

РАЗРАБОТКА ТЕХНОЛОГИИ И ПЕРЕРАБОТКА КУБОВЫХ ОСТАТКОВ НА КОЛЬСКОЙ АЭС

PROCESS DEVELOPMENT AND VAT RESIDUE TREATMENT AT THE KOLA NPP

В.В. ОМЕЛЬЧУК,
М.Р. СТАХИВ (Кольская АЭС),
А.Е. САВКИН, к.т.н.,
Д.А. ФЕДОРОВ (ГУП МосНПО «Радон»),
В.И. КОРНЕВ (ЗАО «Альянс-Гамма»)

V.V. OMELCHUK,
M.P. STAKHIV (Kola NPP),
A.E. SAVKIN, Candidate of Technical Science,
D.A. FEDOROV (SUE SIA Radon),
V.I. KORNEV (Alliance-Gamma Ltd.)

■ В ходе эксплуатации атомных реакторов на АЭС России и Украины накоплен большой объем кубовых остатков. Емкости для их хранения практически на всех станциях заполнены на 70% и более. Методы отверждения таких отходов, используемые на некоторых АЭС, не могут найти широкого применения из-за отсутствия хранилищ для конечного продукта. Изменить сложившуюся ситуацию может внедрение такого способа переработки кубовых остатков, который позволяет многократно сократить объем кондиционированных РАО.

МОНОСЕЛЕКТИВНАЯ ОЧИСТКА

Кубовые остатки являются продуктом выпарки различных ЖРО, образующихся на АЭС. Они представляют собой высокосолеватые растворы, загрязненные продуктами деления, радионуклидами коррозионного происхождения и различными веществами, используемыми для дезактивации оборудования и поддержания водно-химического режима. Традиционными методами переработки кубовых остатков АЭС являются цементирование и битумирование. Эти способы позволяют перевести ЖРО в достаточно инертную форму, пригодную для хранения (захоронения). Однако их использование не позволяет значительно сократить объем конечного радиоактивного продукта.

Селективная сорбция обладает неоспоримым преимуществом по сравнению с другими способами пере-

■ Operation of nuclear reactors at NPPs in Russia and Ukraine resulted in accumulation of a large volume of vat residues. Tanks for their storage are 70 and more percent filled. Methods of solidification of such waste used at some of the NPPs cannot find wide application due to the lack of storage facilities for the end product. The present situation can be changed by introduction of a vat residue treatment method that allows reducing the volume of concentrated RW many times.

ION-SELECTIVE CLEANING

Vat residues are produced from evaporation of various LRW generated at NPPs. They represent high-salt solutions contaminated with fission products, corrosion-originated radionuclides and different substances used for decontamination of equipment and maintenance of water chemistry. Conventional methods of NPP vat residue treatment are cementing and bituminization. These methods allow converting LRW into a fairly inert form suitable for storage (disposal). However, their application does not enable a significant reduction in the volume of the end radioactive product.

Selective sorption offers undeniable advantages over other vat residue treatment techniques (see Table 1). Therefore it is reasonable to use this method as a basic process for treatment such type of waste. However, at the Loviisa NPP (Finland) only cesium radionuclides are removed from vat residues using a selective sorbent.

ТАБЛИЦА 1. СРАВНИТЕЛЬНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ РАЗЛИЧНЫХ СПОСОБОВ ПЕРЕРАБОТКИ КУБОВЫХ ОСТАТКОВ

TABLE 1. COMPARATIVE CHARACTERISTICS OF DIFFERENT VAT RESIDUE TREATMENT METHODS

№	Способ переработки Treatment method	Коэффициент сокращения объема Volume reduction factor	Качество конечного продукта End product quality	Место использования Point of use
1.	Цементирование Cementing	0,9–1,3	Удовлетворительное Satisfactory	Балаковская АЭС Balakovo NPP
2.	Битумирование Bituminization	1,5–2,5	Хорошее Good	Ленинградская, Калининская АЭС Leningrad NPP, Kalinin NPP
3.	Глубокое упаривание Deep evaporation	2–3	Низкое Low	Нововоронежская АЭС Novovoronezh NPP
4.	Остекловывание Vitrification	3–4	Высокое High	МосНПО «Радон» Moscow Radon
5.	Селективная сорбция Selective sorption	100	Высокое High	«Ловииза» Loviisa

работки кубовых остатков (см. таблицу 1). Поэтому ее целесообразно использовать в качестве базового способа переработки таких отходов. Однако на АЭС «Ловиза» (Финляндия) кубовые остатки с помощью селективного сорбента очищают только от радионуклидов цезия.

Для очистки кубовых остатков практически от всех радионуклидов в ГУП МосНПО «Радон» совместно с ГП ВНИИАЭС, ЗАО «РАОТЕХ» и ЗАО «Альянс-Гамма» разработана технология ионселективной очистки (рис. 1). В кубовых остатках кроме радионуклидов цезия присутствуют радиоизотопы стронция, кобальта, марганца и др. Они находятся и в ионной форме, и в виде различных комплексов с веществами, которые используют для дезактивации оборудования и других целей. Чтобы очистить кубовые остатки от всех радионуклидов, необходимо перевести их в ионную форму. Для этого перед сорбцией кубовые остатки подвергают предварительной обработке, которая включает две стадии: озонирование и отделение образующегося при этом осадка. Целью такой обработки является разрушение органических комплексов, связывающих радионуклиды кобальта, марганца и других, склонных к комплексообразованию, и органических веществ, отравляющих селективные сорбенты, а также отделение образующегося осадка, на котором концентрируется основная доля (свыше 99%) радионуклидов кобальта, стронция, марганца и других.

После предварительной обработки раствор направляют на селективную очистку от радионуклидов цезия на сорбентах.

В результате технологических операций (озонирование, фильтрация осадка, сорбция) образуются вторичные отходы. Это осадок со стадии фильтрации, в который переходят радионуклиды кобальта, стронция, марганца и других с удельной активностью на уровне исходных ЖРО, отработавший сорбент, в котором в основном, содержатся радиоизотопы цезия (его удельная активность в сотни раз выше, чем ЖРО), а также очищенный кубовый остаток, где содержание радионуклидов не превышает санитарных норм.

Осадок со стадии фильтрации поступает на цементование, а отработавший сорбент непосредственно в корпусе аппарата размещается на долговременное хранение в хранилище твердых РАО.

Очищенный от радионуклидов кубовый остаток упаривают до сухих солей и в бочках направляют на полигон промышленных отходов.

Уникальность технологии состоит в том, что она позволяет перерабатывать не только декантат (раствор), но и осадок, который образовался в емкостях в результате длительного хранения и многократного доупаривания кубового остатка. Сначала перерабатывают декантат, а затем порциями растворяют осадок. Полученный раствор обрабатывают так же, как и декантат. Растворение осадка и переработку полученного раствора ведут до полного освобождения емкости.

Данная технология прошла лабораторные и стендовые испытания на Кольской, Калининской, Ленинградской АЭС, на Мангышлакском атомно-энергетическом комбинате (город Актау, Казахстан).

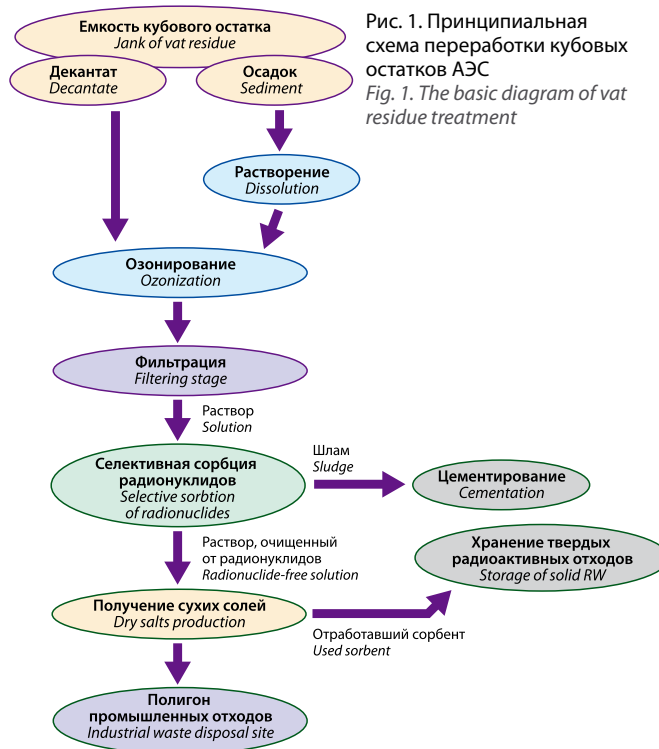


Рис. 1. Принципиальная схема переработки кубовых остатков АЭС
Fig. 1. The basic diagram of vat residue treatment

To clean virtually all radionuclides from vat residues, Moscow Radon in cooperation with GP VNIIAES, RAOTECH and Alliance-Gamma developed a ion-selective cleaning process. Besides cesium radionuclides, vat residues contain radioisotopes of strontium, cobalt, manganese, etc. both in ion form and in the form of various complexes with substances used for decontamination of equipment and other purposes. To clean all radionuclides from vat residues, the former shall be converted to ion form. To this end, vat residues are subjected to pre-treatment (Fig. 1) prior to the sorption itself. The pre-treatment includes two stages: ozonization and separation of a sediment formed in the process. The purpose of



Рис. 2. Генераторы озона и система охлаждения
Fig. 2. Ozone generators and the cooling system



Рис. 3. Фильтры предварительные (сетчатые)
Fig. 3. Preliminary filtering units (screen-based)

На Первой в мире АЭС (Обнинск) на кубовых остатках Калининской и Курской АЭС была испытана опытно-промышленная установка производительностью до 100 л/час.

КОМПЛЕКС ПЕРЕРАБОТКИ ЖРО

В 2006 году на Кольской АЭС был построен комплекс переработки ЖРО (КП ЖРО), реализующий данную технологию, проектной производительностью 0,5 м³/час. В него входят установки размыва и извлечения кубового остатка из емкостей хранения, ионоселективной очистки, глубокого упаривания.

С помощью установки размыва и извлечения, основным элементом которой является гидромонитор, декантат (или раствор, полученный при размыве осадка) направляют на узел озонирования установки ионоселективной очистки, где озон производят из кислорода с помощью генераторов (рис. 2). Озонирование происходит в периодическом режиме в контуре «емкость – насос – эжектор – емкость».

После завершения процесса озонирования кубовый остаток для отделения осадка направляют на узел фильтрации, состоящий из сетчатых и мембранных фильтров (рис. 3). На сетчатом фильтре происходит отделение основной доли осадка, а на мембран-

the treatment is to destroy organic complexes binding cobalt, manganese and other radionuclides prone to complexing, and organic substances poisoning selective sorbents, and to separate the produced sediment where the major portion (over 99%) of cobalt, strontium, manganese and other radionuclides is concentrated.

After the pre-treatment, the solution goes to selective cleaning of cesium radionuclides with sorbents.

The process operations (ozonization, sediment filtering, sorption) give rise to secondary waste, including sediment from the filtering stage to which pass cobalt, strontium, manganese and other radionuclides with specific activity level close to that of the initial LRW; used sorbent that contains for the most part cesium radioisotopes (its specific activity is hundreds times higher than that of the LRW); and cleaned vat residue which radionuclide content does not exceed sanitary norms.

The sediment from the filtering stage goes to cementing, and the used sorbent is put for long-term storage in a solid RW storage facility immediately in the unit casing.

The radionuclide-free vat residue is evaporated to dry salts and delivered to an industrial waste disposal site in drums.

The uniqueness of the process is that it allows processing not only decantate (solution) but also a sediment produced in tanks as a result of long-term storage and repeated further evaporation of the vat residue. First the decantate is treated, and then the sediment is dissolved in batches. The produced solution is treated in the same manner as the decantate. Dissolution of the sediment and processing of the resulting solution continue till the tank is emptied completely.

This process underwent laboratory and bench tests at the Kola, Kalinin, Leningrad NPP, Mangyshlak Nuclear Power Combine (Aqtau, Kazakhstan). A pilot plant with the capacity of up to 100 l/h was tested at the first in the world NPP (Obninsk) for vat residues from Kalinin and Kursk NPP.

LRW TREATMENT COMPLEX

A LRW treatment complex (LRW TC) implementing this technology with the design capacity of 0,5 m³/h was constructed at the Kola NPP in 2006. The complex includes plants for washing out and retrieval of vat residues from storage tanks, ion-selective cleaning and deep evaporation.

With the help of the washing-out and retrieval plant which heart is a hydraulic giant, decantate (or solution produced from washing the sediment) is supplied to an ozonization unit of the ion-selective cleaning plant where ozone is produced from oxygen using generators (Fig. 2).

ТАБЛИЦА 2. РАДИОНУКЛИДНЫЙ СОСТАВ КУБОВОГО ОСТАТКА КОЛЬСКОЙ АЭС

TABLE 2. RADIONUCLIDE COMPOSITION OF THE VAT RESIDUE FROM THE KOLA NPP

№ емкости, тип ЖРО Tank No., LRW type	Объемная активность, Бк/л Volume activity, Bq/l			
	⁶⁰ Co	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	⁵⁴ Mn
ЕКО-5, декантат EKO-5, decantate	9,0 E+0,5	1,2 E+0,7	1,2 E+0,8	1,6 E+0,4
ЕКО-6, раствор, полученный из осадка EKO-6, solution produced from the sediment	0,1–2 E+5	0,05–1 E+6	0,05–1 E+7	<1 E+4

Технология ионоселективной очистки позволяет перерабатывать не только декантат (раствор), но и осадок, который образовался в емкостях в результате длительного хранения и многократного доупаривания кубового остатка.

The process of ion-selective cleaning allows processing not only decantate (solution) but also a sediment produced in tanks as a result of long-term storage and repeated further evaporation of the vat residue.

ном – доочистка. Периодически с помощью сжатого воздуха производят обратную промывку сетчатого фильтра. Полученный шлам временно, до ввода в эксплуатацию установки цементирования, сбрасывают в специальную емкость.

Для извлечения радиоизотопов цезия из пермеата, его прокачивают с узла фильтрации в контрольную емкость насосом-дозатором через два последовательно соединенных фильтра-контейнера (объемом 120 л каждый) с ферроцианидным сорбентом.

Затем очищенный от радионуклидов кубовый остаток направляют на установку глубокого упаривания. Ее основным элементом является многосекционный теплообменник «труба в трубе», позволяющий получать плав солей, который при остывании превращается в прочный материал. Плав разливают в 200-литровые бочки и хранят в специально отведенном месте как нерадиоактивные отходы.

Управление всеми стадиями переработки осуществляется с пульта оператора (см. рис. 4).

За время опытной (2006 год) и четыре месяца промышленной эксплуатации в 2007 году на КП ЖРО переработано 67 м³ декантата из емкости ЕКО-5 и 1200 м³ раствора, полученного при растворении осадка в емкости ЕКО-6 (см. табл. 2).

Вторичные РАО, полученные в результате переработки, – четыре отработавших фильтра-контейнера с сорбентом и 11 м³ шлама с узла фильтрации. Коэффициент сокращения объема радиоактивных отходов превысил 50.

Из очищенного от радионуклидов кубового остатка получено 100 т солей объемом 52 м³. Их удельная активность значительно меньше значений, установленных санитарными нормами для радиоактивных отходов. Кроме того, предоставляется возможным использовать полученные соли в качестве сырья для получения соединений бора, запасы которого в России практически исчерпаны.

Таким образом, внедрение способа ионоселективной очистки кубовых остатков на Кольской АЭС позволяет не только значительно сократить объемы РАО, направляемых на долговременное хранение, но и использовать ценные компоненты радиоактивных отходов в промышленности, в том числе и на АЭС.

Ozonization is performed in a periodic mode in the “tank – pump – ejector – tank” circuit.

Upon completion of the ozonization process, the vat residue is supplied to a filtering unit comprised of screen and membrane filters (Fig. 3) for separation of the sediment. The major part of the sediment is separated at the screen filter, and final purification is implemented with the membrane filter. The screen filter is periodically subjected to back flushing with compressed air. The produced sludge is discharged to a special tank for interim storage until a cementing plant is put in operation.

To extract cesium radioisotopes from the permeate, the latter is pumped from the filtering unit to a control tank through two tandem container filters (120-l volume each) with ferrocyanide sorbent.

Then the radionuclide-free vat residue is supplied to the deep evaporation plant. Its key component is a multisection “pipe in pipe” heat exchanger that allows producing a salt melt turning into a strong material while cooling down. The melt is packaged into 200-l drums and stored in a specially allocated place as nonradioactive waste.

Operations at all treatment stages are controlled from the operator panel (see Fig. 4).

During the trial operation in 2006 and 4 months of commercial operation in 2007, the LRW TC processed 67 m³ of decantate from EKO-5 tank and 1200 m³ of solution produced by dissolving the sediment in EKO-6 tank (see Table 2).

Secondary RW generated in the treatment process comprised 4 used container filters with sorbent and 11 m³ of sludge from the filtering unit. The radioactive waste volume reduction factor was over 50.

100 t of salts with the volume of 52 m³ were produced from the radionuclide-free vat residue. Their specific activity is much lower than the values prescribed by sanitary standards for radioactive waste. Besides, it appears practical to use the produced salts for preparation of boron compounds since boron stocks in Russia are almost exhausted.

Thus introduction of the ion-selective method of cleaning vat residues at the Kola NPP will allow not only significantly reducing volumes of RW to be put in long-term storage but also using valuable RW components in industry, including in NPPs.



Рис. 4. Щит управления
Fig. 4. The operator panel