

КОМПЛЕКСНЫЙ ПОДХОД К КОНДИЦИОНИРОВАНИЮ ТРИТИЕВЫХ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

М. Г. Токарев, Н. Т. Казаковский, В. А. Королев, А. А. Юхимчук

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров

В 50-х годах прошлого века в связи с развитием программ разработки термоядерного оружия началась активная разработка трития. Но в середине 60-х годов, после того как содержание трития в атмосфере за счет «военной» составляющей увеличилось в 35 раз [1], наземные испытания термоядерных устройств были прекращены. С этого момента основной вклад в накопление и распространение трития в атмосфере вносят выбросы предприятий ядерной энергетики.

Тритий может содержаться в структуре твердых, жидких и газообразных радиоактивных отходов, наиболее опасными из них являются жидкие радиоактивные отходы (ЖРО). Газообразный тритий в 10000 раз менее токсичен, чем НТО [2,3]. Также сильным негативным воздействием на организм обладает органически связанный тритий, который наиболее интенсивно образуется в жидкостях.

Помимо технологических потерь и запланированных контролируемых выбросов попадание трития в окружающую среду возможно и при возникновении техногенных аварий.

За последнее время произошел ряд радиационных аварий различной степени тяжести, сопровождавшиеся выбросом тритиевых ЖРО, которые повлекли за собой локальные загрязнения окружающей среды. Радиационная авария на АЭС Фукусима-1 привела к утечке большого количества радиоактивных отходов, в числе которых сотни тонн воды, содержащей тритий. Другая авария, связанная с утечкой трития произошла в 2014 году на выведенной из экс-

плуатации АЭС в городе Саласпилс, Латвия, где произошла утечка воды, содержащей тритий из стальной бочки в результате разгерметизации сварного шва. Предположительно 350–750 л радиоактивной воды попало в окружающую среду в результате утечки на АЭС Brown Ferry, Алабама, США. 13 января 2015 в прибрежных водах было зафиксировано содержание трития, превышающее международные нормы. Данные факты говорят о том, что даже несмотря на предпринимаемые в последнее время совместные усилия стран, эксплуатирующих ядерные объекты, а также непрерывный контроль со стороны МАГАТЭ, технологические процессы по сбору, накоплению, хранению и транспортировке ЖРО остаются очень опасными.

При проведении лабораторных исследований материалов, содержащих тритий и его соединения, образуются тритиевые ЖРО (водные растворы, минеральные масла, органические растворители, сцинтилляционные жидкости и т. д.), имеющие высокую степень токсичности. Российские нормы по обращению с радиоактивными отходами (РАО), приведенные к стандартам МАГАТЭ, накладывают ограничения на порядок транспортировки и переработки тритиевых РАО даже в условиях специализированных производств. Обязанность по доведению РАО до критериев приемлемости пунктов окончательной изоляции отходов, возлагается на организации, в результате деятельности которых они образовались.

Известно множество технологий по переработке тритиевых ЖРО. Например, авторы работы [4] предлагают подходы, цель

применения которых – перевод отходов в содержащую тритий воду с последующей ее переработкой на установках разделения. Также известны работы по применению способов очистки органических ЖРО от содержащегося в них трития [5, 6]. Однако, данные способы не нашли широкого применения ввиду технической сложности их реализации или недостаточной проработанности технологий, а также из-за законодательных ограничений. С точки зрения мирового опыта обращения с РАО [7] и в соответствии с требованиями действующего российского законодательства [8, 9], образующиеся ЖРО необходимо перевести в твердое состояние.

Наиболее широко используемыми в лабораторной практике материалами для отверждения водных и органических ЖРО на мировом рынке, в настоящее время являются полимерные композиции N910 Petrobond и N960 Asidbond, выпускаемые американской фирмой Nochar. Даже не смотря на высокую стоимость (~2000 \$/кг.), эти полимеры остаются востребованными в виду практического отсутствия конкурентов. Однако, помимо цены при использовании полимеров Nochar, имеется необходимость применения дополнительных изолирующих материалов для обеспечения требуемого уровня локализации радионуклида в соответствии с требованиями действующих норм и правил. Монополизация производства конкретной фирмой на территории США и отсутствие аналогов, ведет к возможности появления рисков и неопределенностей при поставках в условиях санкционного давления.

На основании обобщения имеющейся информации можно сделать вывод, что наиболее предпочтительной является такая организация деятельности, при которой исследователь, перед началом проведения каждого конкретного эксперимента определяет, к какому типу будут относиться полученные в результате эксперимента РАО и планирует методологию их утилизации в соответствии с имеющимися в его распоряжении технологиями. Такая практика пол-

ностью соответствует международной концепции о предварительном планировании и непрерывном контроле на всем жизненном цикле источников ионизирующего излучения от образования до окончательной изоляции.

Технологические подходы в области обращения с радиоактивными отходами, разработанные специалистами РФЯЦ-ВНИИЭФ легли в основу разработки концепции модульного комплекса по кондиционированию тритиевых ЖРО на месте их образования. Проведенные лабораторные исследования предполагаемых к использованию материалов и технологий показали их практическую применимость.

В РФЯЦ-ВНИИЭФ в последнее время были разработаны и успешно внедрены в лабораторную практику ряд технологий и отверждающих материалов, позволяющих проводить фракционное разделение и отверждение отходов технологических жидкостей, загрязненных тритием, образующихся в результате научно-исследовательской деятельности. Для решения проблемы утилизации двухфазных ЖРО предложено проводить фракционное разделение отходов с выделением высокоактивной твердой дисперсной фазы для отдельной переработки [10]. Отверждение нефтяных масел, а также сцинтилляционных жидкостей и органических растворителей предложено проводить с использованием отвердителя на основе композиции из твердых и микрористаллических предельных углеводов [11, 12]. Образующиеся водные и водно-солевые растворы, содержащие тритий, предполагается отверждать путем перевода в устойчивые кристаллогидраты [13]. Для отверждения высокоактивных ЖРО воды и водных растворов, предложен способ утилизации без их контакта с окружающей средой [14].

На основе имеющихся технологий был разработан проект комплекса модульного типа по обезвреживанию технологических жидкостей, загрязненных радиоактивными веществами, для оснащения имеющейся лаборатории. Ввод его в эксплуатацию позволит:

- проводить полный цикл кондиционирования ЖРО на месте образования, что решит существующую проблему накопления и хранения;

- понизить класс опасности РАО;

- перевести РАО в стабильную твердую форму, обеспечивающую приемлемые условия для дальнейшего безопасного хранения;

- исключить риски необоснованного облучения персонала и нарушения экологического благополучия населения в результате распространения радионуклидов в окружающую среду при возможных чрезвычайных ситуациях в процессе эксплуатации объекта;

- отказаться от дорогостоящих мероприятий по строительству и эксплуатации специальных накопителей и очистных сооружений для технологических стоков;

- устранить необходимость транспортировки ЖРО к месту переработки.

Основная концепция комплекса заключается в обеспечении экологической безопасности за счет того, что технологические жидкости, загрязненные радиоактивными веществами, переводятся в безопасное состояние непосредственно на месте их образования после принятия решения о нецелесообразности дальнейшего их использования.

На основании обобщения имеющейся информации [15, 16] можно сделать вывод, что актуальность контроля за обращением источников ионизирующего излучения в ходе всего жизненного цикла, вплоть до момента перевода их в разряд РАО, подтверждается мировым опытом в области эксплуатации радиационно-опасных объектов.

Комплексный подход, основанный на прогнозировании категории и объемов образующихся РАО при плановой эксплуатации объектов, а также методологии переработки, является наиболее актуальным и позволяет с минимальными издержками проводить внедрение новых перспективных технологий и материалов для поддержания общей безопасности на максимально высоком уровне.

В предлагаемой концепции комплекса, ранее отработанные технологии сгруппированы по модулям, целью каждого из которых является выполнение определенного набора операций для достижения промежуточного результата в общей технологической цепочке. Такой подход к организации деятельности позволяет провести зонирование работ по степени радиационной опасности, проводить параллельную переработку различных видов отходов, а также ускорить время принятия решения для оперативного выстраивания логистики процесса. В конечном итоге эти меры позволят сократить время обращения персонала с источниками ионизирующего излучения и снизить риски возникновения негативных последствий. Общая структура комплекса представлена на рис. 1.

Модуль контроля параметров

Для наиболее распространенных технологических жидкостей способы кондиционирования отработаны. В то же время номенклатура и допустимый диапазон характеристик выпускаемых технологических жидкостей: масел, органических растворителей, сцинтилляционных жидкостей и т. п. достаточно широки. Также, в результате появления новых знаний и научно-технического развития, вероятно появление новых способов и материалов для переработки ЖРО. В связи с этим, все технологические жидкости, применение которых предполагается в лабораторной деятельности, должны подвергаться предварительным испытаниям. С этой целью модуль оснащается лабораторным оборудованием общего назначения, на котором определяются способы обращения с каждой конкретной жидкостью при ее загрязнении радиоактивными веществами, выбирается наиболее подходящий материал отвердителя, определяется степень наполняемости конечного компаунда и методы контроля. Полученные параметры регистрируются и в дальнейшем используются при обезвреживании образующихся ЖРО известного состава.

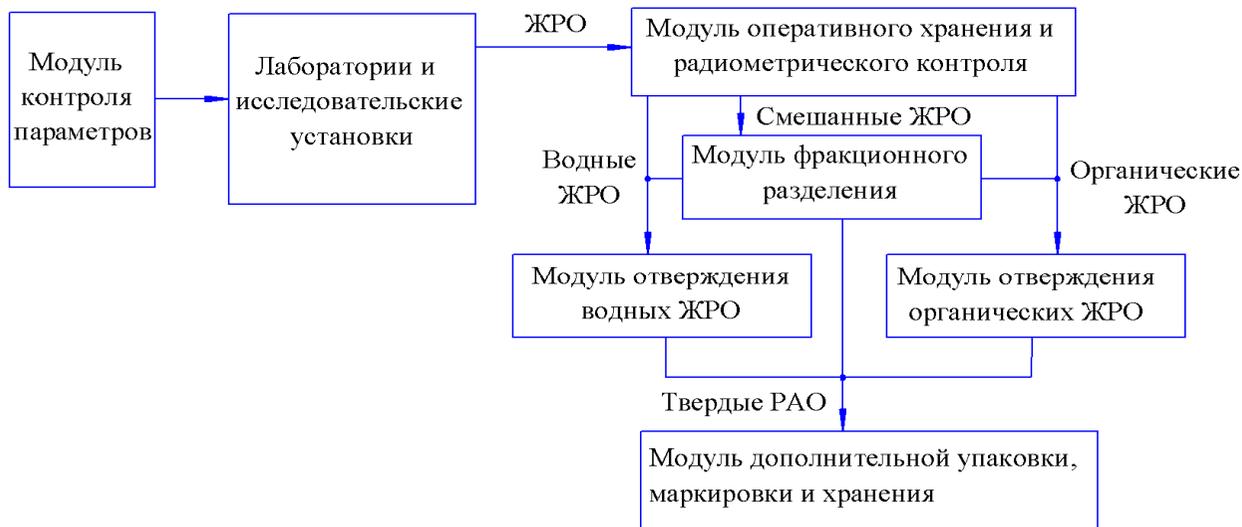


Рис. 1. Модульная схема комплекса

Модуль оперативного хранения и радиометрического контроля

Данный модуль оснащается жидкостным сцинтилляционным счетчиком и необходимым оборудованием для безопасного отбора и подготовки проб с целью дальнейшего измерения удельной активности. Технологические жидкости, в отношении которых имеется предположение об их загрязнении радионуклидами, помещаются в специально оборудованное место временного хранения РАО. Далее производят отбор проб и измерение удельной активности. При подтверждении наличия радиоактивных веществ в отобранных пробах, по результатам полученных данных принимается решение о порядке проведения дальнейших операций.

Модуль фракционного разделения

Цель – выделение твердой радиоактивной фракции. В состав модуля входит оборудование для распределения перерабатываемых жидкостей на партии, загрузки в герметичные контейнеры, центрифугирования, а так же дальнейшего фильтрования, нагрева или охлаждения и т. д. с целью разделения жидкостей и выделения твердой

фракции. Исходя из того, что в процессе переработки радиотоксичность технологических жидкостей может усиливаться (например, при попадании трития в воду), используемое оборудование обеспечивает возможность проведения работ в инертной среде, без контакта с окружающей атмосферой. При необходимости получаемые жидкости проходят повторный контроль удельной активности и направляются на отверждение.

Модуль отверждения водных ЖРО

Вода и водные растворы, загрязненные радионуклидами, могут образоваться в результате проведения научно-исследовательских работ, дезактивации оборудования и периодической профилактической уборке помещений. В том случае, когда содержание радионуклида превышает контрольный уровень загрязнения, проводят отверждение с получением твердых матричных материалов на основе кристаллогидратов.

Модуль отверждения органических ЖРО

Отходы органических технологических жидкостей, таких как нефтяные масла, сцинтилляционные жидкости, растворители и т. п., отверждают путем сплавления

со смесью предельных углеводородов. При этом отвердитель готовится заранее из расчета предполагаемого объема образования ЖРО и поэтапно используется в соответствии с пределами наполняемости конечного компаунда, которые были определены для каждого конкретного материала при входном контроле параметров.

Модуль дополнительной упаковки, маркировки и хранения

В пределах данного модуля, кондиционированные отходы, переведенные в твердое состояние и удовлетворяющие критериям приемлемости, упаковываются при необходимости

в транспортировочные контейнеры, маркируются и хранятся до передачи в специализированные организации по обращению с РАО.

Основная направленность разработанного модульного комплекса – национальная энергетическая безопасность, так как работы направлены на разработку безопасного решения проблемы обращения с ЖРО, образующихся при отработке и внедрении технологий замкнутого топливного цикла управляемого термоядерного синтеза, а также при проведении всего спектра работ с тритием и его соединениями. Параллельно при вводе данного комплекса в эксплуатацию будет решаться проблема накопления, длительного хранения и транспортировки ЖРО к месту переработки, что устраняет риски распространения радионуклидов в окружающую среду.

Концепция комплекса основывается на передовом мировом опыте в области обращения с РАО. Основой концепции является положение, что оптимальным является такая организация деятельности, при которой исследователь, перед началом проведения каждого конкретного эксперимента определяет, к какому типу будут относиться РАО, полученные в результате эксперимента и планирует методологию их утилизации в соответствии с имеющимися в его распо-

ражении технологиями. Такая практика полностью соответствует международным тенденциям в области обращения с РАО о предварительном планировании и непрерывном контроле за всем жизненным циклом источников ионизирующего излучения, от образования до окончательной изоляции.

Новизна и эффективность представленных технологических подходов и материалов подтверждены: оформленным и внедренным секретом производства (Ноу-хау), шестью патентами РФ на изобретения, полученными авторским коллективом и двумя заявками на предполагаемые изобретения. На XI-м конкурсе объектов интеллектуальной собственности на соискание премии Нижегородской области им. И. П. Кулибина, авторский коллектив получил золотую медаль за I место в номинации «Лучшее изобретение года в области химии». Результаты проводимых работ неоднократно представлялись в докладах на отраслевых, всероссийских и международных конференциях. В частности в текущем году, был представлен доклад на крупнейшей международной конференции по тритиевой науке и технике «Tritium 2019» (Пусан, Ю. Корея). Статьи по представленной тематике публиковались в изданиях различного уровня, в том числе журналах входящих в международные базы данных Web of Science и Scopus: Materials Science and Engineering и Journal of Physics издаваемого American Nuclear Society. За работу «Модульный комплекс по обезвреживанию технологических жидкостей, загрязненных радиоактивными веществами», решением Министерства энергетики РФ, авторский коллектив награжден дипломом лауреата второй премии Международного конкурса научных, научно-технических и инновационных разработок, направленных на развитие топливно-энергетической и добывающей отрасли.

Заключение

Несмотря на большое количество различных методов переработки водных и ор-

ганических ЖРО, путем деструктивных воздействий, наиболее приемлемым все же являются способы прямого отверждения с использованием универсальных отвердителей с высокой поглотительной способностью.

Переработка ЖРО большими партиями, требует применения технически сложного и высокопроизводительного оборудования, большие капитальные вложения и расходы на эксплуатацию которого прямым образом влияют на стоимость переработки. Отдельной проблемой, с точки зрения безопасности окружающей среды и постоянно ужесточающихся нормативных требований, является необходимость транспортировки ЖРО к месту переработки.

Основным направлением использования разрабатываемого комплекса является переработка небольших количеств тритиевых ЖРО различного химического и фракционного состава. В долгосрочной перспективе, отпадает необходимость проведения работ по выводу из эксплуатации, консервации и ликвидации специализированных очистных сооружений, хранилищ – отстойников и последующей рекультивации загрязненных территорий. Перевод ЖРО в стабильное, безопасное состояние, создающее препятствие для распространения радионуклида, минимизирует вероятность аварийных ситуаций и финансовых вложений в ликвидацию их последствий.

Отличительной особенностью комплекса является то, что в нем планируется объединить наиболее перспективные технологии по переработке всех технологических жидкостей, составляющих основу образующихся ЖРО и переводу их в стабильное состояние для долгосрочного безопасного хранения.

В структуре данного комплекса, ранее отработанные технологии сгруппированы по модулям, целью каждого из которых является выполнение определенного набора операций для достижения промежуточного результата в общей технологической цепочке. Такой подход к организации деятельно-

сти позволяет провести зонирование работ по степени радиационной опасности, проводить параллельную переработку различных видов отходов, а также ускорить время принятия решения для оперативного выстраивания логистики процесса. В конечном итоге эти меры позволят сократить время обращения персонала с источниками ионизирующего излучения и снизить риски возникновения негативных последствий. Модульная схема комплекса позволит, при практическом использовании результатов проекта, в каждом конкретном случае формировать особый набор модулей, с учетом конкретной специфики образования тех или иных типов отходов, позволяющий с минимальными затратами в полной мере выполнять поставленные задачи.

На момент выхода производительности комплекса на проектный уровень, планируется переработка до 200 литров тритиевых ЖРО различного типа в год, за счет параллельного выполнения работ на нескольких технологических модулях. При этом окончательные параметры будут определяться количественными показателями разрешенного содержания радионуклида в рабочих помещениях, номенклатурой образующихся ЖРО, разрешенными объемами выбросов и другими регламентирующими факторами с учетом действующего законодательства. С учетом изменений потребностей, производительность комплекса может быть многократно увеличена.

Список литературы

1. Кесслер Г. Ядерная энергетика. М., 1986.
2. Романов Г. Н. Поведение в окружающей среде и биологическое действие трития, Проблемы радиоэкологии. М., ВНИИ-ТИ, 1983. Т. 4. С. 6–31.
3. Демин С. Н., Телушкина Е. Л. Радиационно-гигиеническая оценка загрязнения внешней среды тритием и дозовые нагрузки на население в районе радиохимического

предприятия, Бюллетень радиационной медицины, 1987. № 1. С. 23–28.

4. J. Braet, A. Bruggeman, Oxidation of tritiated organic liquid waste, Preprint of Paper to be submitted for publication in Proceedings of the 7th Tritium Science and Technology Conference, Baden Baden, Germany 12–17 September 2004.

5. Магометбеков Э. П., Шаплыгин В. А., Баранова О. А. и др. Очистка вакуумного масла от трития методом изотопного обмена. Атомная энергия, 2005. Т. 98. Вып. 2. С. 129–133.

6. Сазонов А. Б., Магометбеков Э. П., Веретенникова Г. В. и др. Способ извлечения трития из отходов тритийсодержащих вакуумных масел, Атомная энергия, 2005. Т. 98. Вып. 2. С. 134–143.

7. Management of waste containing tritium and carbon-14, International Atomic Energy Agency, Technical reports series, № 421, Vienna, 2004.

8. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии, «Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности», НП-019-15 от 10.08.2015 г.

9. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии, «Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения», НП-093-14, утверждены приказом Федеральной службы

по экологическому, технологическому и атомному надзору № 572 от 15.12.2014 г.

10. Пат. RU2637811, G21F9/16. Способ переработки жидких радиоактивных отходов / Н. Т. Казаковский, В. А. Королев // Бюл. 2017. № 34.

11. Пат. RU 2589040, G21F9/16. Способ отверждения тритийсодержащего нефтяного масла / Н. Т. Казаковский, И. Н. Иосилевич, В. А. Королев // Бюл. 2016. № 19.

12. Патент RU2654542, G21F9/16. Способ отверждения органических жидких радиоактивных отходов / Н. Т. Казаковский, В. А. Королев // Бюл. 2018. № 15.

13. Пат. RU2627690, G21F9/16. Способ кондиционирования воды, содержащей тритий / В. Н. Голубева, Н. Т. Казаковский, В. А. Королев, С. Е. Леваков, А. В. Стеньгач // Бюл. 2017. № 22.

14. Патент RU2623999, G21F9/16. Способ кондиционирования воды или водного раствора, содержащих тритий / Н. Т. Казаковский, В. А. Королев // Бюл. 2017. № 19.

15. Основополагающие принципы безопасности, серия норм МАГАТЭ по безопасности, № SF-1, Международное агентство по атомной энергии, Вена, 2007.

16. Правила безопасной перевозки радиоактивных материалов, серия норм МАГАТЭ по безопасности, № SSR-6, Международное агентство по атомной энергии, Вена, 2012.