от других радионуклидов.

Список литературы

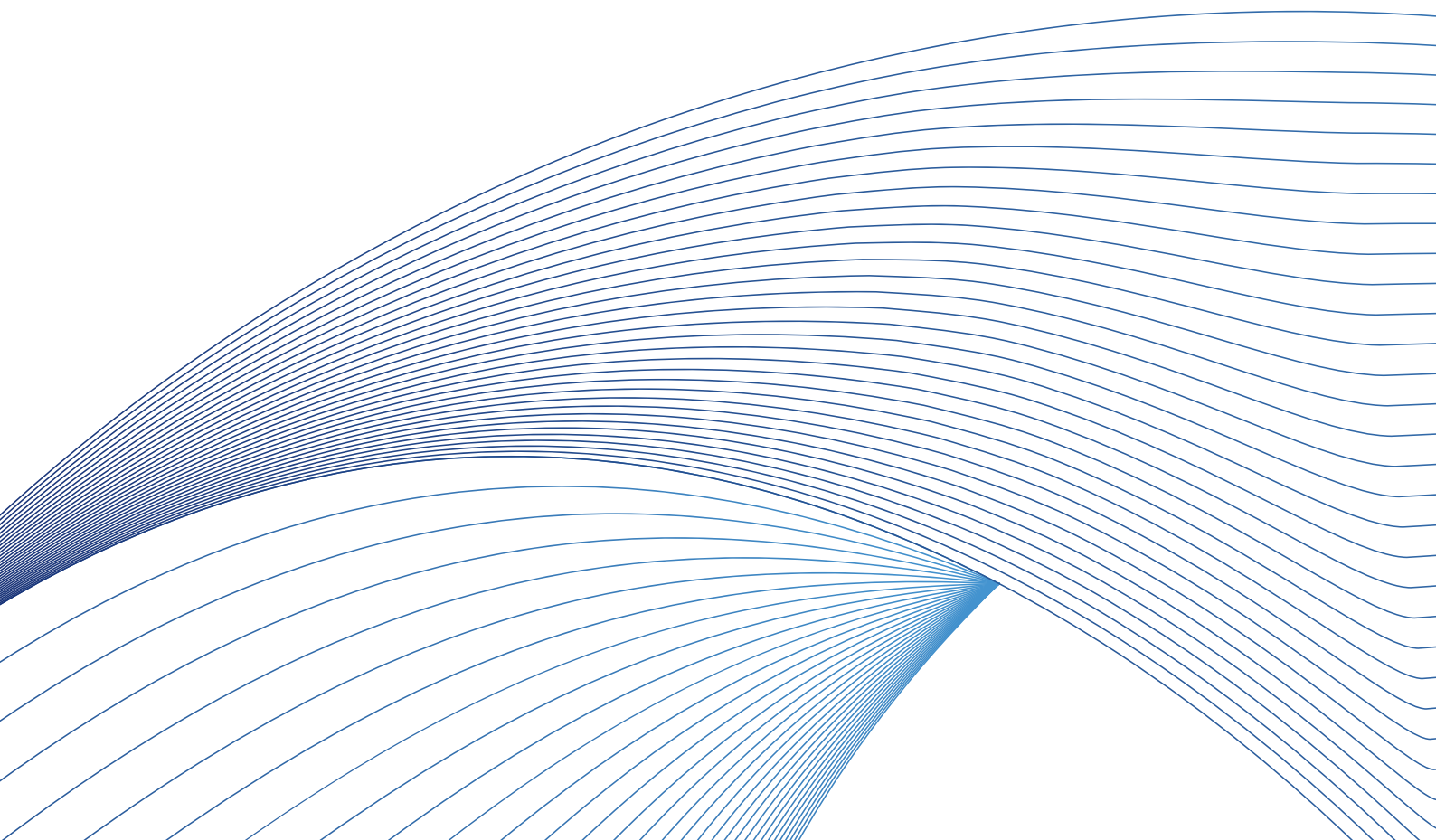
1. Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П., Розенкевич М.Б., Райтман А.А., Сахаровский Ю.А., Хорошилов А.В. Разделение изотопов биогенных элементов в двухфазных системах. М.: ИздАТ, 2003. 376 с..
2. Stevens W.H. Process and Catalyst for Enriching a Fluid with Hydrogen Isotopes: Canadian Patent No. 907.262, IC12CO1B5/02, August 15, 1972.
3. Сахаровский Ю.А., Никитин Д.М., Магомедбеков Э.П., Пак Ю.С., Асновский В.Н., Баранов С.В., Глазков С.П., Сулов А.П. Способ приготовления платинового гидрофобного катализатора изотопного обмена водорода с водой: Пат. № 2307708 Рос. Федерация. № 2006102805/04; заявл. 31.01.2006; опубл. 10.10.2007, Бюл. № 28. 5 с..
4. Магомедбеков Э.П., Растунова И.Л., Розенкевич М.Б. Современные технологии разделения изотопов водорода // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. 2014. №. 3(78). С. 70-86.
5. Розенкевич М.Б., Растунова И.Л. Контактное устройство для изотопного обмена водорода или углекислого газа с водой. Пат. № 2375107 Рос. Федерация. №, 2008117569/12; заявл. 06.05.2008; опубл. 10.12.2009. Бюл. № 3. 7 с.
6. Розенкевич М.Б., Растунова И.Л., Чеботов А.Ю. Контактное устройство для изотопного обмена газа с водой. Пат. 186241 Рос. Федерация. № 2018120374; заявл. 01.06.2018; опубл. 14.01.2019, Бюл. № 2. 7 с.
7. Растунова И.Л. Детритизация и иммобилизация низкоактивных тритийсодержащих водных отходов: дисс. ... докт. техн. наук. М. 2019. 330 с.
8. Растунова И.Л., Розенкевич М.Б., Чеботов А.Ю. Новые мембранные контактные устройства для разделения изотопов водорода методом химического изотопного обмена в системе вода-водород // Успехи в химии и химической технологии. 2019. Т. XXXIII. № 1 (211). С. 97-99.
9. Официальный сайт Акционерное общество «Пластполимер». Отдел политетрафторэтилена и перфторированных ионообменных мембран [Электронный ресурс]. URL: <http://www.plastpolymer.com/structure/otdelpolitetraftorjetilena-i-perftorirovannyh-ionoobmennyyh-membran>.
10. Nafion Membranes. Fuel Cell Store. Education, Research, and Fun since 1999. [Электронный ресурс]: URL: <https://www.fuelcellstore.com/fuel-cellcomponents/membranes/nafion>.
11. Лифанов Ф.А., Карлина О.К. Опыт и перспективы развития технологий обращения с РАО на ГУП МосНПО «Радон» // Безопасность ядерных технологий и окружающей среды. 2012. № 2. С. 122-132.



РАДОН
РОСАТОМ

СЕКЦИЯ IV

Вывод из эксплуатации
объектов ЯРОО



Обоснование оптимальных технических и организационных решений при выводе из эксплуатации ОИАЭ с учетом обеспечения ЯРБ

Бочкарев В.В.^{1,2}, Бриллиантов Б.Д.^{1,2}, Климанов С.Г.², Крянев А.В.²

¹ – Научно-технический центр по ядерной и радиационной безопасности (НТЦ ЯРБ), г. Москва, Россия

e-mail: secnrs@secnrs.ru

² – Национальный исследовательский ядерный университет (МИФИ), г. Москва, Россия

e-mail: info@mephi.ru

Аннотация: В докладе приведена схема и алгоритм выбора оптимальных технологических операций при ВЭ ОИАЭ, а также определение степени устойчивости выбранного варианта технологических операций в условиях неопределенности исходных данных КИРО, которые порождают неопределенности значений показателей для выбираемых вариантов. Выбор оптимального варианта производится на основе комплексного показателя, объединяющего в виде линейной суперпозиции частные показатели для каждого рассматриваемого варианта ВЭ. Выбор оптимального варианта ВЭ осуществляется путем многократной реализации с помощью метода Монте-Карло значений частных показателей для каждого рассматриваемого варианта, ранжирования вариантов по комплексному показателю в порядке их убывания и подсчетом суммарного количества мест для каждого варианта. Оптимальным вариантом считается тот, у которого суммарное количество мест оказывается минимальным.

Ключевые слова: объект использования атомной энергии (ОИАЭ), вывод из эксплуатации (ВЭ), технологические операции, оптимальный вариант, частные показатели, комплексный показатель, погрешности, среднее квадратическое отклонение (СКО), метод Монте-Карло, устойчивость выбранного варианта.

Substantiation of optimal technical and organizational solutions during decommissioning of nuclear facilities taking into account NRS support

Bochkarev V.V.^{1,2}, Brilliantov B.D.^{1,2}, Klimanov S.G.², Kryanev A.V.²

¹ – Scientific and Engineering Center for Nuclear and Radiation Safety (SEC NRS), Moscow, Russia

e-mail: secnrs@secnrs.ru

² – National Research Nuclear University (MEPhI), Moscow, Russia

e-mail: info@mephi.ru

Abstract: The report contains a diagram and an algorithm for choosing the optimal technological operations in case of SE NF, as well as determination of the degree of stability of the selected variant of technological operations in conditions of uncertainty of the initial data of the IRO, which generate uncertainties in the values of indicators for the selected variants. The choice of the optimal option is made on the basis of a complex indicator, which combines particular indicators in the form of a linear superposition for each considered option. The choice of the optimal option is carried out by repeatedly realizing the values of particular indicators for each option under consideration using the Monte Carlo method, ranking the options according to the complex indicator in descending order and calculating the total number of seats for each option. The best option is the one with the minimum total number of seats.

Keywords: nuclear facilities (NF), decommissioning (DE), technological operations, the optimal option, particular indicators, a complex indicator, the Monte Carlo method, the stability of the selected option.

Оценка вариантов реализации ВЭ ОИАЭ

Ниже представлен некоторый перечень типовых основных физических характеристик конструкций, необходимых для расчета показателей для выводимого из эксплуатации объекта.

Каждая конструкция имеет неопределенные числовые значения характеристик, задаваемые парой величин – средним значением (математическим ожиданием – Π_{cp}) и СКО – σ_{Π} :

1) Материальный объем (вес, площадь, длина с указанием качественной характеристики материалов, учитываемой в расчетах показателей технологических операций по демонтажу, дезактивации, переработке, транспортировке, захоронению и другие);

2) Характеристика (показатели) радиационного заражения (объем РАО, его тип и другие).

Каждой конструкции (элементу) соответствует набор нескольких возможных технологических операций по ВЭ этой конструкции. Для каждой пары «конструкция – технологическая операция» рассчитаны частные показатели (с погрешностями, описываемые СКО – σ).

В качестве базовых частных показателей, характеризующих, как пару «конструкция – технологическая операция», так и вариант выбора технологических операций в целом, взят следующий их набор:

1) Стоимость работ – CP_i, σ_{CP_i} ;

2) Длительность работ – $ДЛ_i, \sigma_{ДЛ_i}$;

3) Дозовая нагрузка на персонал – $ДНП_i, \sigma_{ДНП_i}$;

4) Дозовая нагрузка на население – $ДНН_i, \sigma_{ДНН_i}$;

5) Воздействие на окружающую среду (объемы выбросов и сбросов РВ) – BC_i, σ_{BC_i} .

Здесь $CP_i, ДЛ_i, ДНП_i, BC_i, ДНН_i$ – средние значения частных показателей;

$\sigma_{CP_i}, \sigma_{ДЛ_i}, \sigma_{ДНП_i}, \sigma_{BC_i}, \sigma_{ДНН_i}$ – СКО этих показателей.

Для каждого варианта ВЭ с несколькими возможными технологическими операциями ($i=1, \dots, n$) подсчитывается комплексный показатель K_i :

$$K_i = \alpha_1 CP_{Hi} + \alpha_2 ДЛ_{Hi} + \alpha_3 ДНП_{Hi} + \alpha_4 BC_{Hi} + \alpha_5 ДНН_{Hi}, \quad (1)$$

где $\alpha_j, j=1, 2, 3, 4, 5$ – введенные (принятые) коэффициенты приоритета частных показателей $0 \leq \alpha_j \leq 1, \sum_{j=1}^5 \alpha_j = 1$, $CP_{Hi}, ДЛ_{Hi}, ДНП_{Hi}, BC_{Hi}, ДНН_{Hi}$ – нормированные значения частных показателей, рассчитываемых, например, для показателя CP_{Hi} согласно ниже представленной формуле (2):

$$CP_{Hi} = \frac{CP_{\max} - CP_i}{CP_{\max} - CP_{\min}}, \quad (2)$$

где:

$$CP_{\max} = \max(CP_1, \dots, CP_n);$$

$$CP_{\min} = \min(CP_1, \dots, CP_n).$$

Аналогично производится нормирование остальных показателей и СКО этих показателей.

Разыгрывается набор значений частных показателей $K_{ijk}, k=1, N$ для каждого варианта выбора набора технологических операций $i=1, \dots, n, j=1, 2, 3, 4, 5$ (k – номер розыгрыша). Для розыгрыша методом Монте-Карло используется датчик нормального распределения случайной величины $N(\bar{K}_{ij}; \sigma_{ij})$.

Для каждого варианта выбора набора технологических операций строится гистограмма распределения комплексного показателя (см. рисунок 1).

Выбор оптимального варианта реализации ВЭ ОИАЭ

Производится ранжирование (для каждого фиксированного $k=1, N$ отдельно) комплексного показателя:

$$K_{(1)k} \geq K_{(2)k} \geq \dots \geq K_{(n)k} \quad (3)$$

и подсчитывается суммарное число позиций в (3) для каждого варианта выбора набора технологических операций:

$$n_i^+ = \sum_{k=1}^N (n)_{(i_k)k}, i = \overline{1, n} \quad (4)$$

где $(n)_{(i)_k}$ – номер позиции i -го варианта выбора набора технологических операций при k -м розыгрыше.

Вариант i^* с наименьшим n_i^+ ($n_i^+ = \min_{i=1, \dots, n} \{n_i^+\}$) является оптимальным.

В частности, если $n_i^+ = N$ (минимально возможное), то вариант с номером i^* назовем абсолютно приоритетным или абсолютно устойчивым, в противном случае, если $n_i^+ > N$, то вариант выбора набора технологических операций с номером i^* будем называть относительно устойчивым.

Вычисляем показатель устойчивости:

$$St_{i^*} = \frac{nN - n_{i^*}^+}{nN - N}. \quad (5)$$

Показатель устойчивости оптимального варианта выбора набора технологических операций с номером i^* равен 1, если этот вариант абсолютно устойчив.

Чем больше St_{i^*} (чем ближе к 1) для варианта выбора набора технологических операций с номером i^* , тем устойчивее этот оптимальный вариант.

На рисунках 1, 2 показаны гистограммы комплексного показателя по результатам расчета комплексного показателя и показателя устойчивости методом Монте-Карло для четырех вариантов выбора набора технологических операций.

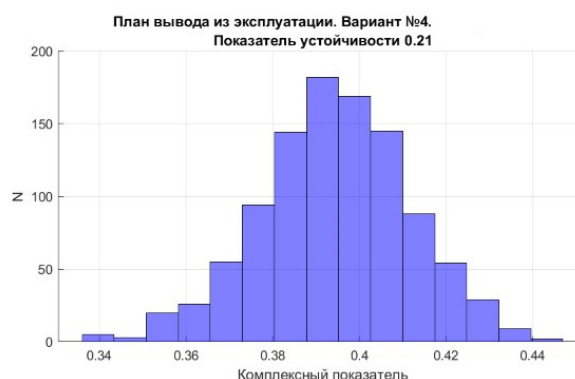
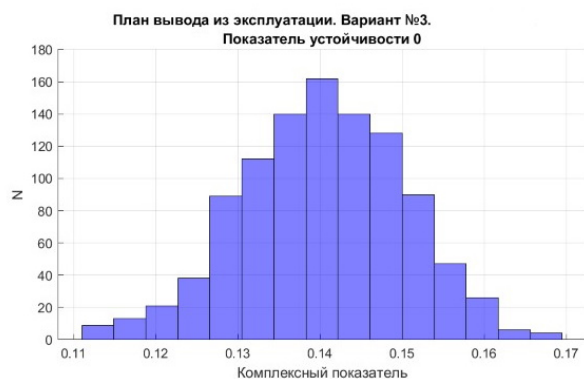
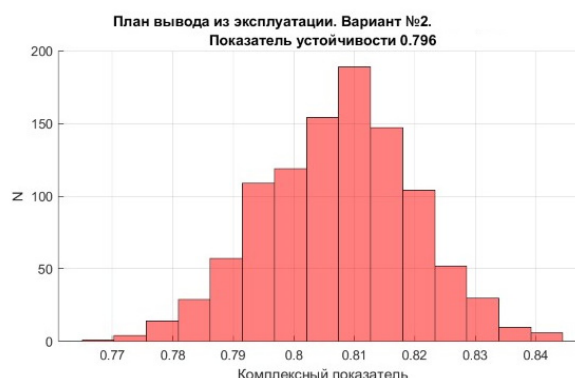
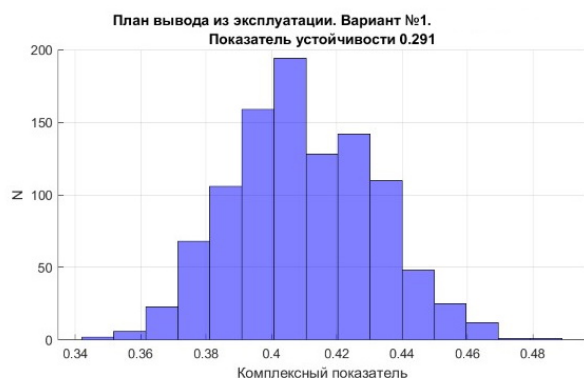


Рис. 1. Результаты расчета устойчивости методом Монте-Карло для вариантов №1, 2 при равных коэффициентах приоритета частных показателей

Рис. 2. Результаты расчета устойчивости методом Монте-Карло для вариантов №3, 4 при равных коэффициентах приоритета частных показателей

Из рисунков 1, 2 видно, что второй вариант выбора набора технологических операций с показателем устойчивости равным 0.796 является оптимальным и условно устойчивым.

Заключение

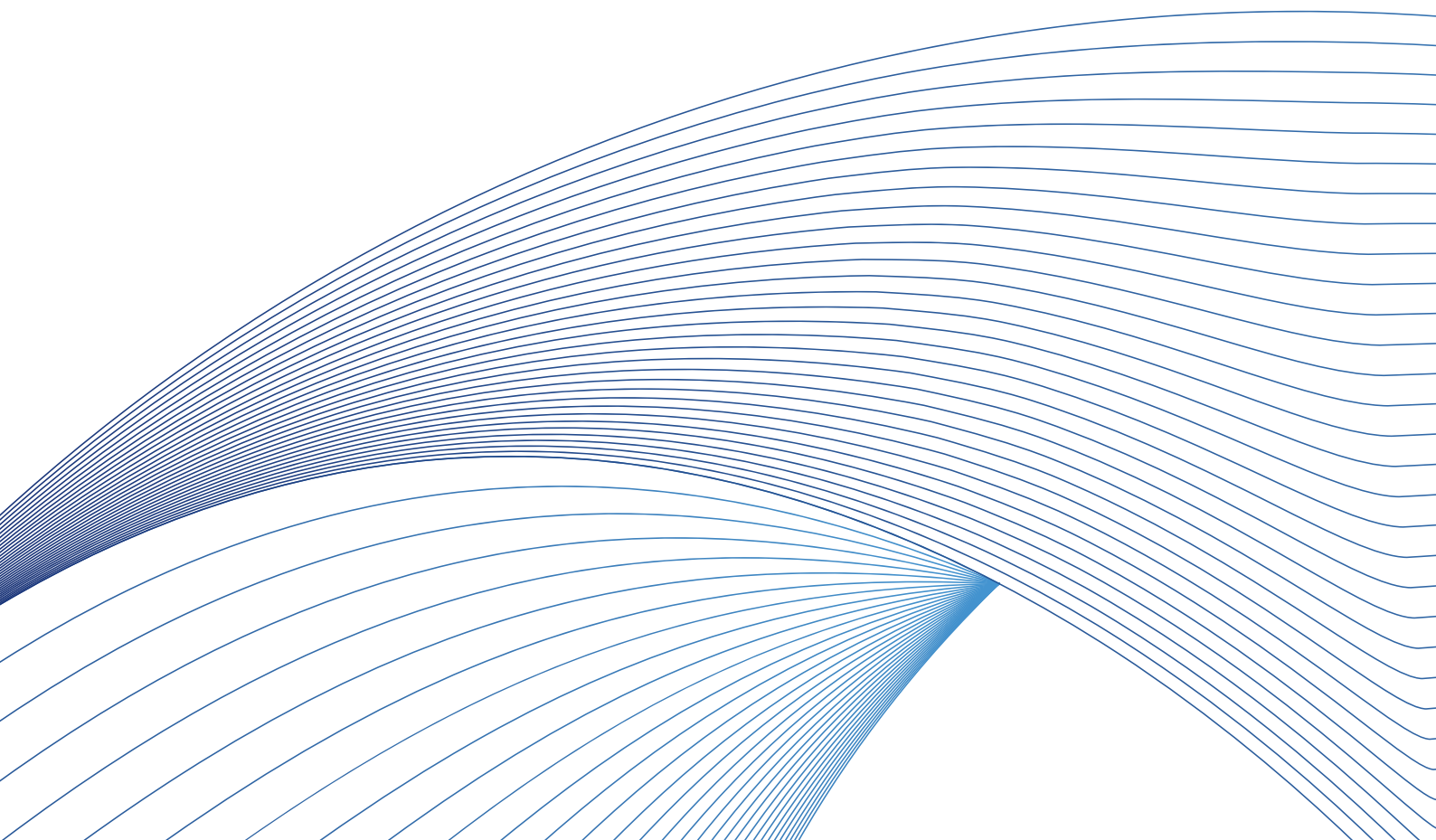
Отметим, что различным сторонам оценивания вариантов реализации ВЭ ОИАЭ посвящены работы [1-7]. Представленная в данной работе схема использована в системе поддержки принятия оптимальных решений при реализации ВЭ ОИАЭ [8]. В статье представлены результаты научных исследований, выполненные в рамках договора № 313/1685-Д, финансируемого АО «Наука и инновации».

Список литературы

1. НП-091-14 «Обеспечение безопасности при выводе из эксплуатации объектов использования атомной энергии. Общие положения».
2. Емец П.Е., Ковалевич О.М., Крянев А.В., Неретин В.А., Шарафутдинов Р.Б. Системный подход при финансировании мероприятий по выводу из эксплуатации ЯРОО, классифицируемых в зависимости от категории их ЯРО. Препринт МИФИ 005-2007. М.: МИФИ, 2007, 23 с.
3. Емец П.Е., Крянев А.В. Схема системных оценок оптимального объема финансирования, направляемого на обеспечение ядерной и радиационной безопасности выводимых из эксплуатации ядерно и радиационно опасных объектов. Аудит и финансовый анализ. №3, 2010.
4. Емец П.Е., Крянев А.В. Экономическая эффективность вывода из эксплуатации ядерно и радиационно-опасных объектов. Ядерная и радиационная безопасность, 2011, №1 (59), с. 10-19.
5. Бочкарев В.В., Крянев А.В., Ханбикова Д.Т. Ранжирование ядерно и радиационно опасных объектов, эксплуатация которых прекращена. Материалы Всероссийской конференции с международным участием «Информационно-телекоммуникационные технологии и математическое моделирование высокотехнологичных систем», Москва, РУДН, 22-25 апреля 2014, с. 195-197.
6. Valeriy V. Bochkarev, Alexandr V. Kryanev, Dmitry S. Smirnov. Mathematical decision support model for the decommissioning of nuclear power facilities. 10th International Congress on Ultra Modern Telecommunications and Control Systems and Workshops (ICUMT), 2018, pp. 453-458.
7. Абакумова А.С., Бочкарев В.В., Крянев А.В. Обоснование выбора варианта вывода из эксплуатации объектов использования атомной энергии, Ядерная и радиационная безопасность, № 3(87), 2018.
8. В. В. Бочкарев, Б. Д. Бриллиантов, А. В. Крянев, А. А. Бацулин, С. Г. Климанов, О. Ю. Литвиненко, Д. В. Мамай, Д. Е. Слива, Д. С. Смирнов, П. А. Стряпушкин, В. И. Терешкин, Д. Т. Ханбикова. Структура системы поддержки принятия оптимальных решений при выводе из эксплуатации объектов использования атомной энергии. Вестник НИЯУ МИФИ, т. 9, №4, 2020.

СЕКЦИЯ V

Организация профессиональной
подготовки кадров в области
ВЭ ЯРОО и обращения с РАО



О подготовке специалистов в области ВЭ ЯРОО в Санкт-Петербургском технологическом институте

Акатов А.А., Нечаев А.Ф.

Санкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет),

Санкт-Петербург

e-mail: Radioecology_dept@technolog.edu.ru

Аннотация. *В работе оценены масштаб, особенности задач по ВЭ ЯРОО и потребность в специалистах; обсуждается степень готовности вуза к введению дисциплины «Организация, технология и экономика вывода из эксплуатации ЯРОО» в плане наличия соответствующего учебно-методического комплекса и квалификации профессорско-преподавательского состава; приведены краткое содержание курса, задачи освоения дисциплины и целевая аудитория.*

Ключевые слова: ядерный и радиационно опасный объект, вывод из эксплуатации, радиоактивные отходы, реабилитация промплощадок, подготовка специалистов.

On the training of the specialists for nuclear facilities decommissioning in St.-Petersburg institute of technology

Akatov A.A., Nechaev A.F.

Saint-Petersburg State Institute of Technology, Saint-Petersburg

e-mail: Radioecology_dept@technolog.edu.ru

Abstract. *In this paper an assessment of the scale and features of the tasks for nuclear facilities decommissioning as well as the need for specialists have been done; the degree of readiness of the institute for the introduction of the discipline 'Organization, technology and economics of nuclear facilities decommissioning' is discussed in terms of availability of an appropriate educational and methodical complex and the teaching staff competence; the summary of the course, the tasks of mastering the discipline and the target audience are given.*

Keywords: nuclear and radiation hazardous objects, decommissioning, radioactive waste, restoration of industrial sites, training of specialists.

Вывод из эксплуатации ядерных и радиационно опасных объектов (ВЭ ЯРОО) в России становится одной из отраслей масштабной экономической деятельности. Только для решения проблем т.н. «ядерного наследия» (табл. 1) потребуются от 40 (при интенсивном сценарии реализации ФЦП ЯРБ) до 100 лет. Помимо этого следует учитывать потребность в планомерном ВЭ исчерпывающих проектный срок службы блоков АЭС, исследовательских и транспортных ядерных реакторов, объектов ЯТЦ, атомной науки, приборов и устройств различного назначения с радионуклидными источниками, хранилищ РАО и промышленных отходов с техногенно повышенным содержанием природных радионуклидов.

Таблица 1 – Остановленные и планируемые к останову ЯРОО [1]

Тип ЯРОО	Общее кол-во	Годы				
		до 2008	2008-2015	2016-2025	2026-2035	после 2035
Ядерная установка	331	37	31	73	25	165
Пункт хранения	1 253	290	68	120	61	714
Радиационный источник	479	24	41	34	25	355
Радиационно загрязн. здания и соор.	44	9	4	8	11	12
Радиационно загрязн. территории	22	–	–	–	–	–
Объекты мирных ядерных взрывов	80	–	–	–	–	–
Всего	2 210	360	144	235	122	1 246

Не будет преувеличением утверждать, что сегодня ВЭ ЯРОО является в России актуальной проблемой национального масштаба. Причем не только и не столько технической, но в большой степени – экологической, отчасти – политической и, в значительной мере, социальной. В «Основах государственной политики в области обеспечения ядерной и радиационной безопасности Российской Федерации» ВЭ ЯРОО с «обезвреживанием» РАО и восстановлением экологического качества промплощадок отнесены к одной из приоритетных задач социально-экономического развития и обеспечения национальной безопасности страны.

Учитывая это обстоятельство, а также отсутствие разумной альтернативы использованию радионуклидов и излучений в энергетике, медицине, промышленности, космической технике, очевидно, что ВЭ ЯРОО, как один из видов масштабной экономической активности, будет востребован на протяжении жизни многих поколений, а успешность его осуществления (включая не только технические, но экономические, экологические, институциональные и социальные аспекты) во многом зависит от наличия достаточного и компетентного кадрового ресурса.

Эта логическая посылка послужила основанием для разработки и включения в учебный план кафедры инженерной радиоэкологии и радиохимической технологии (ИРРТ) Санкт-Петербургского государственного технологического института (технического университета) (СПбГТИ(ТУ)) дисциплины «Организация, технология и экономика вывода из эксплуатации ЯРОО» в рамках специальности 18.05.02 «Химическая технология материалов современной энергетики».

Целью освоения дисциплины является базовая подготовка инженера радиохимического профиля к проведению исследований и осуществлению организационной и технической деятельности в области вывода из эксплуатации ядерных и радиационно опасных объектов. Освоение дисциплины призвано способствовать формированию комплексного, всестороннего восприятия проблемы, что, в свою очередь, обеспечит реализацию преимущественно оптимизированных процедур планирования и выполнения проектов вывода ЯРОО из эксплуатации с учетом всех основных особенностей, способных повлиять на конечный результат и таким образом, чтобы решения, принятые на одной из стадий процесса, не исключали разумных альтернатив на последующих этапах вывода из эксплуатации.

При обосновании необходимости включения новой дисциплины в программу подготовки инженеров-радиохимиков немаловажное значение имел и тот факт, что сегодня потребности ВЭ ЯРОО стимулируют НИР и ОКР, по крайней мере, не в меньшей степени, чем «основная» технология. Достаточно, по-видимому, упомянуть:

- лазерное излучение, ультразвук, сверхкритическое состояние воды, химические нанокавитанты для дезактивации;
- GPS-технологии и гамма-локаторы для инженерно-радиационного обследования объектов;
- компьютерное 3D-моделирование для «холодного» тестирования процессов ВЭ;
- синтетические минералоподобные материалы и нанотрубки для матричной изоляции долгоживущих радионуклидов;
- хитозаны, фуллерены и графены для глубокой переработки отходов.

Результаты этих исследований и разработок не всегда находят воплощение в промышленной практике ВЭ. Но то, что они являются драйвером активного роста инновационного потенциала как атомной отрасли, так и промышленности в целом, равно как и то, что использование этих инноваций в процессе подготовки радиохимиков-технологов способствует расширению кругозора и повышению творческой активности выпускников – несомненно.

Выбор кафедры ИРРТ, созданной в 1949 г., определялся богатыми педагогическими традициями подготовки радиохимиков-технологов и, главное – активной вовлеченностью профессорско-преподавательского коллектива в исследования и разработки по широкому спектру проблем ВЭ. С начала 1990-х годов сотрудники кафедры участвовали в качестве приглашенных российских экспертов в координационных исследовательских проектах, программах технического содействия и работе консультативных групп Международного Агентства по атомной энергии (МАГАТЭ) по таким аспектам ВЭ ЯРОО, как политика и стратегия [2, 3], регулирование, управление и организация [4-6], техника и технология [7-10], безопасное обращение с отходами [11-14], социально-экономическое влияние [15]. В 2015 г. по заказу Санкт-Петербургского филиала Технической академии Росатома на кафедре разработана программа повышения квалификации сотрудников атомной отрасли в области ВЭ ЯРОО. Специалисты кафедры на регулярной основе привлекаются для чтения лекций, проведения семинарских занятий и лабораторных практикумов (в т.ч. на кафедре ИРРТ, имеющей лицензию Ростехнадзора).

Аналитические обзоры, технические отчеты и руководства МАГАТЭ, подготовленные с участием сотрудников кафедры ИРРТ, а также учебные пособия для вузов, разработанные в кооперации с Радиевым институтом им. В.Г. Хлопина, Технической академией Росатома, Озерским филиалом НИЯУ МИФИ, Белгородским технологическим университетом и при участии подкомитета Государственной Думы РФ по законодательному обеспечению использования атомной энергии [16-19], формируют сбалансированный, вобравший в себя мировые тенденции и практики учебно-методический комплекс для подготовки радиохимиков-технологов, обладающих компетенциями, которые востребованы сегодня на заключительном этапе жизненного цикла ЯРОО.

Рабочий план дисциплины охватывает практически все принципиальные этапы и компоненты ВЭ:

- организацию и планирование;
- комплексное инженерно-радиологическое обследование (КИРО) объектов;
- демонтаж и дезактивацию технологических систем, оборудования, зданий и сооружений ЯРОО;
- обращение с радиоактивными отходами;
- восстановление экологического качества промышленных площадок;
- социальные аспекты;
- методы и инструменты укрупненных оценок стоимости ВЭ ЯРОО.

Относительно небольшой объем курса (400 часов, включая лабораторные и практические занятия) связан с тем, что адресован он слушателям с базовой радиохимической и общинженерной подготовкой. Поэтому в процессе освоения дисциплины внимание обучающихся сконцентрировано преимущественно на тех процессах и процедурах, которые непосредственно отражают специфические особенности ВЭ ЯРОО.

К примеру, при обсуждении технологий дезактивации упор делается на «жестких» малоотходных методах, которые, как правило, не применяются на стадии эксплуатации ЯРОО с учетом потенциальной опасности недопустимого изменения функциональных свойств конструкционных материалов. В области обращения с радиоактивными отходами (как эксплуатационными, так и образующимися при ВЭ) технология и организационные аспекты рассматриваются в свете требований, диктуемых стратегией вывода ЯРОО из эксплуатации. А именно: вместо доминирующей до недавнего времени парадигмы «перерабатывай и храни» в соответствии с общей логикой процесса ВЭ, законом № 190-ФЗ «Об обращении с радиоактивными отходами...» и положениями подзаконных актов, формирующих требования к конечному состоянию РАО (директивное сокращение сроков контролируемого хранения на промплощадках с последующим обязательным захоронением отходов), алгоритм действий теперь должен определяться руководящей идеей «приводи РАО в соответствие с критериями приемлемости для захоронения, пакуй и вывози», что коренным образом изменяет схему обращения с радиоактивными отходами на всех этапах жизненного цикла ЯРОО.

Важно отметить, что введение в учебную программу новой дисциплины не имеет целью подготовку кадров, специализирующихся исключительно в области вывода из эксплуатации ЯРОО. Практика ВЭ убедительно продемонстрировала необходимость изменения ныне принятой технологии обращения с эксплуатационными отходами ЯРОО [20]; изменились (точнее – должны меняться) критерии оценки проектно-конструкторских решений при создании новых объектов использования атомной энергии; рутинной обязанностью эксплуатирующих организаций стала упреждающая разработка концепций и программ ВЭ ЯРОО; проекты новых объектов использования атомной энергии в обязательном порядке должны содержать информацию, необходимую для вывода ЯРОО из

эксплуатации, включая предпочтительные технологии демонтажа и дезактивации, оценки количества и природы РАО, образующихся при ВЭ и др.

Иными словами, наличие компетенций (знаний, умений, навыков) в области ВЭ ЯРОО является сегодня обязательным квалификационным требованием, предъявляемым к персоналу проектно-конструкторских, научно-исследовательских, надзорных организаций и эксплуатируемых ядерных и радиационно опасных установок.

Именно этот вызов современного этапа развития атомной науки и техники и принимался в расчет при создании и введении в учебную программу специальности «Химическая технология материалов современной энергетики» дисциплины «Организация, технология и экономика вывода из эксплуатации ЯРОО».

Резюмируя вышеизложенное, отметим:

(1) Только для ликвидации т.н. «ядерного наследия» может потребоваться до 100 лет при ежегодных затратах в несколько десятков млрд. руб. Таким образом, ВЭ ЯРОО будет активно востребован на протяжении жизни многих поколений, а успешность выполнения программ во многом определяется наличием компетенций в области ВЭ ЯРОО не только у работников специализированных компаний, но в равной степени – у персонала проектно-конструкторских, научно-исследовательских, надзорных организаций и эксплуатируемых ЯРОО. Последнее, несомненно, должно учитываться при подготовке специалистов радиохимического профиля.

(2) В СПбГТИ(ТУ) эта задача решена путем включения в учебный план кафедры ИРПТ дисциплины «Организация, технология и экономика вывода из эксплуатации ЯРОО», которая охватывает все принципиальные этапы вывода из эксплуатации объектов использования атомной энергии, адресована слушателям с базовой радиохимической и общинженерной подготовкой и сконцентрирована преимущественно на тех процессах и процедурах, которые непосредственно отражают специфические особенности ВЭ ЯРОО.

(3) Более чем 70-летняя история существования кафедры ИРПТ (организована в составе инженерного физико-химического факультета Постановлением Совета Министров СССР в 1948 г.) и почти 30-летний опыт участия профессорско-преподавательского состава кафедры в российских и международных проектах по выводу из эксплуатации ядерных и радиационно опасных объектов способны обеспечить гарантии качества подготовки специалистов.

Список литературы

1. Ликвидация ядерного наследия: 2008-2015 годы / под общей редакцией А.А. Абрамова, О.В. Крюкова, И.И. Линге. – Москва: ОАО «Энергопромалитика», 2015. – 182 с.
2. *Factors for formulating strategies for environmental restoration (IAEA-TECDOC-1032)*. – Vienna: IAEA, 1998. – 85 p.
3. *Policies and strategies for the decommissioning of nuclear and radiological facilities*. – Vienna: IAEA, 2012. – 30 p.
4. *Planning for environmental restoration of radioactivity contaminated sites in Central and Eastern Europe (IAEA-TECDOC-865)*. Vol.1-3. – Vienna: IAEA, 1996. – 760 p.
5. *Design criteria for a worldwide directory of radioactivity contaminated sites (IAEA-TECDOC-1251)*. – Vienna: IAEA, 2001. – 187 p.
6. *Record keeping for the decommissioning of nuclear facilities: guidelines and experience (TRS 411)*. – Vienna: IAEA, 2002. – 182 p.
7. *Technologies for remediation of radioactivity contaminated sites (IAEA-TECDOC- 1086)*. – Vienna: IAEA, 1999. – 271 p.
8. *State-of-the-art technology for decontamination and dismantling of nuclear facilities (TRS 395)*. – Vienna: IAEA, 1999. – 271 p.
9. *Decommissioning techniques for research reactors (IAEA-TECDOC-1273)*. – Vienna: IAEA, 2002. – 250 p.
10. *Decommissioning of research reactors: evolution, state-of-the-art, open issues (TRS 446)*. – Vienna: IAEA, 2006. – 156 p.
11. *Minimization of waste from uranium purification, enrichment and fuel fabrication (IAEA-TECDOC-1115)*. – Vienna: IAEA, 1993. – 42 p.
12. *Management of problematic waste and materials during the decommissioning of nuclear facilities (TRS 441)*. – Vienna: IAEA, 2006. – 71 p.
13. *Retrieval of fluidizable radioactive waste from storage facilities (IAEA-TECDOC-1518)*. – Vienna: IAEA, 2006. – 135 p.
14. *Disposal aspects of low and intermediate decommissioning waste (IAEA-TECDOC- 1572)*. – Vienna: IAEA, 2008. – 168 p.
15. *Managing the socioeconomic impact of the decommissioning of nuclear facilities (TRS 464)*. – Vienna: IAEA, 2008. – 136 p.
16. Нечаев, А.Ф. Экономика заключительной стадии жизненного цикла ядерных и радиационно-опасных объектов / А.Ф. Нечаев, И.В. Смирнов. – Санкт-Петербург: Издательский дом «Инфо Ол», 2014. – 112 с.
17. Нечаев, А.Ф. Научные, правовые и организационные основы обеспечения радиационной безопасности: учебное пособие / А.Ф. Нечаев, В.И. Павленко. – Санкт-Петербург, Белгород: Издательство БГТУ, 2012. – 142 с.

18. Нечаев, А.Ф. *Состояние и особенности российской системы категорирования радиоактивных отходов (справочно-методическое пособие)* / А.Ф. Нечаев, В.Т. Поцяпун, Т.Н. Таиров. – Санкт-Петербург: Издательство СПбГТИ(ТУ), 2015. – 49 с.
19. Нечаев, А.Ф. *Регулирование и технология «обезвреживания» радиоактивных отходов (справочное пособие)* / А.Ф. Нечаев, И.В. Смирнов, В.И. Цветков. – Озерск: Озерский технологический институт–филиал НИЯУ МИФИ, 2016. – 175 с.
20. Vinnitskii, V.A. *Incentives and prerequisites for modernizing NPP radwaste management* / V.A. Vinnitskii, A.F. Nechaev, A.S. Chugunov, V.I. Pereguda, I.V. Ryzhov // *Atomic energy*. – 2017. – Vol. 121, N 5. – P. 350-354.

Программы подготовки кадров в области управления проектами вывода из эксплуатации ЯРОО

Петров В.Г., Пуятин А.В.

Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова, г. Москва, Россия

e-mail:vladimir.g.petrov@gmail.com

Аннотация. *Вывод из эксплуатации (ВЭ) ядерно и радиационно опасных объектов (ЯРОО) является одной из самых сложных и в то же время актуальных задач. Сложность заключается в возрасте выводимых из эксплуатации объектов, что зачастую обуславливает отсутствие или недостаток критически важной для принятия решений информации. Кроме того, отсутствует единый технологический подход для ВЭ, поскольку каждый объект уникален. Уникальность объектов и недостаток компетенций менеджмента приводит к частым ошибкам, связанным с неправильным планированием, расчетом стоимости и комплексными ошибками в управлении проектами в области ВЭ ЯРОО. Вследствие этих сложностей и зачастую формального подхода к только один из трех проектов реализуется успешно, считаясь высокорискованными, а подготовка кадров в этой области требует новых подходов. Результатом реализации одного из таких подходов является созданная в МГУ магистерская программы по Управлению проектами в области ВЭ ЯРОО (включая обращение с РАО).*

Ключевые слова: вывод из эксплуатации, управление проектами, подготовка кадров, обучение.

Training programs in the field of project management for decommissioning of nuclear facilities

Petrov V.G., Putyatin A.V.

Lomonosov Moscow State University, Moscow, Russia

e-mail:vladimir.g.petrov@gmail.com

Abstract. *Decommissioning of nuclear facilities (is one of the most difficult and at the same time urgent tasks. The difficulty is mainly due to the age of the objects being decommissioned, which often leads to the absence or lack of information that is critical for decision-making. In addition, there is no unified technological approach for decommissioning since each facility is unique. The uniqueness of the objects and the lack of management competencies results in common errors related to with wrong planning, wrong cost calculation and complex errors in the project management in the field of decommissioning of nuclear facilities. As a result of these obstacles and often formal approach to project management, only one of the three projects is being successfully implemented, therefore projects on decommissioning are considered high-risk, and education in this area requires new approaches. The result of the implementation of one of these approaches is the created at Moscow State University master's program in Project Management in the field of decommissioning (including radioactive waste management).*

Keywords: decommissioning, project management, training, education.

Образовательная программа подготовки кадров в области вывода из эксплуатации ядерно- и радиационно-опасных объектов (включая обращение с радиоактивными отходами) разрабатывалась с целью подготовки специалистов для атомной отрасли России и стран-новичков, с компетенциями и в области управления проектами и в области естественных наук с использованием базовых знаний по радиационной химии, материаловедению, технологиям в области ВЭ, обращению с РАО и радиоэкологии.

При создании программы был изучен опыт зарубежных коллег: Бельгийского центра ядерных исследований, Словацкого Технологического Университета в Братиславе, Французской комиссии по атомной энергии, Технологического института в Карлсруэ и других, а также учтены требования международных организаций: МАГАТЭ и ОЯЭ ОЭСР.

Созданная образовательная программа «Управление проектами в области вывода из эксплуатации ядерно- и радиационно-опасных объектов (включая обращение с радиоактивными отходами)» реализуется на химическом факультете в соответствии с образовательным стандартом, самостоятельно устанавливаемым МГУ имени М.В. Ломоносова по направлению подготовки магистров «Химия».

В результате оптимального сочетания фундаментальной и прикладной подготовки выпускники программы приобретают комплексные компетенции, которые позволяют им успешно работать в командах. Готовность к междисциплинарному диалогу, понимание особенностей современного бизнеса и технологий позволит эффективно управлять сложными высокотехнологическими проектами, такими как вывод из эксплуатации ЯРОО.

Однако подготовка кадров не ограничивается только магистерской программой в ее классическом виде. Эпидемия новой коронавирусной инфекции способствовала развитию и распространению онлайн форм обучения. Не стал исключением и образовательный процесс в МГУ. Все курсы стали доступны для студентов в любой точке мира. Пожалуй, единственным исключением остается практическая подготовка специалистов. Однако развитие VR-технологий позволяет преодолеть и этот барьер.

МГУ является участником общеевропейского образовательного проекта A-CINCH, задача которого является распространение знаний о ядерных технологиях. В рамках этого проекта реализуется и VR-симуляция радиохимической лаборатории.

Для повышения квалификации специалистов разрабатываются новые онлайн курсы, которые представляют собой отдельные модули магистерской программы. Онлайн курсы можно пройти за 1-2 недели без необходимости командировки в другой город или страну. При этом программа модуля может быть подобрана и подготовлена под нужды конкретного заказчика. Такой модульный подход позволяет повысить качество подготовки специалистов и сократить время на получение информации в узкоспециализированной области.

Перспективы проекта МАГАТЭ «Глобальный статус вывода из эксплуатации»

Ильин В.А.¹, Ракитская Т.Г.², Комаров Е.А.²

¹ – ФГУП «РАДОН»

e-mail: VaAllyin@radon.ru

² – Госкорпорация «Росатом»

e-mail: TGRakitskaya@rosatom.ru EAKomarov@rosatom.ru

Аннотация. В работе приводится информационное сообщение о назначении и ходе реализации проекта МАГАТЭ «Глобальный статус вывода из эксплуатации», реализация которого начата в августе 2019 года.

Ключевые слова: атомная электрическая станция, ядерный исследовательский реактор, объект ядерно-топливного цикла, вывод из эксплуатации, технологии обращения с отходами

Challenges of the IAEA's project “Global Status of Decommissioning” implementation

V.A. Ilyin¹, T.G. Rakitskaya², E.A. Komarov²

¹ – FSUE RADON

e-mail: VaAllyin@radon.ru

² – State Atomic Energy Corporation Rosatom

e-mail: TGRakitskaya@rosatom.ru EAKomarov@rosatom.ru

Abstract. The paper informs about intent and implementation of the IAEA's project named as 'Global Status of Decommissioning' commenced in August of 2019.

Keywords: nuclear power plant, nuclear research reactor, nuclear fuel cycle facility, decommissioning, waste management technologies

Назначение и задача проекта

Проект МАГАТЭ под названием ‘Global Status of Decommissioning’ – «Глобальный статус вывода из эксплуатации» (далее – GSD-проект) стартовал в августе 2019 года и в настоящее время продолжается. Основанием запуска GSD-проекта стали результаты консультативных и технических совещаний Секретариата МАГАТЭ. Основная задача проекта – описание Глобального статуса и трендов в области вывода из эксплуатации (ВЭ) ядерно и радиационно-опасных объектов (ЯРОО) на основе сбора информации о текущем состоянии и оценке вероятного развития процесса вывода из эксплуатации объектов. Такая информация в настоящее время в консолидированном виде отсутствует, поэтому результаты проекта должны быть направлены на восполнение существующих пробелов в информации. Материальным результатом GSD-проекта должно явиться опубликование международного отчета согласно требованиям МАГАТЭ (далее – Отчет).

Ключевыми особенностями результирующего Отчета GSD-проекта должно стать то, что он будет способствовать возможности:

- Проведения сопоставительного анализа, планирования и принятия решений;
- Сотрудничества между государствами-членами МАГАТЭ, имеющими схожие трудности и возможности;
- Получения необходимой информации для последующего анализа.

Область исследований

В GSD-проекте рассматриваются три типа объектов использования атомной энергии (ОИАЭ) – атомные электростанции (АЭС), исследовательские реакторы и реакторы прототипы (ИРиРП), объекты ядерно-топливного цикла (ЯТЦ), в том числе объекты по производству, обогащению и переработке ядерного топлива и объекты переработки и хранения отходов от этих процессов.

Инструментарий и организационная структура

Инструментом или формой для сбора, упорядочивания и анализа информации является разработанная в январе 2020 года Руководящей группой проекта в Excel-формате опросная форма для стран-участниц и определены ответственные координаторы по всем странам-участницам. Опросная форма содержит вопросы и поля для заполнения и дальнейшей обработки и анализа полученной информации рабочей группой GSD-проект.

Структурно-рабочая группа GSD-проекта сформирована из:

- Руководящей группы (РГ), которая на консультативных совещаниях обсуждает и принимает организационно-управленческие решения по всем проблемным вопросам сбора и анализа данных, а также формирует и рассылает членам рабочей группы на рассмотрение актуализированные редакции Отчета,
- Технической группы (ТГ), состоящей из координаторов и специалистов, которая собирает, анализирует и направляет в РГ на рассмотрение и обсуждение информацию для формирования Отчета.

Ход реализации проекта

В ходе реализации проекта стало очевидным, что особенностью настоящего GSD-проекта является постановка «амбициозных» задач на проведение всестороннего анализа глобальной ситуации в области ВЭ в связи с угрозой формирования второго «ядерного наследия» из-за накопившихся проблем в области заключительной стадии жизненного цикла (ЗСЖЦ). С одной стороны, для этого требуется сбор данных о разных аспектах деятельности по ВЭ, причем не только технологических и организационно-управленческих (данных по обеспечению этой деятельности собственным персоналом, степени участия сторонних организаций в выполнении работ, оценки стоимости работ и механизмов финансирования), но и более широких контекстных данных. С другой стороны, предпринятая попытка объединить в одном исследовании все типы ядерных установок (ЯУ), подлежащих ВЭ, включая АЭС, ИРиРП и установки ядерно-топливного цикла (УЯТЦ), информация о которых ранее собиралась в разных системах (PRIS – Power Reactor Information System для АЭС, RRDB – Research Reactor Database для ИР, INFCIS – Integrated Nuclear Fuel Cycle Information System для УЯТЦ), приводит к методологическим проблемам стыковки существующих стандартов и подходов. Поэтому уже этап формирования исходного массива данных для аналитической работы обнаружил остроту этих проблем, когда в качестве основных контрагентов (ключе-

вых заинтересованных сторон) были выбраны организации-операторы различных ЯУ, которые группировались по географическому принципу (субконтинентальные макрорегионы).

Проблемы проекта

По итогам сбора информации в опросных формах на начало марта 2021 из числа развитых ядерных стран результат оказался следующим:

- только две страны предоставили данные и информацию по всем имеющимся гражданским ядерным объектам – это Россия и Украина;
- Китай и США данных практически не предоставили;
- Франция, Канада, Япония и Южная Корея предоставили только часть данных.

В части аналитического качества собранных данных запрашиваемая информация и полученные данные не позволяют провести интересный и глубокий анализ ситуации в области ВЭ ЯРОО на глобальном уровне. В первую очередь, это связано с тем, что:

- информация и данные запрашивались у операторов ЯУ, которые, как правило, имеют краткосрочный горизонт видения, а само видение носит локальный и коммерческий характер;
- для формирования глобальной картины, фактически, оказались доступны только два параметра: страна/географический регион и тип установки/тип реактора.

Для повышения качества глобальной аналитики предложено провести кластеризацию областей ВЭ ЯРОО, которая позволит на имеющихся данных продемонстрировать многоаспектный характер Глобального статуса и разработать более детальные опросные формы для следующего этапа исследований, в том числе, для анализа трендов в области ВЭ (Рис.1).



Рис.1 – Расширение методологического подхода к анализу собранных данных

В целом, сложности с описанием Глобального статуса и трендов в области ВЭ ЯРОО имеют по большей части очевидные причины.

Различные политические ситуации в странах. Например, только Россия и Франция (в меньшей степени Япония и Южная Корея) стоят перед реальными проблемами в этой области и вынуждены существенно менять точку

своего зрения: перестать обсуждать ВЭ отдельной установки ЯРОО, а рассматривать всю совокупность ЯРОО (например, весь флот АЭС), и решать задачу организации деятельности в области ВЭ в логике управления жизненным циклом своих национальных программ (включая программы реабилитации объектов ядерного наследия), а также поддерживая страны, использующие их технологическую платформу. Поэтому для России и Франции важно подтвердить конкурентоспособность ядерной энергетики и извлечь максимальное количество уроков при ВЭ ЯРОО. В то же время для Германии, в которой программа ядерной энергетики закрывается, достаточно провести бенчмаркинг технологий и стоимости работ в области ВЭ отдельных типов установок. В Италии ситуация со свертыванием ядерной программы обусловлена результатами референдума 1987 года как постфактум аварии на Чернобыльской АЭС в апреле 1986 года, и текущие проекты по ВЭ ЯРОО зависят в большей степени от финансирования, а не от технологических проблем. В США накопленные проблемы в области обращения с ОЯТ и РАО препятствуют массовому ВЭ. Для Китая эта задача либо пока вообще не актуальна, либо правительство КНР наложило жесткое вето на распространение какой-либо информации о ядерной программе страны, чтобы не дать возможности утечки информации об их ядерно-оружейном потенциале. Возможно, с такими различными причинами и связано отсутствие данных от этих стран.

Все эти политические различные ситуации необходимо обозначить для целей формирования Глобального статуса и определения трендов в области ВЭ ЯРОО. Причем эта информация не требует заполнения опросных форм на уровне компаний.

Для описания Глобального статуса в области ВЭ важны не столько данные по ЯРОО прошлых поколений, сколько перспективные ЯУ, в том числе, например, малые модульные реакторы. Но пока в этом разрезе аналитика GSD-проекта не формируется. Большое значение имеют технологические платформы, но пока и в этом разрезе аналитика тоже не формируется.

Группировка в разрезе субконтинентальных макрорегионов не только не дает дополнительной аналитической информации, но и вносит искажения в общую картину Глобального статуса. Например, разделение Европы на «западную» и «центральную и восточную» в условиях единого центра принятия решений в Евросоюзе для большинства стран этих двух макрорегионов, – сегодня уже практически не имеет смысла.

Особенно важна возможность обработки данных из открытых источников и привлечение искусственного интеллекта к сбору и анализу таких данных в области ВЭ ЯРОО. Нужно определить, какие и для какого анализа данные нам нужны. На этом список причин не исчерпывается, и необходимо искать пути преодоления этих сложностей.

Для Госкорпорации «Росатом» участие в разработке методологии сбора и анализа данных, позволяющей получать реальную и аналитически емкую Глобальную картину (статус) в области ВЭ, является исключительно важной задачей как для решения задач внутри страны, так и на мировых рынках ВЭ и обращения с РАО. Подключение АО «ТВЭЛ», корпоративного интегратора в области ВЭ, к разработке подходов к описанию Глобального статуса и трендов в области ВЭ позволит увидеть потенциальные для интегратора рынки и виды услуг.

Авторы

А

Авдонин В.В.	22
Акатов А.А.	68
Ахремочкина О.А.	22

Б

Баклай А.А.	45
Бочкарев В.В.	63
Бриллиантов Б.Д.	63

В

Варлаков А.П.	37
Винокуров С.Е.	32
Власова И.Э.	41
Вознесенский Е.А.	28
Вороник Н.И.	10

Г

Германов А.В.	37
Гордеев В.П.	6

Д

Давыдов В.В.	6
-------------------	---

Ж

Жеребцов А.А.	37
--------------------	----

З

Закусин С.В.	28
-------------------	----

И

Ильин В.А.	75
Ильина О.А.	28, 32
Иванов К.А.	56

К

Кадыров И.И.	15
Калмыков С.Н.	32
Климанов С.Г.	63
Кокорев О.Н.	56
Колесник В.В.	22
Комаров Е.А.	75
Коренькова О.Б.	10
Крупская В.В.	28
Крянев А.В.	63
Кузьменкова Н.В.	59
Кузьмук Д.А.	45
Крупская В.В.	28

Л

Леонтьева Т.Г.	45
---------------------	----

Леончик А.И.	15
Любченко М.Л.	6

М

Магомедбеков Э.П.	46, 51
Маковская Н.А.	45
Мамонов А.В.	6, 22
Мамонова Ю.А.	6
Матвеев А.В.	37
Меркушкин А.О.	51

Н

Нечаев А.Ф.	68
------------------	----

О

Обручиков А.В.	51
---------------------	----

П

Петров В.Г.	37, 41, 59, 73
Полканов М.А.	15
Путятин А.В.	73

Р

Радкевич А.В.	10
Разживин С.Г.	6, 22
Ракитская Т.Г.	75
Растунова И.Л.	46
Родионова А.А.	41
Рожкова А.К.	59
Романчук А.Ю.	32
Рощин М.О.	28

С

Савчин В.В.	15
Самосудова А.В.	56
Серебряков В.В.	22
Сибирцев А.М.	59

Т

Тюпина Е.А.	28, 32
------------------	--------

У

Уткин С.С.	32
-----------------	----

Х

Хведчин И.В.	15
-------------------	----

Ч

Чеботов А.Ю.	64
-------------------	----



РАДОН
РОСАТОМ

119121, Москва, 7-й Ростовский пер, 2/14
Тел: 8(495) 545-57-67
E-mail: info@radon.ru
www.radon.ru