

ИЗВЛЕЧЕНИЕ ВЫСОКО АКТИВНЫХ ШЛАМОВ И ИХ ОТВЕРЖДЕНИЕ В АЛЮМОСИЛИКАТНОЙ МАТРИЦЕ SIAL В ПРОЦЕССЕ СНЯТИЯ С ЭКСПЛУАТАЦИИ

D. Majersky, AllDeco, Slovak Republic

1. ВВЕДЕНИЕ

Атомная электростанция А-1 была оснащена газоохлаждаемым реактором с тяжеловодным замедлителем. Вследствие аварии в 1977 году, 150 МВт-ный реактор был остановлен.

Фирма AllDeco в течение последних 10 лет занимается снятием АЭС А-1 с эксплуатации в роли основного исполнителя работ по дезактивации, демонтажу, радиационному контролю, а также по характеристике и обращению с историческими радиоактивными отходами, накопленными в предыдущие десятилетия. Кроме того, в течении последних трех лет был выполнен широкий набор научно-исследовательских работ по отверждению часто встречающихся радиоактивных шламов.

Фирма AllDeco разработала технологию извлечения радиоактивных шламов из различных емкостей, баков, шахт и оборудования АЭС А-1, которую регулярно применяет на практике. Радиоактивные шламы, как правило, содержат значительные количества Cs-137 (как главного гамма излучающего изотопа), а также Pu-238, Pu-239, Pu-240, Am-241, и Sr-90.

Значительное содержание трансурановых элементов (TRU), а также продуктов деления является последствием повреждения многих топливных элементов при эксплуатации реактора а также во время хранения отработанного топлива. В результате аварии, радиоактивные вещества распространены в первом и втором контурах, а также в многих емкостях. Долговременная коррозия и эрозия конструкционных материалов и оболочек топливных элементов, а также добавление различных химикатов в систему охлаждения отработанного топлива, привело к накоплению значительного количества высокоактивных шламов. Радиоактивный шлам, с высоким содержанием TRU накоплен в некоторых установках первого контура. Такого рода радиоактивные шламы принято называть «историческими» отходами из за отсутствия любой информации об их происхождении, составе и природе. Многие из этих шламов тиксотропичные, липкие, вязкие с большой скоростью осаждения. Сухой остаток шламов составляет 15-50 %.

2. ДОЛГОВРЕМЕННОЕ ХРАНЕНИЕ ОТРАБОТАННОГО ТОПЛИВА

Долговременное хранилище – в виде бассейна для охлаждения и хранения отработанного топлива - было предназначено для хранения отработанного топлива в течение эксплуатации реактора АЭС А-1. Топливные сборки были помещены в вертикальных пеналах, изготовленных из углеродистой стали (внутренний диаметр 160 мм, длина 9500 мм).

Бассейн хранилища был заполнен охлаждающей водой, в пеналы с топливными сборками заливался «хромпик» (водный раствор бихромата калия) или даутерм (эвтектическая смесь дифенила и дифенилоксида).

Топливные сборки, помещенные в пеналах с хромпиком, корродировали. Поэтому многие сборки были позже перегружены в пеналы, заполненные менее коррозионно-активной средой – даутермом. Коррозионно-эрозионное разрушение топливных элементов привело к накоплению отходов, содержащих трансурановые элементы в нижней части всех пеналов с хромпиком а также многих с даутермом.

Протечки среды из пеналов, а также утечки при манипуляции с отработанным топливом привели к накоплению органических и неорганических шламов на дне бассейна хранилища.

В процессе эксплуатации, радиационного контроля и отбора проб отходов в течение 1999-2001 гг., была создана над бассейном с пеналами мощная защита из свинцовых плит.

Дозовые нагрузки, измеренные у дна бассейна, находились в диапазоне 50 – 1000 мГр/ч и с большой вероятностью были связаны с присутствием пеналов в бассейне. Исходя из дистанционного осмотра пеналов с использованием телекамеры, на дне каждого пенала предполагалось присутствие 0,2- 1,5 л радиоактивного шлама.

Дно бассейна покрыто слоем шлама в 200 – 300 мм. Этот шлам является смесью органических соединений (в основном даутерм) и суспензии воды с нерастворимыми неорганическими компонентами. Средняя активность Cs-137 в шламе после простого разделения фаз была 10^5 Бк/л для водной фазы, 10^6 Бк/л для органической фазы и 10^9 Бк/л для неорганических компонентов. Общее количество шламов на дне бассейна было оценено в 20 – 25 м³. Схематическое изображение шламов в пеналах и на дне бассейна приведено на Рис. 1 и 2.

До сих пор была осуществлена иммобилизация (фиксирование) шламов из 72 пеналов.

Опытная иммобилизация (фиксирование) шламов из 50 пеналов содержащих остатки даутерма запланирована на конец 2004 г.

Исходя из результатов пилотного опыта проведенного в 2003 г., в 2004 г. осуществляется в промышленном масштабе извлечение, разделение и фиксирование шлама со дна бассейна.

3. ИММОБИЛИЗАЦИЯ ШЛАМОВ, СОДЕРЖАЩИХ ТРАНСУРАНОВЫЕ ЭЛЕМЕНТЫ

С 1997 г. AllDeco была в значительной мере вовлечена в проблему отверждения радиоактивных шламов. AllDeco регулярно осуществляла извлечение и сбор различных типов шламов на АЭС А-1, В-1 и В-2 в Ясловских Богуницах, в том числе «исторических отходов» и отходов с высокой удельной активностью. Особое внимание при этом уделялось переработке накопленных шламов в безопасную твердую форму, соответствующую требованиям для окончательного захоронения переработанных отходов или для их временного хранения на АЭС. На основе научно-исследовательских работ и успешных испытаний на полупромышленной установке был предложен метод прямого фиксирования шлама в SIAL матрице в стандартных 60 или 200 л бочках при комнатной температуре в течение 30 – 60 минут.

Разработанная SIAL матрица, позволяющая иммобилизацию радиоактивного шлама при комнатной температуре и характеризуемая окончательным сокращением объема продукта после выслушивания при комнатной температуре, является продуктом поликонденсации неорганических составляющих, а именно SiO₂ и Al₂O₃.

В процессе иммобилизации шлама, часть радиоизотопов, находящихся в растворимой форме, физико-химически связывается с компонентами матрицы. Остаточные радиоизотопы, находящиеся в нерастворимой или жидкой фазах шлама, зафиксированы в общем объеме матрицы.

SIAL матрица близка материалу возникающему при геополимеризации.

В 2003 году, Госатомнадзор Словакии выдал решение для АЭС А-1, позволяющее использовать SIAL матрицу для безопасного захоронения радиоактивных отходов.

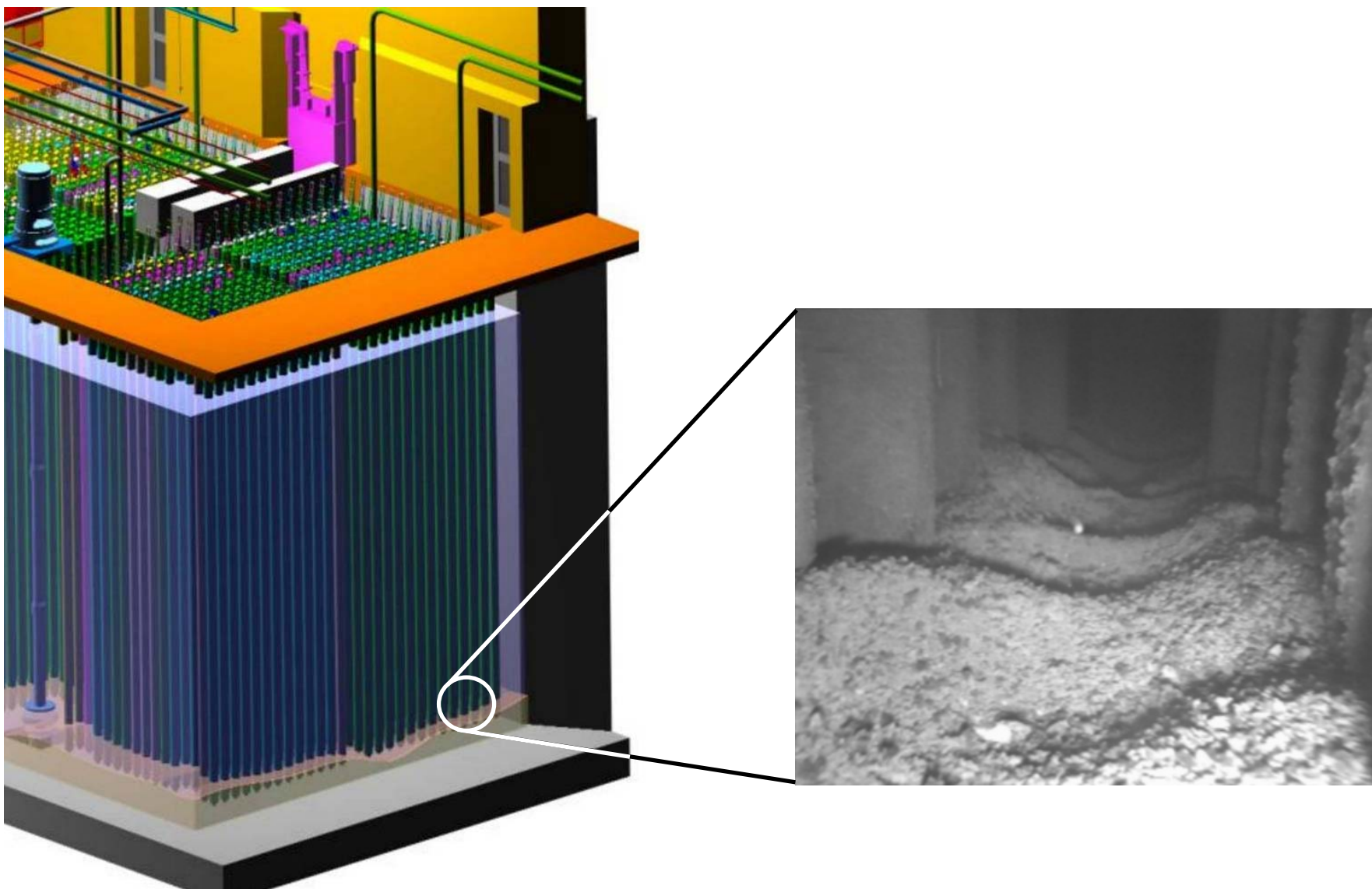
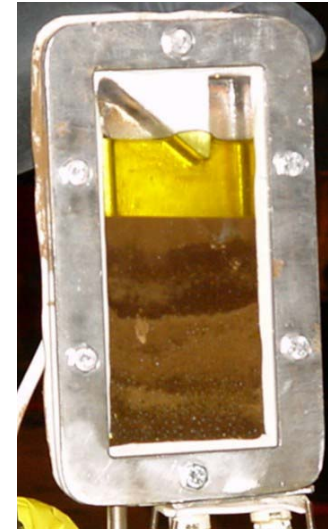


Рис. 1. Распределение и формы радиоактивного шлама в бассейне долговременного хранилища отработанного топлива



бассейна

Пробы шламов со дна

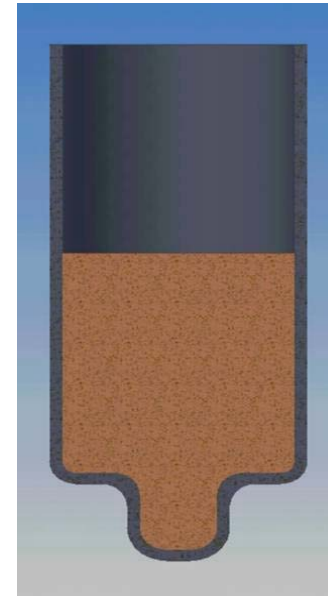


пенала



бассейна

Шлам на дне



пенала

Рис. 2. Шлам на дне бассейна долговременного хранилища и пенала отработанного топлива

4. ИММОБИЛИЗАЦИЯ ШЛАМА НЕПОСРЕДСТВЕННО В ПЕНАЛАХ ОТРАБОТАННОГО ТОПЛИВА

Активное опытное испытание иммобилизации шлама прямо в одном из пеналов отработанного топлива осуществилось в 2001 г. Результаты испытания были весьма положительные. На следующем этапе, в 2002 г., было проведено детальное измерение дозовых нагрузок от нижней части 73 пеналов и после дренажа хромпика также осмотр внутреннего пространства пеналов с применением телевизионной техники. Объем шлама был оценен с использованием специальной установки MEZA. Установка MEZA (внешний диаметр 120 мм, высота 11 500 мм) была разработана и внедрена специально для дистанционного контроля пенала (телекамера, мощность дозы) и отбора проб шлама из дна пенала. Диаграмма распределения доз на дне 72 пеналов приведены на Рис. 3.

Еще до внедрения иммобилизации шлама непосредственно в пенале, несколько кусков материала было извлечено со дна пенала при помощи установки MEZA. Некоторые результаты их анализа приведены в Табл. 1.

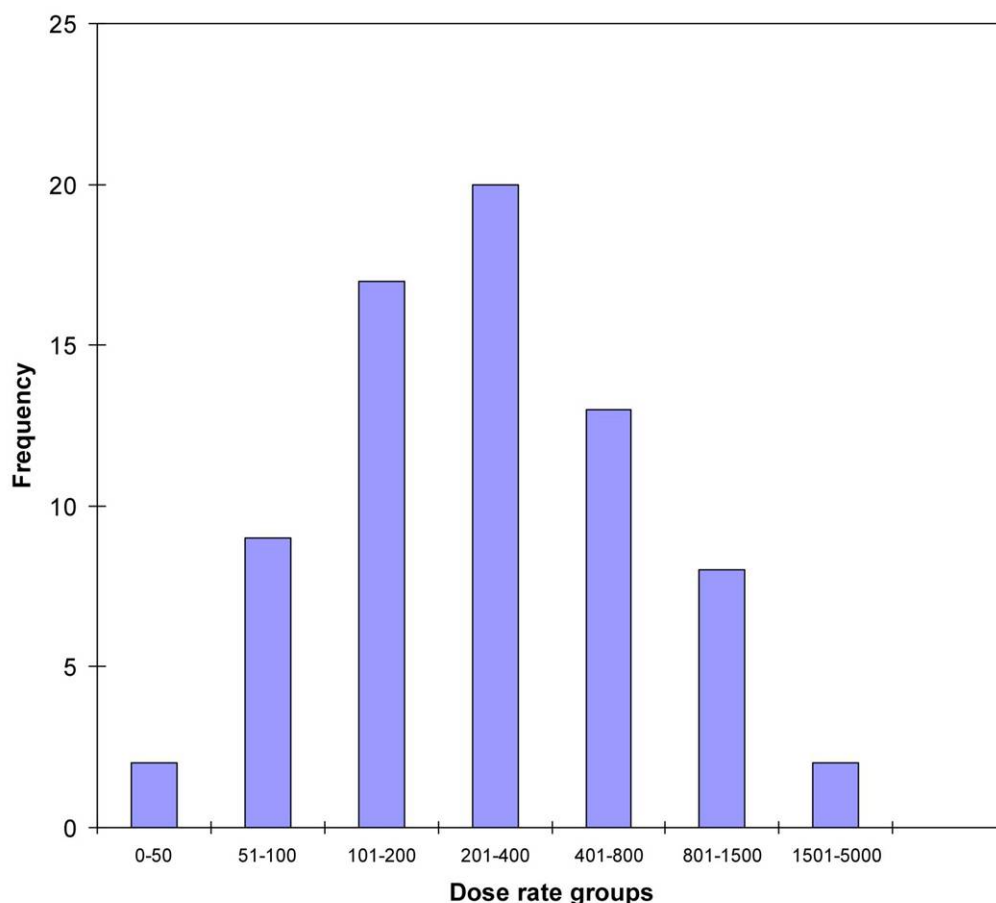


Рис. 3. Распределение дозовых нагрузок на дне пеналов

Таблица 1

Результаты радиохимического анализа шлама из дна пеналов

Образец	Количество радионуклидов					Сухое вещество в шламе [%]	Энерговыработка топлива (МВт/т)
	²⁴¹ Am [Бк/г с.в.*]	^{239, 240} Pu [Бк/г с.в.]	²³⁸ Pu [Бк/г с.в.]	⁹⁰ Sr [Бк/г с.в.]	¹³⁷ Cs [Бк/г с.в.]		
3	6,01	97,0	9,80	$2,74 \cdot 10^5$	$9,93 \cdot 10^7$	6,65	4185
6	$6,01 \cdot 10^5$	$1,95 \cdot 10^6$	$3,55 \cdot 10^5$	$6,36 \cdot 10^7$	$4,28 \cdot 10^8$	23,9	4849
17	$9,31 \cdot 10^2$	$2,61 \cdot 10^3$	$4,26 \cdot 10^2$	$4,51 \cdot 10^7$	$1,13 \cdot 10^8$	22,9	5024
25	$3,42 \cdot 10^6$	$1,85 \cdot 10^6$	$1,36 \cdot 10^5$	$4,87 \cdot 10^7$	$1,49 \cdot 10^8$	20,75	1955
27	$2,00 \cdot 10^3$	$6,25 \cdot 10^3$	$1,25 \cdot 10^3$	$7,99 \cdot 10^6$	$1,45 \cdot 10^8$	6,76	4453
36	$2,43 \cdot 10^2$	$4,35 \cdot 10^2$	43,9	$1,49 \cdot 10^5$	$9,46 \cdot 10^5$	15,47	1269
37	$7,36 \cdot 10^2$	$1,16 \cdot 10^3$	$1,11 \cdot 10^2$	$7,53 \cdot 10^5$	$6,78 \cdot 10^5$	18,1	871
38	88,9	$2,24 \cdot 10^2$	38,7	$1,84 \cdot 10^5$	$2,39 \cdot 10^5$	10,59	871
45	74,2	$2,67 \cdot 10^2$	48,6	$3,98 \cdot 10^5$	$6,32 \cdot 10^9$	7,07	4593
46	17,1	51,8	5,49	$2,11 \cdot 10^5$	$2,54 \cdot 10^6$	6,1	2544

* с. в. сухое вещество

Для лабораторных испытаний были приготовлены небольшие образцы матрицы SIAL, включающие пробы шлама со дна пеналов, что позволило подобрать оптимальный состав матрицы для иммобилизации шламов. Значение прочности на сжатие образцов достигали 9,5 – 32 МПа. Коэффициент выщелачивания L_1 достигал для этих образцов величины 9,3 – 9,5 по Cs-137, 13,4 - 14,8 по Sr-90 и 11,7 – 16,2 по трансураниевым элементам (Am-241, Pu-238, Pu-239, Pu-240).

По требованиям Госатомнадзора Словакии, допустимые величины для отвержденного отхода являются 5 МПа для прочности на сжатие и $L_1 = 6$ для коэффициента выщелачивания.

Для дистанционной гомогенизации шлама непосредственно в пенале, дозирования компонентов SIAL матрицы, перемешивания и для телевизионного контроля процесса внутри пенала была разработана и сконструирована специальная установка FIZA (внешний диаметр 130 мм, длина 11 500 мм). Установка FIZA загружается в пенал с использованием крана с лазерным контролем позиции установки.

Процесс иммобилизации шлама в 72 пеналах был осуществлен в полном согласии с техническими условиями и временным графиком. Загрузка установки FIZA в пенал и применение телекамеры для контроля процесса показаны на Рис. 4.



Рис. 4. Иммобилизация шлама на дне пенала с использованием установки FIZA

Значение прочности на сжатие контрольных проб измерялось с использованием портативного прибора неразрушающего контроля (DIGI-SCHMIDT) на поверхности каждой пробы в течении 2 месяцев после отверждения. Полученные данные для проб, отобранных из 72 пеналов, находятся в диапазоне 15,6 – 31,6 МПа.

5. ИЗВЛЕЧЕНИЕ, РАЗДЕЛЕНИЕ И ПЕРЕРАБОТКА ШЛАМОВ ИЗ БАССЕЙНА ОТРАБОТАННОГО ТОПЛИВА

На основе контроля телекамерой и отбора проб из бассейна отработанного топлива было оценено, что на дне бассейна находится слой шламов, высотой около 200 – 250 мм. Этот слой состоит из смеси органической жидкости (даутерм), неорганической нерастворимой фазы и воды.

В течение подготовительных лабораторных экспериментов было обнаружено, что эту смесь можно эффективно разделить. После разделения получается малый объем высокоактивной неорганической фазы (3 – 5 об. %, содержащей больше чем 99,9 % общей активности). Технологическое оборудование долговременного хранилища является источником высокого гамма радиационного фона (0,15 – 0,3 мГр/ч).

После лабораторных испытаний и проверке предложенного метода на полупромышленной установке, была сконструирована новая установка SUZA. Установка SUZA позволяет безопасное, эффективное дистанционно управляемое извлечение, переработку и отверждение шлама со дна бассейна. Установка SUZA состоит из легко транспортируемых модулей с дистанционным управлением и контролем. В процессе работы, шлам (эмульсия воды, неорганической фазы и органической жидкости) вынимается из дна бассейна, и обеспечивается разделение фаз с последующим отверждением высокоактивного шлама. Шлам фиксируется прямо в бочке, в которой он собирается и отделяется от воды и органической жидкости. Таким образом, транспортные пути высокоактивного отхода в процессе перекачки, разделения и переработки минимальные. Процесс контролируется 5 телекамерами, а также датчиками для измерения уровня, электропроводности и дозовой нагрузки.

Оператор установки находится у пульта оператора в отдельной комнате с существенно более низким уровнем радиационного фона.

Контактные дозовые нагрузки на бочках (объем 60 л) с отвержденным шламом поддерживаются на уровне менее 20 мГр/ч.

6. ПЛАНИРОВАНИЕ ДОЗ И ПОДГОТОВКА ПЕРСОНАЛА В СОГЛАСИИ С ALARA

Планирование дозовых нагрузок и наличие опытного и подготовленного персонала особо важно при работах, связанных со снятием из эксплуатации ядерных установок и переработке высокоактивных отходов. Как правило, только ограниченное число операторов и техников имеется в распоряжении для специальных операций с высокоактивными отходами на АЭС. Поэтому очень важно не только оптимизировать, а также минимизировать дозы для персонала.

Исходя из этого, для планирования доз при подготовке работ по принципу ALARA была разработана специальная компьютерная программа ALPLANNER. ALPLANNER является двухмерной программой для расчета и визуализации доз на рабочем месте.

На последующем этапе работ для подготовки и обучения персонала при выполнении новых работ в опасных местах и помещениях была использована трехмерная модель (ALP3D) с использованием виртуальной реальности.

Указанные программы ALARA используются тоже при планировке и подготовке работ в долговременном хранилище.

7. ВЫВОДЫ

Был разработан новый метод непосредственной переработки шламов, содержащих трансураниевые элементы, с использованием неорганической SIAL матрицы и применен при отверждении шламов из пеналов отработанного топлива. Полученный продукт характеризуется высокой прочностью на сжатие образцов и низким индексом выщелачивания.

Основным преимуществом этого метода отверждения отходов является очень быстрая и простая трансформация подвижных шламов в существенно более безопасную твердую форму, удобную для манипуляции, транспортировки, а также хранения.

Разработанная установка для контроля, отбора проб и отверждения радиоактивных отходов модулярная, передвижная, с дистанционным управлением и контролем.

Безопасное обезвреживание старых исторических отходов является безопасным при постепенном исследовании, измерении, отборе образцов и переработке.