УДК 542.61:621.039

РЕЗУЛЬТАТЫ ОПЫТНЫХ ОПЕРАЦИЙ ПО ВРЕМЕННОМУ ОТКЛЮЧЕНИЮ СИСТЕМЫ ОХЛАЖДЕНИЯ В ЕМКОСТЯХ-ХРАНИЛИЩАХ РАДИОАКТИВНЫХ СУСПЕНЗИЙ

Н. П. Старовойтов, В. А. Казаков, Р.Э. Абдулвагидов, В. А. Дудкин, П. В. Козлов, А. А. Мирошниченко, С.В. Кустов

ФГУП «ПО «Маяк», г. Озёрск, Россия

В 2012 г. были проведены опытные операции по временному отключению системы охлаждения на четырех охлаждаемых емкостях-хранилищах радиоактивных суспензий с целью приведения их в более стабильное и безопасное состояние. В данной работе показано, что отключение охлаждения емкостей, приводящее к повышению температуры осадков и перераспределению по всему объему (распульповка), позволяет увеличить скорость выхода (растворения) соединений металлов и их радионуклидов из осадка. Как следствие этих действий – снижение высоты осадка до стабильных значений. Для емкостей-хранилищ № 9 и № 12 высота осадка составила 2,9 м. Для емкостей-хранилищ № 10 и № 11 составила 2,0 м и 2,2 м соответственно. Растворение осадков прошло в большей степени за счет их разогрева. Данные 2020 г. показали, что высота осадков остается стабильной либо уменьшается. Однако для оценки безопасности необходимо учитывать инерционность системы при возобновлении охлаждения. На основании проведенной работы сделан вывод, что емкости-хранилища радиоактивных суспензий находятся во взрывопожаробезопасном состоянии. В то же время следует отметить, что дальнейшее проведение процесса выщелачивания путем введения дополнительных объемов щелочи в емкости-хранилища крайне нежелательно и может рассматриваться только в крайних случаях.

Ключевые слова: радиоактивные материалы, хранение, суспензия, осадок, охлаждение, разогрев

1. Введение

Особую проблему на ФГУП «ПО «Маяк» представляют емкости-хранилища высокоактивных пульп, образовавшихся в результате применения осадительных технологий при переработке облученного топлива ядерных реакторов, которые активно функционировали в 1968–1986 гг. Несмотря на то, что в емкостях-хранилищах имеются системы контроля уровня, давления, температуры и газовыделения, дальнейшее хранение ВАО в емкостях-хранилищах неприемлемо [1].

Емкости-хранилища представляют собой самостоятельные изолированные друг от друга бетонные отсеки размером 9,5×19,5 м и высотой 7 м, облицованные нержавеющей сталью толщиной 3 мм. В комплексе находится 14 емкостей, шесть из них дополнительно оборудованы системами охлаждения: каждая имеет четыре змеевика для охлаждения суспензий, установленных вертикально. Схема охлаждаемых емкостей-хранилищ представлена на рис.1.

При длительном хранении радиоактивных суспензий, в которых нерастворимые соединения металлов и их радионуклидов равномерно распределены в жидкой дисперсной среде, происходит уплотнение. Осветленные маточные растворы (декантаты) или растворы осадительной технологии, из которых извлекли целевой компонент, в процессе хранения возвращают на

переработку, а освободившийся объем вновь заполняют высокоактивными суспензиями. Процессы приема, отстаивания и возврата декантатов в каждой емкости-хранилище повторялись многократно до накопления регламентированной активности бета-излучающих радионуклидов или слоя осадка определенной высоты.

Особенностью хранения суспензий является расслаивание содержимого емкостей с постепенным накоплением и уплотнением осадка на дне, что изменяет теплофизический режим их эксплуатации. Основное количество активности локализуют на себе осадки. Мощность экспозиционной дозы и объемная активность бета-излучающих радионуклидов в осветленных растворах в емкостях-хранилищах значительно (на 1–2 порядка) меньше, чем в уплотненных осадках.

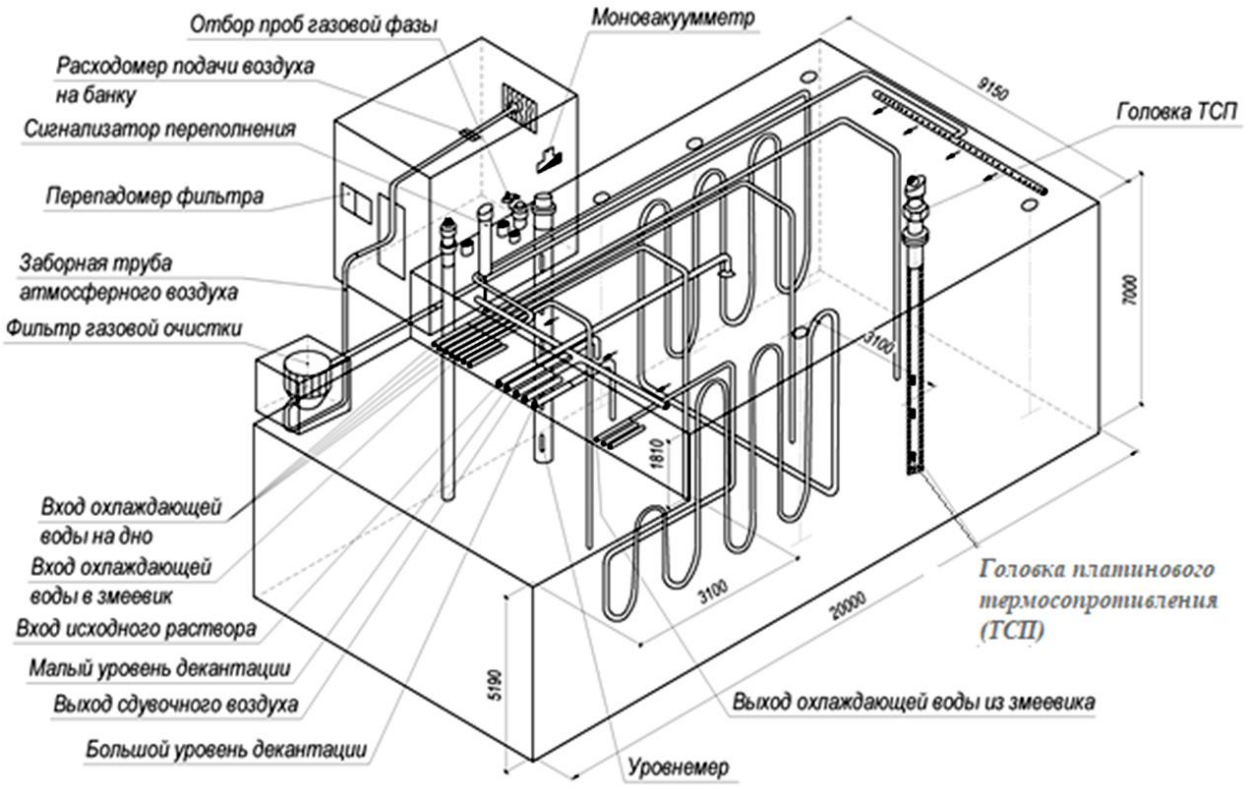

Рисунок 1. Схема охлаждаемых емкостей-хранилищ

В результате уплотнения осадков при длительном хранении одновременно с увеличением объемной активности снижается их подвижность, что приводит к значительному увеличению донных температур вследствие замедления конвективных потоков. Увеличение температуры в донных слоях уплотненного осадка сверх регламентного значения имело место в 1986 г. в неохлаждаемых емкостях.

Для улучшения условий теплопередачи и стабилизации температурного режима хранения суспензий по рекомендациям специалистов центральной заводской лаборатории (далее – ЦЗЛ) в емкостях-хранилищах проведена обработка осадка концентрированным раствором гидроксида натрия. После подачи гидроксида натрия на дно, под слой осадка, в зоны с повышенными температурами, произошло разрыхление плотных слоев суспензии вследствие растворения одного из основных компонентов осадка – амфотерного гидроксида алюминия, а также частичное разложение ферроцианидного комплекса и выход радионуклида цезия-137 в раствор [2].

Щелочная обработка суспензий привела к снижению температуры во всех зонах контроля, в т. ч. и на дне емкостей-хранилищ, уменьшилась также высота слоя плотного осадка.

Основу осадков составляют гидроксиды железа, никеля, хрома, сульфиды железа и никеля, ферроцианиды никеля-цезия и титана-цезия. Жидкая фаза представляет собой высокоминерализованные растворы, химический состав которых обусловлен преимущественно нитратом натрия, гидроксидом натрия, алюминатом натрия и нитритом натрия.

Радионуклидный состав отходов представлен преимущественно продуктами деления. Активность растворной части на 99,9 % определяется радионуклидом цезий-137. Активность осадка обусловлена радионуклидами цезия, стронция, плутония и америция [3].

2. Материалы и методы

С мая 2006 по 2010 г. охлаждаемые емкости-хранилища № 9–12 были подвергнуты распульповке путем обработки плотных осадков раствором гидроксида натрия с целью их перевода в более безопасное подвижное состояние. Исходя из анализа результатов замеров высоты плотного слоя осадка, полученных в октябре 2010 г., был сделан вывод, что процессы распульповки в охлаждаемых емкостях-хранилищах прошли не полностью из-за недостаточной температуры, при которой в щелочной среде происходит процесс растворения осадка. Поэтому считалось, что отключение охлаждения емкостей, приводящее к некоторому безопасному повышению температуры осадков, должно быть полезным для увеличения скорости их растворения.

Несмотря на сходство технологических параметров емкостей-хранилищ, распределение активности по высоте емкостей, кинетика растворения осадков и распределение температуры по донным зонам имеют различный характер. Указанная особенность связана с заполнением емкостей разнородными по своему составу и активности суспензиями.

Следовательно, длительность выдержки охлаждаемых емкостей-хранилищ при отключенных системах охлаждения будет зависеть от скорости разогрева содержимого каждой отдельной емкости.

В соответствии с рекомендацией ЦЗЛ по определению условий безопасной эксплуатации емкостей-хранилищ при временном отключении их систем охлаждения в 2012 г. были проведены опытные операции по временному отключению системы охлаждения на емкостях-хранилищах № 9–12.

Экспериментальная работа была необходима для выяснения значений скорости разогрева содержимого каждой отдельной охлаждаемой емкости-хранилища при отключенной системе охлаждения для оптимизации режима охлаждения.

Опытные операции по отключению системы охлаждения емкостей проводились по следующей схеме:

1. Перекрывалась подача воды на охлаждение емкостей-хранилищ № 9–12.

2. При приближении к значению температуры 95 °С в любой из зон возобновляли подачу воды в систему охлаждения данной емкости заблаговременно, с учетом инерционности системы, и после снижения температуры до 80 °С вновь отключали охлаждение.

3. В конце года возобновили подачу воды в систему охлаждения емкостей-хранилищ и продолжили их эксплуатацию согласно требованиям технологического регламента.

4. В каждой из исследуемых емкостей-хранилищ провели измерения высоты слоя плотного осадка грузиком массой 40 г после включения охлаждения.

3. Результаты работы и их обсуждение

Охлаждение емкостей-хранилищ № 9–12 отключили 12 января 2012 г. Эта дата была принята за начало эксперимента. В течение эксперимента подача воды в систему охлаждения возобновлялась на емкостях следующим образом. В емкости № 9 при достижении температуры 88 °С в 8-й зоне на отметке 0,15 м от дна 6 ноября было восстановлено охлаждение с расходом 12 м^3/ч и отключено 26 ноября после установления максимальной температуры 76,5 °С. В емкости № 10 при достижении температуры 87,9 °С в 5-й зоне на отметке 0,15 м от дна и температуры 87,8 °С в 1-й зоне на отметке 1,5 м от дна 6 июля было восстановлено охлаждение с расходом 13 м^3/ч и отключено 7 августа после установления максимальной температуры 77 °С. Затем, 11 октября, была снова восстановлена подача воды в систему охлаждения при достижении температуры 89 °С в 6-й зоне на отметке 0,15 м от дна и отключена 26 ноября после установления максимальной температуры 79 °С. В емкости № 11 при достижении температуры 87,3 °С в 1-й зоне на отметке 0,15 м от дна 14 августа и температуры 87,9 °С в 8-й зоне на отметке 1,5 м от дна было восстановлено охлаждение с расходом 12 м^3/ч и отключено 19 сентября после установления максимальной температуры 78 °С. В емкости № 12 при достижении температуры 87,8 °С во 2-й зоне на отметке 1,5 м от дна 14 августа было восстановлено охлаждение с расходом 12 м^3/ч и отключено 11 сентября после установления максимальной температуры 79 °С.

Таким образом, время выдержки емкостей без охлаждения в течение 2012 г. составило для емкости № 9 – 333 суток, для № 10 – 287 суток, для № 11 – 329 суток, для № 12 – 337 суток.

Схема расположения термопар на емкостях по зонам приведена на рис. 2.

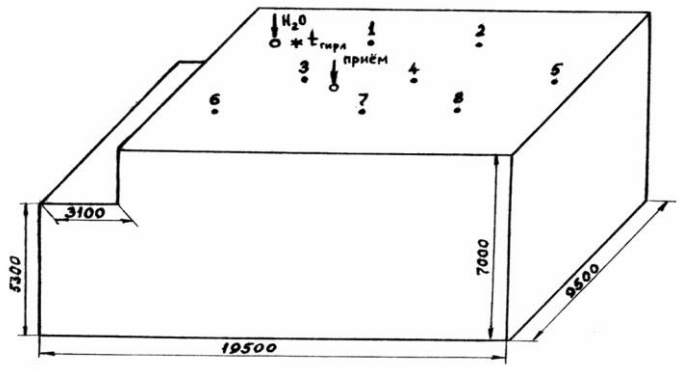

Рисунок 2. Схема расположения термопар на емкостях по зонам 1–8

Во время эксперимента отключение охлаждения не влияло на разрежение в емкостях, которое составляло от 0,9 до 1,2 кПа и косвенно свидетельствовало об отсутствии бурного газовыделения из-за возможного локального кипения в осадке.

Динамика роста температуры определялась по показаниям термометров во всех зонах с периодичностью пять дней при отключенной системе охлаждения.

На рис. 3–6 приведены полученные графики зависимости изменения температур осадков в наиболее горячих зонах на отметках 0,15 и 1,5 м от дна для емкостей № 9–12 после начала эксперимента в зависимости от времени.

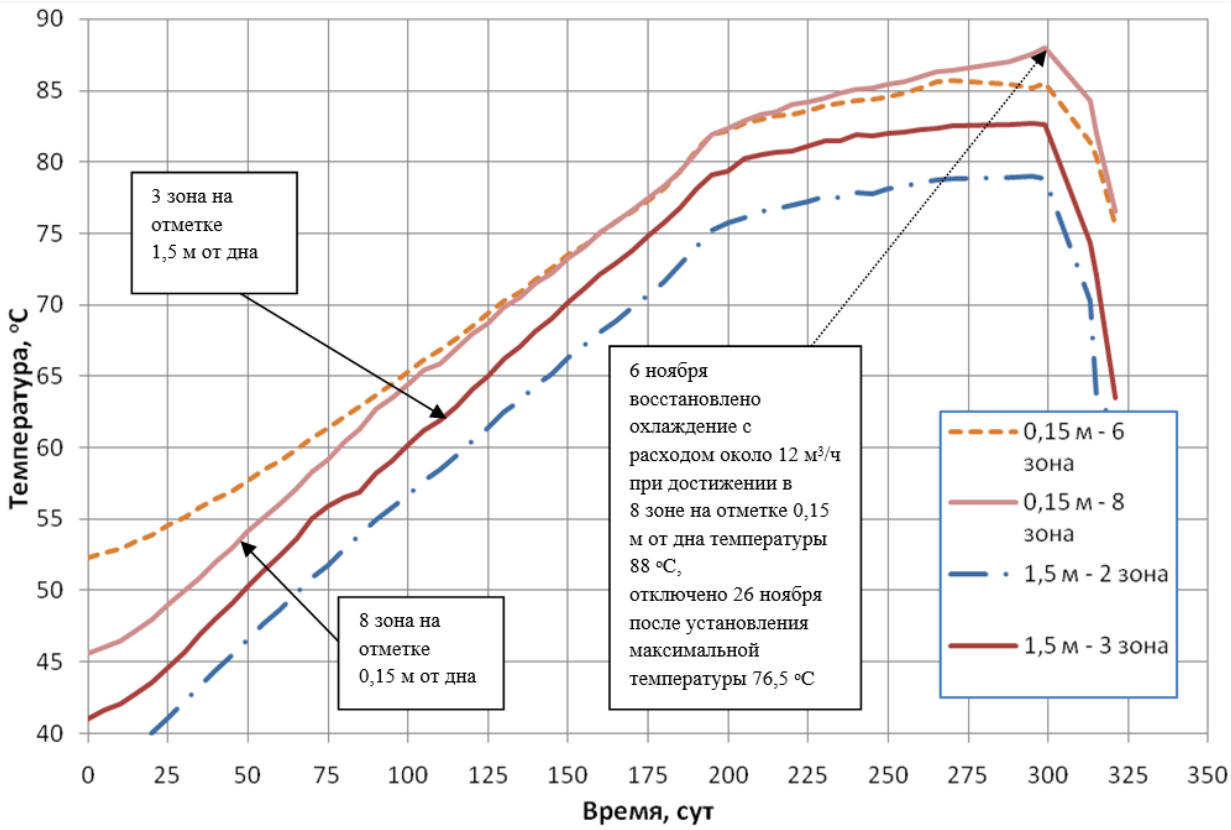

Рисунок 3. График зависимости изменения температур осадков в самых горячих зонах в емкости № 9 от времени в течение эксперимента

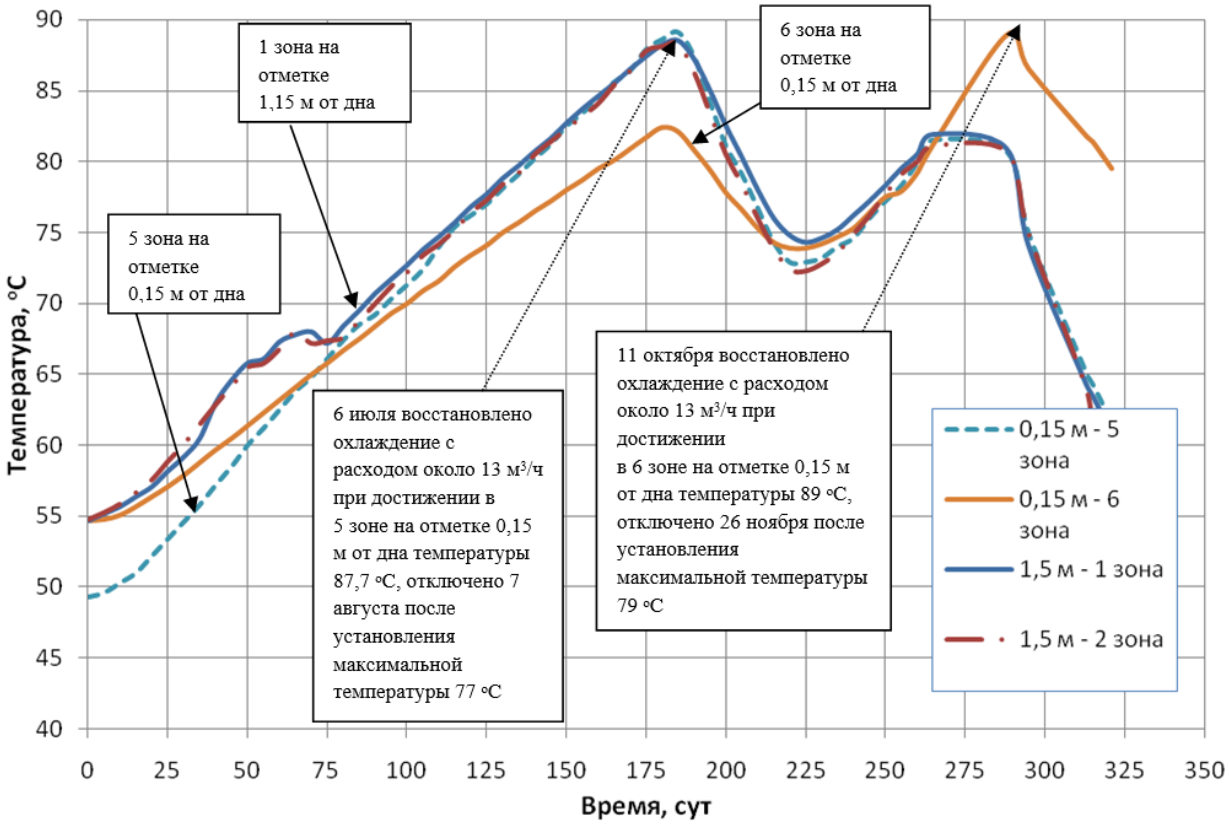

Рисунок 4. График зависимости изменения температур осадков в самых горячих зонах в емкости № 10 от времени в течение эксперимента

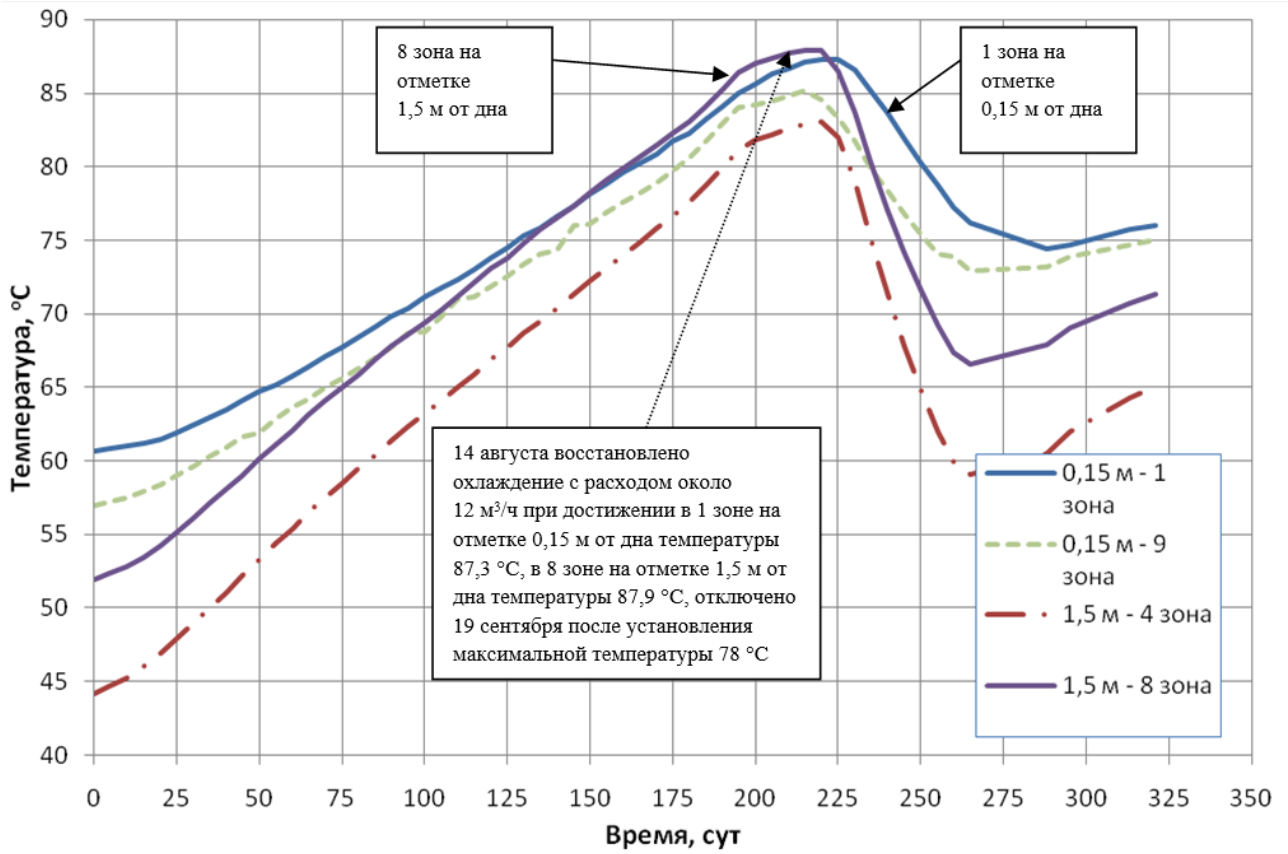

Рисунок 5. График зависимости изменения температур осадков в самых горячих зонах в емкости № 11 от времени в течение эксперимента

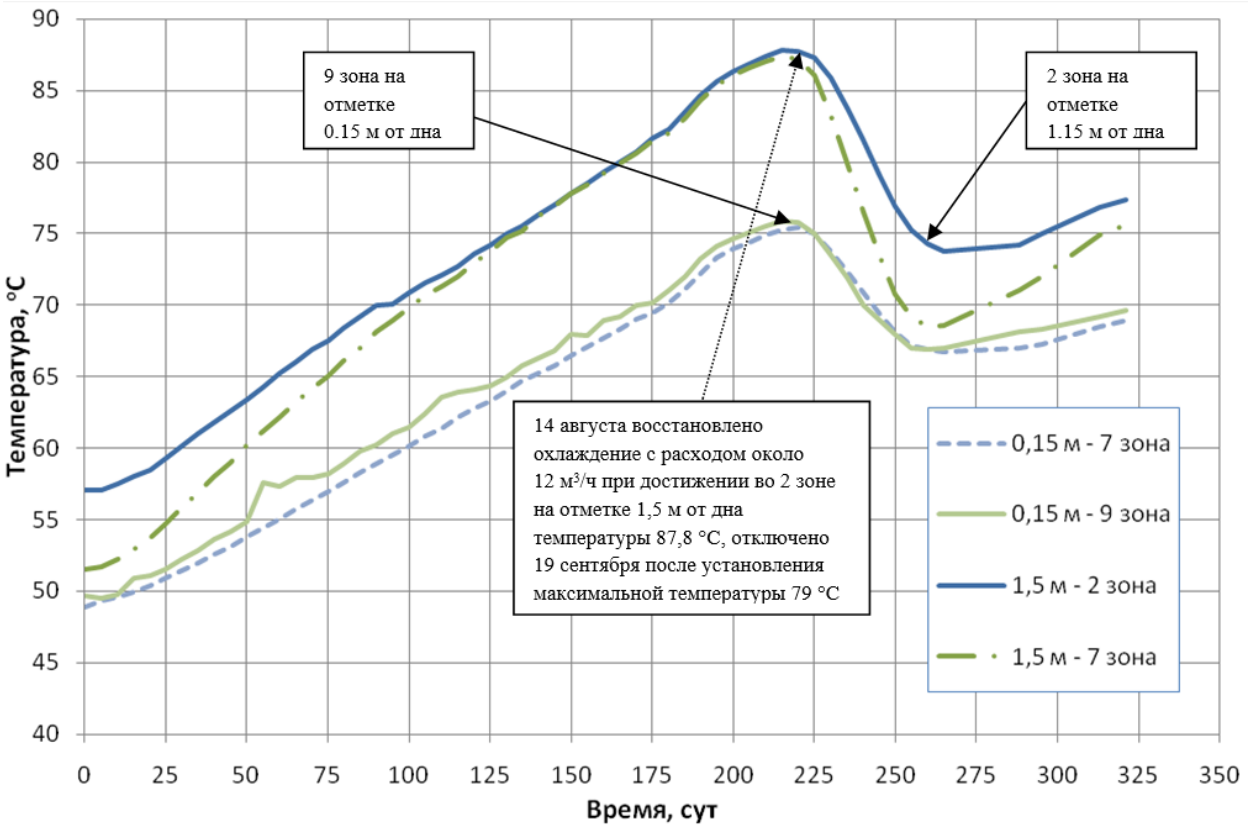

Рисунок 6. График зависимости изменения температур осадков в самых горячих зонах в емкости № 12 от времени в течение эксперимента

Как следует из рис. 3–6, постепенный выход на стационарное состояние аналитически полученной температурной кривой при приближении к 95 °С наблюдается только для емкости № 9. На остальных рассматриваемых емкостях после снятия охлаждения осадки могли бы разогреваться дальше и превысить разрешенную максимальную температуру 95 °С.

Для оценки безопасности процесса необходимо проанализировать инерционность системы при возобновлении охлаждения. Рассмотрим, как изменялась температура на каждой емкости в самой горячей зоне при включении охлаждения. На рис. 7 представлена диаграмма изменения температуры в самых горячих зонах емкостей-хранилищ № 9–12 в течение 14 суток после включения охлаждения.

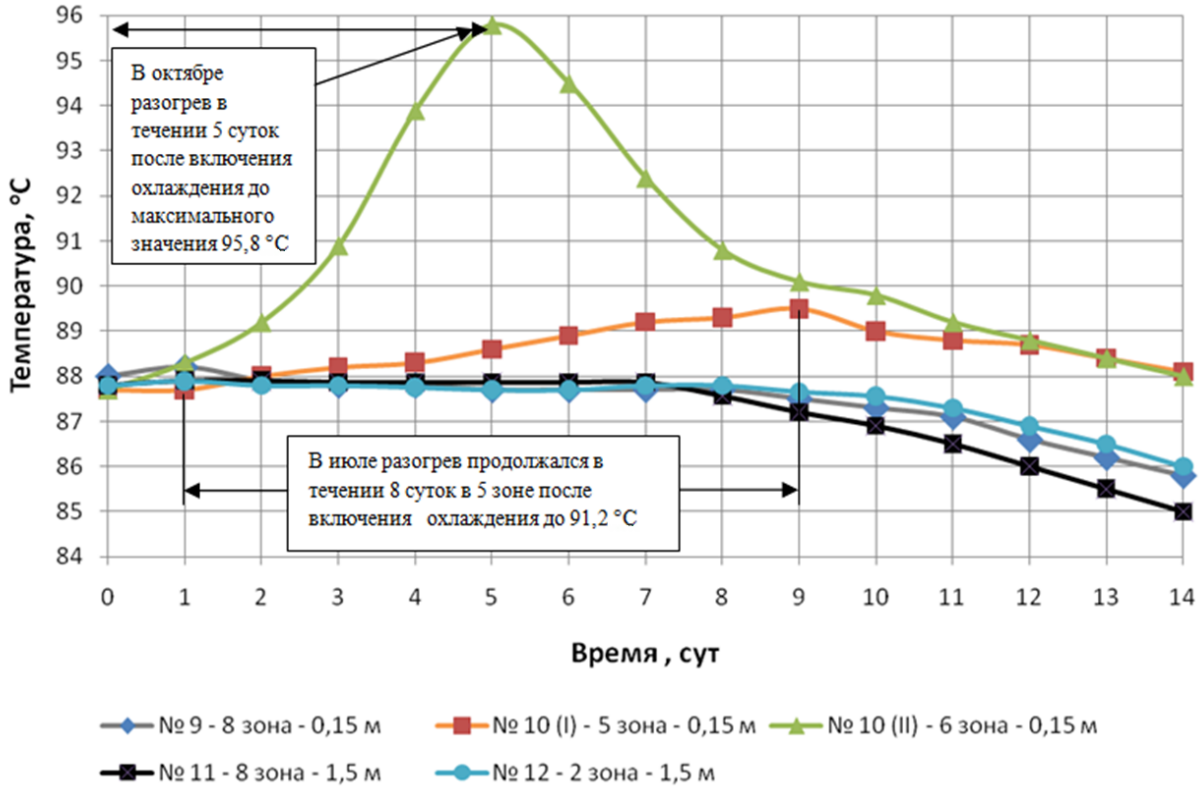

Рисунок 7. Диаграмма изменения температуры в самых горячих зонах емкостей-хранилищ № 9–12 в течение 14 суток после включения охлаждения

Как следует из рис. 7, на емкостях № 9, 11, 12 наблюдался стационарный температурный период в течение приблизительно 8 суток, что указывает на инерционность системы. Впоследствии наблюдалось устойчивое снижение температуры приблизительно на 0,3 / 0,5 / 0,4 °С/сут соответственно. На емкости № 10, наоборот, наблюдалось повышение температуры в первые несколько суток после включения охлаждения. Это было отмечено как в июльском, так и в октябрьском включениях системы охлаждения. В первом случае (июль) разогрев в 5-й зоне продолжался в течение 8 суток, после включения охлаждения до 91,2 °С. На 9-е сутки началось устойчивое падение температуры со средней скоростью 0,3 °С/сут. Во втором случае (октябрь) разогрев продолжался в течение 4 суток после включения охлаждения до максимального значения 95,8 °С. Затем отмечена устойчивая тенденция к снижению температуры.

Необходимо обратить внимание на существование температурных скачков в емкости № 10 после включения охлаждения. Повышение температуры осадка

после включения охлаждения в течение нескольких суток предположительно объясняется влиянием разогрева соседних емкостей (№ 9 и № 11) на режим теплосъема, а также физико-химическими свойствами осадка.

Следующим пунктом работы после включения охлаждения в емкостях-хранилищах стали замеры толщины плотного осадка грузиком (40 г). Результаты представлены в табл. 1.

Таблица 1. Изменение высоты осадка в емкостях-хранилищах № 9–12 за 2012 г.

Емкость-хранилище, №	Начальный уровень осадка, мм (2010 г.)	Измерение уровня осадка после включения охлаждения		Изменение высоты осадка за рассматриваемый период, мм
		Дата измерения высоты плотного осадка	Высота плотного осадка, мм	
9	3 140	06.11.2012	2 960	180
10	3 180	25.10.2012	2 920	260
11	3 200	14.08.2012	2 810	390
12	2 970	14.08.2012	2 840	130

В соответствии с данными табл. 1 периодическое отключение системы охлаждения в емкостях-хранилищах № 9–12 позволило снизить высоту плотного осадка во всех емкостях на 180, 260, 390 и 130 мм соответственно. В соответствии данными табл. 2 на протяжении нескольких лет высота осадка в емкостях № 9 и 12 оставалась стабильной, а в емкостях № 10 и 11 – снижалась [3].

Таблица 2. Измерение высоты осадка в емкостях-хранилищах № 9–12 с 2010 по 2020 г.

Емкость-хранилище, №	Высота осадка, м		
	2010 г.	2014 г.	2020 г.
9	3,14	2,96	2,90
10	3,18	2,92	2,00
11	3,20	2,81	2,20
12	2,97	2,84	2,90

В соответствии с имеющимися данными наблюдения на протяжении 2021 года температуры осадка в емкостях № 9 (≤ 64,5 °С), № 11 (≤ 76,6 °С), № 12 (≤ 63,0 °С) оставались в регламентных пределах при отключенной системе охлаждения. В емкости № 10 в августе была достигнута температура 83,5 °С, после чего было временно включено охлаждение [3].

4. Заключение

Из анализа проведенной работы по временному отключению систем охлаждения в емкостях-хранилищах № 9–12 и состояния емкостей-хранилищ следует, что по сравнению с 2011 г. растворение осадков прошло в большей степени за счет их разогрева. Данные 2020 г. показали, что высота осадков остается стабильной либо уменьшается.

Однако необходимо обратить внимание на существование температурных скачков в емкости № 10 после включения охлаждения и ограничить температуру разогрева осадков для емкостей-хранилищ с учетом инерционности разогрева

достижением температуры – 85 °С. Увеличение донных температур до данного значения не ухудшает условий взрывопожаробезопасности.

В то же время следует отметить, что дальнейшее проведение процесса выщелачивания путем введения дополнительных объемов щелочи в емкости-хранилища крайне нежелательно и может рассматриваться только в крайних случаях. Объясняется это увеличением солесодержания отходов в результате данной процедуры, что в дальнейшем при извлечении отходов из емкостей-хранилищ повлечет пропорциональное увеличение длительности их переработки (при равной производительности установок), количества отвержденных компаундов 1–3 классов (согласно классификации [4]), а соответственно, и отчислений Национальному оператору по обращению с РАО.

5. Список литературы

1. Подходы к переработке высокоактивных пульп, накопленных на ФГУП "ПО "Маяк" / М. В. Логунов, В. И. Карпов, Н. Е. Дружинина, И. Г. Тананаев // Вопросы радиационной безопасности. 2011. № 1(61). С. 15-28.
2. Логунов, М. В. Стабилизация теплофизического состояния и обследование некоторых ёмкостей-хранилищ высокоактивных пульп на ФГУП "ПО "Маяк" / М. В. Логунов, В. И. Карпов, И. Г. Тананаев // Вопросы радиационной безопасности. 2011. № 4(64). С. 18-27.
3. Основные подходы, опыт и проблемы переработки накопленных в емкостях жидких радиоактивных отходов сложного химического состава / П. В. Козлов, М. Б. Ремизов, Р. А. Макаровский [и др.] // Радиоактивные отходы. 2018. № 4(5). С. 55-66.
4. Постановление Правительства Российской Федерации от 19 октября 2012 года № 1069 «О критериях отнесения твердых, жидких и газообразных отходов к радиоактивным отходам, критериях отнесения радиоактивных отходов к особым радиоактивным отходам и к удаляемым радиоактивным отходам и критериях классификации удаляемых радиоактивных отходов».

Сведения об авторах:

Старовойтов Николай Петрович, Федеральное государственное унитарное предприятие «Производственное объединение «Маяк», г. Озёрск, Россия, начальник группы взрывопожаробезопасности ЦЗЛ, starov-nik@yandex.ru, старший преподаватель ОТИ НИЯУ МИФИ.

Козлов Павел Васильевич, Федеральное государственное унитарное предприятие «Производственное объединение «Маяк», г. Озёрск, Россия, кандидат технических наук, начальник исследовательской лаборатории ЦЗЛ по обращению и кондиционированию радиоактивных отходов, доцент ОТИ НИЯУ МИФИ.

RESULTS OF EXPERIMENTAL OPERATIONS ON TEMPORARY DISCONNECTING THE COOLING SYSTEM IN RADIOACTIVE SUSPENSION STORAGE CONTAINERS

N. P. Starovoitov, V. A. Kazakov, R. E. Abdulvagidov, V. A. Dudkin,
P. V. Kozlov, A. A. Miroshnichenko, S. V. Kustov

Federal State Unitary Enterprise «Production Association «Mayak»

Ozersk, Russia

In 2012, experimental operations were carried out to temporarily disable the cooling system at four refrigerated storage tanks for radioactive suspensions in order to bring them into a more stable and safe state. This paper shows that turning off the cooling of the tanks, which leads to an increase in the temperature of sediments, makes it possible to increase the rate of release (dissolution) of metal compounds and their radionuclides from the sediment and redistribution throughout the volume (pulping). As a consequence of these actions - a decrease in the height of the sediment to stable values. For storage tanks No. 9 and No. 12, the draft height was 2.9 m. For storage tanks No. 10 and No. 11 it was 2.0 m and 2.2 m, respectively. The dissolution of sediments took place to a greater extent due to their heating. The 2020 data showed that the height of precipitation remains stable or decreases. However, in order to assess safety, it is necessary to take into account the inertia of the system when cooling is resumed. Based on the work carried out, it was concluded that the storage tanks for radioactive suspensions are in an explosion- and fire-proof state. At the same time, it should be noted that further carrying out the leaching process by introducing additional volumes of alkali into storage tanks is highly undesirable and can only be considered in extreme cases.

Key words: radioactive materials, storage, suspension, sediment, cooling, heating

References

1. Logunov M.V., Karpov V.I., Druzhinina N.E. Approaches to high-level sludge reprocessing accumulated at Mayak PA. Voprosy radiacionnoj bezopasnosti. 2011. № 1. P. 15-28. (In Russian).
1. Logunov M.V., Karpov V.I. Stabilization of thermophysical state and inspection of several storage tanks for high-level pulps at FSUE Mayak PA. Voprosy radiacionnoj bezopasnosti. 2011. № 4. P. 18-27. (In Russian).
2. Kozlov P.V., Remizov M.B., Makarovskij R.A. et al. Basic approaches, experience and problems related to reprocessing of liquid radioactive waste of complex chemical composition accumulated in storage tanks. Radioaktivnye othody. 2018. № 4(5). P. 55-66. (In Russian).
3. Postanovlenie Pravitel'stva Rossijskoj Federacii ot 19 oktyabrya 2012 goda № 1069 «O kriteriyah otneseniya tverdyh, zhidkih i gazoobraznyh othodov k radioaktivnym othodam, kriteriyah otneseniya radioaktivnyh othodov k osobym radioaktivnym othodam i k udalyaemym radioaktivnym othodam i kriteriyah klassifikacii udalyaemyh radioaktivnyh othodov». (In Russian).