

В.Г. ІВАНЕЦЬ, Т.Г. ВОЛОШЕНЮК*Державна установа "Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України",
м. Київ***ВИКОРИСТАННЯ МЕТОДУ ПОСЛІДОВНИХ ПОСТУПОК ПРИ РОЗРОБЦІ СПОСОБУ ДЕЗАКТИВАЦІЇ ПРИМІЩЕНЬ ТА ОБЛАДНАННЯ АЕС ВІД РАДІОАКТИВНИХ ЗАБРУДНЕНЬ**

Наведені результати розробки технології дезактивації від забруднення радіоактивними речовинами наливних, фарбованих і металевих поверхонь та бетону з використанням методу послідовних поступок та результати промислових випробувань цих розробок в умовах Запорізької АЕС, Хмельницької АЕС та Южно-Української АЕС, які можуть бути використані на підприємствах атомної енергетики та при ліквідації наслідків надзвичайних ситуацій.

Постановка задачі

У теперішній час дезактивація від забруднення радіоактивними речовинами приміщень та обладнання АЕС (ПО АЕС) проводиться на основі нормативних документів [1, 2, 3, 4] та технологій, розроблених ще в часи СРСР [5, 6], в залежності від ступеня забруднення, в один або два цикли, з використанням значної кількості хімреагентів та часу. В процесі дезактивації використовується один або два розчини. Кожен з них містить по 3 хімічних реагенти: поверхнево-активні речовини або порошок пральний (ОСТ 6-15-933-75), поліфосфати натрію або соду кальциновану, щавлеву кислоту або марганцевокислий калій, що потребує зусиль персоналу, значно ускладнює процес дезактивації і відповідно, його подорожчання, що відображено в таблиці 1.

Таблиця 1. Проектний спосіб дезактивації приміщень та обладнання АЕС

№ п/п	Назва операції	Температура, °С	Витрати на 1 м ² поверхні					Час дезактивації, хвилин
			Вода, дм ³	ОП-7 або ОП-10 або порошок пральний, г	Триполі-фосфат або гексамета фосфат або сода кальцинована, г	Щавлева кислота, г	Марганцевокислий калій, г	
1	Цикл №1 дезактивації	20	1	1-2	3-5		1-2	15-20
2	Промивка конденсатом	20	1					
3	Цикл №2 дезактивації	20	1	1-2	3-5	10-15		15-20
4	Промивка конденсатом	20	1					

На 1 м² дезактивації наливних, фарбованих і металевих поверхонь використовується 1 дм³ розчину, для бетону – 2 дм³. При дуже великому забрудненні дезактивацію проводять в два цикли: для першого циклу готують розчин з додаванням марганцевокислого калію, для другого – розчин з додаванням щавлевої кислоти. Для першого циклу дезактивації використовують розчин, що містить ОП-7 або ОП-10 або порошок пральний (ОСТ 6-15-933-75) від 1,0 до 2,0 г/дм³, триполіфосфат натрію або гексаметофосфат натрію або соду кальциновану від 3,0 до 5,0 г/дм³, марганцевокислий калій від 1,0 до 2,0 г/дм³, для другого циклу дезактивації використовують розчин, що містить ОП-7 або ОП-10 або порошок пральний (ОСТ 6-15-933-75) від 1,0 до 2,0 г/дм³, триполіфосфат натрію або гексаметофосфат натрію або кальциновану соду від 3,0 до 5,0 г/дм³, щавлеву кислоту від 10,0 до 15,0 г/дм³.

Кожний нанесений розчин на поверхні витримують від 15 до 20 хвилин і після кожного розчину оброблену поверхню промивають конденсатом.

Недоліком цього методу дезактивації наливних, фарбованих, металевих поверхонь та бетону від забруднення радіоактивними речовинами є його низька ефективність, обумовлена:

- значним використанням кількості хімічних реагентів;
- збільшеним солемістом рідких радіоактивних відходів;
- збільшеними витратами часу на дезактивацію.

Використання значної кількості хімічних реагентів для дезактивації від забруднення радіоактивними речовинами ПО АЕС призводить до збільшення фінансових витрат на дезактивацію.

З метою підвищення екологічної безпеки АЕС та враховуючи недоліки проектних рішень дезактивації на АЕС, автори поставили завдання удосконалити спосіб дезактивації від забруднень радіоактивними речовинами наливних, фарбованих і металевих поверхонь та бетону при проведенні дезактиваційних робіт на підприємствах атомної енергетики та при ліквідації наслідків надзвичайних ситуацій, шляхом зниження використання кількості хімічних реагентів для підвищення коефіцієнту дезактивації, скорочення солемісту рідких радіоактивних відходів та часу дезактивації.

Критеріями оцінки розроблюваної технології були вибрані наступні показники:

- зменшення кількості хімічних реагентів;
- підвищення коефіцієнту дезактивації;
- зменшення солемісту рідких радіоактивних відходів;
- зменшення витрат часу на дезактивацію. [7]

Методологічна частина

Дезактивацією називають процес звільнення ПО АЕС від радіоактивних забруднень за допомогою водних розчинів поверхнево активних речовин (ПАР). Радіоактивне забруднення приміщень та обладнання АЕС має свої особливості. ПО АЕС можуть бути забруднені жиромасляними відкладеннями, лакофарбовими покриттями, цементним та металевим пилом, сажою та вуличним брудом, липкими речовинами, які закріплюються на поверхні, проникаючи в пори і щілини. [8].

Радіонукліди в «забрудненні», головним чином, представлені сполуками типу простих Me_nO_m (UO₂, PuO₂, SrO, Cs₂O тощо) і складних форм утворення Me_n⁺, Me_p⁻, Me_c^{...}O_m, де Me⁺, Me⁻, Me^{...} – різні елементи періодичної системи Менделєєва: кальцій, магній, залізо, алюміній, кремній, цезій, уран, плутоній тощо. Також радіонукліди можуть перебувати у вигляді твердих частинок пилу і в тяжковидаляємій складній адсорбованій на поверхні формі, а також у вигляді сорбованих поверхнею розчинних або полімеризованих формах різного ступеню окислення. Наприклад, рутеній-106 і церій-144 утворюють сполуки, сорбовані на тканинах: рутеній - зі ступенем окислення від 0 до 8, а церій - від 2 до 4.

У загальному вигляді процес забруднення волокон, ПО АЕС складається з наступних фаз:

- осадження частинок пилу і бруду із зовнішнього середовища на поверхні;
- адсорбції забруднення зовнішньою поверхнею;
- дифузії забруднення усередину поверхні;
- фіксації забруднень поверхнею.

Основними факторами, що впливають на забруднення, є структура і вид поверхні, матеріал з якого вона зроблена, матеріали покриття поверхні, жиромасляні плівки.

У воді з природною концентрацією солей розчинність радіонуклідів становить від $n \cdot 10^{-7}$ до $n \cdot 10^{-10}$ Ку/дм³, що значно менше, ніж необхідно для дезактивації з необхідною ефективністю. Тому для проведення дезактивації необхідно застосовувати дезактивуючі розчини, що мають такі характеристики:

- швидко і повно змочують оброблювану поверхню і забруднюючу речовину;
- руйнують зв'язок радіоактивної речовини з поверхнею і переводять забруднення в розчин;
- запобігають повторній сорбції радіоактивного забруднення на поверхню;
- не надають руйнівної дії на поверхню і не викликають збільшення сорбційної здатності поверхні матеріалу;
- при переході в стічні води спецрального забезпечують очищення стічних вод з використанням встановленого очисного обладнання і застосованої технології очистки стічних вод [9].

Таким чином, технологія дезактивації ПО АЕС повинна виключати можливість утворення важкорозчинних сполук у процесі обробки і сприяти переведенню забруднення в розчин як у формі водорозчинних сполук, так і солюбілізований формі дисперсних важкорозчинних сполук.

Відповідно режими дезактивації ПО АЕС повинні забезпечувати:

- значення коефіцієнта дезактивації не менше 20;
- видалення нерадіоактивних забруднень біологічного і технічного характеру;
- збереження зовнішнього вигляду, захисних та експлуатаційних властивостей дезактивуємих ПО АЕС;
- не знижувати значень міцності поверхні та покриття, зазначених у нормативній документації.

Система водний розчинник - вироби - забруднення - підсилювачі характеризується складністю і багатофакторністю. Основними факторами, що безпосередньо впливають на процес дезактивації при розробці нового складу речовин, з урахуванням режимів дезактивації, були обрані концентрації: суміші ПАР, регуляторів рН дезактивуючих розчинів, комплексоутворювачів, електролітів, стабілізаторів, запашок.

Підбір основних і допоміжних компонентів рецептур здійснювався, виходячи з міркувань про те, що сучасні мийно-дезактивуючі засоби, незалежно від товарної форми, повинні бути зручними для використання, забезпечувати високу мийну та дезактивуючу дію, запобігати старінню і руйнуванню поверхонь, які дезактивуються, бути стабільними при зберіганні, легко виділятися із стічних вод або розкладатися, не наносячи екологічного збитку навколишньому середовищу. При цьому дезактивуючі засоби також повинні сприяти зниженню енергоємності процесу дезактивації, скороченню утворення рідких радіоактивних відходів та зменшенню їх солемісту, а також витрат на переробку та зберігання РРВ.

Враховуючи, що забезпечити максимум задоволення всіх вимог неможливо через їх суперечливості, а іноді і взаємовиключення, кожна рецептура розроблялася виходячи з розуміння, що кінцевий продукт повинен являти собою розумний компроміс основних функціональних та експлуатаційних властивостей, а також вартості. У зв'язку з цим, поставлена в роботі задача зводилася до розробки дезактивуючих засобів, що мають найкращі мийні та дезактивуючі спроможності при заданій собівартості і рівні впливу на

навколишнє середовище. При цьому враховувалося, що виробництво дезактивуючих засобів має бути технологічним, а закладені в рецептуру компоненти - доступними.

В результаті роботи зі створення нового дезактивуючого складу можна звести до визначення і дослідження багатокритеріальної функції з визначенням інтервалу значень факторів для розробки оптимального дезактивуючого складу.

Авторами запропоновано використовувати для цієї мети теорію «методу поступок», тобто пошук не єдиного точного оптимуму, а деяких областей рішень, близьких до оптимального – квазіоптимальної множини [10].

При вирішенні багатокритеріальної задачі методом послідовних поступок спочатку виробляється якісний аналіз відносної важливості окремих критеріїв, на підставі такого аналізу критерії розташовуються і нумеруються в порядку убуття важливості так, що головним є критерій K_1 , менш важливий K_2 , потім йдуть інші окремі критерії $K_3, K_4 \dots, K_S$. Максимізується перший за важливістю критерій K_1 і визначається його найбільше значення Q_1 . Потім призначається величина «допустимого» зниження (поступки) $\Delta_1 > 0$ критерію K_1 і шукається найбільше значення Q_2 другого критерію K_2 за умови, що значення першого критерію має бути не менше, ніж $Q_1 - \Delta_1$. Знову призначається величина поступки $\Delta_2 > 0$, але вже за другим критерієм, яка разом з першою використовується при знаходженні умовного максимуму третього критерію, і т.д. Нарешті, максимізується останній за важливістю критерій K_S за умови, що значення кожного критерію K_r з $S-1$ попередніх повинно бути не менше відповідної величини $Q_r - \Delta_r$. Одержані в результаті стратегії вважаються оптимальними.

Таким чином, оптимальною вважається будь-яка стратегія, що є рішенням останнього завдання з наступної послідовності завдань:

$$1) \text{ знайти } Q_1 = \sup_{u \in U} K_1(u)$$

$$2) \text{ знайти } Q_2 = \sup_{\substack{u \in U \\ K_1(u) \geq Q_1 - \Delta_1}} K_2(u)$$

$$3) \text{ знайти } Q_S = \sup_{\substack{u \in U \\ K_r(u) \geq Q_r - \Delta_r \\ r = 1, 2, \dots, S-1}} K_S(u)$$

Якщо критерій K_S на безлічі стратегій, які відповідають обмеженням завдання Q_S , не досягає свого найбільшого значення Q_S , то рішенням багатокритеріальної задачі вважають максимізуючу послідовність стратегій $\{u_k\}$ із зазначеної безлічі ($\lim_{k \rightarrow \infty} K_S(u_k) = Q_S$)

Таким чином, при використанні методу послідовних поступок багатокритеріальне завдання зводиться до поєднання максимізації окремих критеріїв і вибору величин поступок. Величини поступок характеризують відхилення пріоритету одних окремих критеріїв перед іншими від лексикографічного: чим поступки менше, тим пріоритет жорсткіше.

Відповідно до вищевикладеного, при створенні дезактивуючих рецептур були обрані наступні критерії з обмеженням інтервалу досліджень, у порядку ранжирування:

1. Концентрація ПАР від 10,0 до 20,0%. Діапазон обирався, виходячи з міркувань досягнення високої миючої дії при збереженні прийнятної собівартості кінцевого продукту;

2. Концентрація комплексотворювачів від 15,0 до 20,0%. Діапазон обирався для пом'якшення води до рівнів, що сприяють досягненню максимальної миючої здатності ПАР;

3. Концентрація регуляторів рН від 10,0 до 12,0%. Діапазон обирався з міркувань досягнення і підтримки рН дезактивууючих розчинів на рівні 7,8- 9 для забезпечення максимальної миючої дії використовуваних ПАР;

4. Концентрація електролітів від 10,0 до 15,0%. Діапазон обирався з міркувань граничного зменшення критичної концентрації міцелоутворення використаних ПАР.

Випробовування

У результаті проведення дослідів, на першому етапі були отримані набори інтервалів значень концентрацій компонентів дезактивууючого розчину.

На другому етапі проводилася оцінка дезактивууючих властивостей розчинів. Оцінка їх дезактивууючих властивостей розроблених рецептур проводилася експериментально відповідно до вимог ГОСТ 4.70-81 [4].

На другому етапі досліджувалася 81 рецептура.

Для коректного порівняння ефективності розроблюваних засобів дезактивації та складання найкращої рецептури, їх експериментальна перевірка проводилась при однакових умовах:

- вихідного забруднення;
- температури;
- терміну дезактивації;
- механічного впливу.

В результаті проведених розрахунків було отримано ряд рецептур, з найкращими режимами дезактивації, залежно від природи поверхні, що дезактивується, видів радіоактивних, механічних, олійно-жирових забруднень, сольового складу використовуваної води. На базі цих рецептур було створено сімейство дезактивууючих засобів марки «ЩИТ» [11].

При проведенні випробовувань, в умовах Запорізької АЕС, Хмельницької АЕС та Южно-Української АЕС, розроблених режимів із застосуванням розроблених засобів для дезактивації ПО АЕС від забруднення радіоактивними речовинами вдалося скоротити кількість рідких радіоактивних відходів, завдяки зменшенню споживання кількості хімічних реагентів та води, порівняно з проектним.

На 1м² дезактивації наливних, фарбованих і металевих поверхонь та бетону використовують 1 дм³ розчину, для бетону – 2 дм³. При дуже великому забрудненні дезактивацію проводять в два цикли. Для першого циклу дезактивації готують розчин із застосуванням розробленого мийно-чистильного засобу в кількості від 10,0 до 15,0 г/дм³, для другого циклу дезактивації готують розчин із застосуванням розробленого мийно-чистильного засобу в кількості від 5,0 до 10,0 г/дм³. Нанесений розчин на поверхні витримували від 10 до 15 хвилин. Після кожного розчину оброблену поверхню промивали конденсатом. При цьому витрати хімічних реагентів зменшуються, порівняно з проектними рецептурами [12].

Таблиця 2. Розроблений режим дезактивації наливних, фарбованих, металевих поверхонь та бетону

№ п/п	Назва операції	Температура, °С	Витрати на 1 м ² поверхні		Час дезактивації, хвилин
			Вода, дм ³	Засіб мийно-чистильний марки "ЩИТ", г	
1	Цикл №1 дезактивації	20	1	10-15	10-15
2	Промивка конденсатом	20	1		
3	Цикл № 2 дезактивації	20	1	5-10	10-15
4	Промивка конденсатом	20	1		

Завдяки цьому:

- зменшились витрати кількості хімічних реагентів з 14,0-22,0 г/дм³ до 10,0-15,0 г/дм³ (для дуже забруднених поверхонь з 19,0-31,0 г/дм³ до 15,0- 25,0 г/дм³);
- скоротився солевміст рідких радіоактивних відходів з 7,0-11,0 г/дм³ до 5,0-7,5 г/дм³ (для дуже забруднених поверхонь з 4,75-7,75 г/дм³ до 3,75-6,25 г/дм³),
- зменшилась кількість хімічних реагентів з 3 до 1 (для дуже забруднених поверхонь з 4 до 1),
- зменшився час дезактивації з 15-20 хвилин до 10-15 хвилин (для дуже забруднених поверхонь з 30-40 до 20-30 хвилин).

В таблиці 3 представлені результати дезактивації наливних, фарбованих і металевих поверхонь і бетону, забруднених радіоактивними речовинами із застосуванням розробленого мийно-чистильного засобу та за проектними режимами дезактивації.

Таблиця 3. Порівняльні результати дезактивації наливних, фарбованих, металевих поверхонь та бетону, із застосуванням розробленого мийно-чистильного засобу та за проектними режимами дезактивації

№ п/п	Тип поверхні, що підлягає дезактивації	Початковий рівень забруднення β - част/см ² хв.	Залишковий рівень забруднення при застосуванні засобу "ЦИТ" β - част/см ² хв.	Залишковий рівень забруднення за прототипом β - част/см ² хв.
1	Поверхні наливних підлог	1100	22	37
2	Поверхні із нержавіючої сталі	2000	20	46
3	Поверхні із вуглецевої сталі	1760	24	35
4	Поверхні фарбованих стін	980	21	33
5	Поверхні фарбованої вуглецевої сталі	780	20	34
6	Поверхні фарбованої підлоги	1200	22	36
7	Поверхні бетону	820	25	41
8	Поверхні бетону фарбовані	1520	21	32
	Середній рівень	1270	21,9	36,8

Як видно із таблиці 3, залишкові рівні забруднення при застосуванні розробленого способу дезактивації ПО АЕС нижчі, в порівнянні з проектним.

В таблиці 4 показані коефіцієнти дезактивації по β -випромінюванню K_β ПО АЕС після проведення дезактивації за пропонованим та за проектним способами.

Таблиця 4. Порівняння коефіцієнтів дезактивації по β -випромінюванню K_β наливних, фарбованих, металевих поверхонь та бетону після проведення дезактивації за розробленим та проектним способами

№ п/п	Тип поверхні, що підлягає дезактивації	Коефіцієнт дезактивації при застосуванні засобу марки "ЩИТ", K_β	Коефіцієнт дезактивації за прототипом, K_β
1	Поверхні наливних підлог	50,0	29,73
2	Поверхні із нержавіючої сталі	100,0	43,48
3	Поверхні із вуглецевої сталі	73,33	50,29
4	Поверхні фарбованих стін	46,67	29,7
5	Поверхні фарбованої вуглецевої сталі	39,0	22,94
6	Поверхні фарбованої підлоги	54,55	33,33
7	Поверхні бетону	32,8	20,0
8	Поверхні бетону фарбовані	72,38	47,5
	В середньому:	57,99	34,51

Як видно із таблиці 4, середній коефіцієнт дезактивації поверхонь по β -випромінюванню, при застосуванні розробленого способу, K_β дорівнює 57,99, а при застосуванні способу за проектом K_β дорівнює 34,51.

Висновки

Дані таблиці 3 і 4 показують, що розроблений спосіб дезактивації наливних, фарбованих, металевих поверхонь та бетону є більш ефективний, в порівнянні з проектним.

Розроблений метод дезактивації, в порівнянні з проектним дозволяє:

- зменшити використання кількості хімічних реагентів та солевмісту рідких радіоактивних відходів;

- підвищити ефективність дезактивації наливних, фарбованих, металевих поверхонь та бетону, а саме:

1. зменшити використання кількості хімічних реагентів на 28,58 - 31,82% (для дуже забруднених поверхонь – на 19,35 - 21,05%);

2. скоротити солевміст рідких радіоактивних відходів на 28,58 - 31,82% (для дуже забруднених поверхонь – на 19,35 - 21,05 %);

3. підвищити середній коефіцієнт дезактивації K_β до 68,04%;

4. зменшити кількість хімічних реагентів до одного;

5. скоротити час дезактивації на 25,0 - 33,33%.

1. ГОСТ 25146-82. Материалы радиоактивных средств и атомных энергетических установок. Метод определения коэффициента дезактивации.

2. СПОРО-85. Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами.
3. ПРБ-89 Правила радиационной безопасности при эксплуатации атомных станций
4. ГОСТ 4.70-81 «Система показателей качества продукции. Рецептуры дезактивирующие. Номенклатура показателей».
5. Инструкция по технологии дезактивации поверхностей помещений ОО.ЦЦ.Ти.ИЭ.ОЗД ВП Запорізька АЕС.
6. Инструкция по технологии дезактивации поверхностей оборудования и помещений гермозоны, ОП Запорожской АЭС, утвержденной заместителем директора технического по ремонту.
7. Иванец В.Г. Сокращение количества РАО на объектах атомной энергетики Украины, использующих водосберегающие режимы дезактивации. Координационный научно-технический совет по обращению с РАО концерна «Росэнергоатом», 10-12 июня 2003г., г.Энергодар.
8. Мирошниченко С.Т., Гавриш В.М., Иванец В.Г. Анализ эффективности средств дезактивации углеродистых сталей // Мат. наук.-техн. конф. «Проблеми поводження з радіоактивними відходами в Україні», VIII міжн. вист. форум «Технологія захисту - 2009», Київ – 2009.
9. Иванец В.Г. Выбор оптимальных соотношений компонентов дезактивирующего раствора с помощью математического моделирования // Ядерна та радіаційна безпека, 2011. – №1(49). – С. 38-40.
10. Иванец В.Г. Разработка средства дезактивации спецодежды и средств индивидуальной защиты на основе малореагентных химических составов // Ядерна та радіаційна безпека, 2010. – №3(47). – С. 50-52.
11. Пат. 65169 Україна. Дезактивуючий мийний засіб із зниженим піноутворенням / Иванец В.Г.; № 2003065398; подано 15.03.04; опубл. 15.03.2004, Бюл. № 3.
12. Декл. пат. на корисну модель № 2539 Спосіб скорочення кількості використаних хімреагентів та солевмісту рідких радіоактивних при дезактивації наливних, фарбованих і металевих поверхонь та бетону від радіоактивного забруднення / Иванец В.Г.; № 2003076503 подано 11.07.2003; опубл. 15.06.2004, Бюл. № 6.

В.Г. Иванец, Т.Г. Волошенюк

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МЕТОДА ПОСЛЕДОВАТЕЛЬНЫХ УСТУПОК ПРИ РАЗРАБОТКЕ СПОСОБА ДЕЗАКТИВАЦИИ ПОМЕЩЕНИЙ И ОБОРУДОВАНИЯ АЭС ОТ РАДИОАКТИВНЫХ ЗАГРЯЗНЕНИЙ

В статье приведены результаты разработки технологии дезактивации от загрязнения радиоактивными веществами наливных, крашеных, металлических поверхностей и бетона с использованием метода последовательных уступок и результаты промышленных испытаний этих разработок в условиях Запорожской АЭС, Хмельницкой АЭС и Южно-Украинской АЭС, которые могут быть использованы на предприятиях атомной энергетики и ликвидации последствий чрезвычайных ситуаций.

V.G. Ivanets, T.G. Voloshenyuk

USING THE METHOD OF SUCCESSIVE CONCESSIONS IN DEVELOPING A METHOD OF DECONTAMINATION FACILITIES AND EQUIPMENT OF NPP FROM RADIOACTIVE CONTAMINATION

The results of decontamination technology development from contamination by radioactive substances liquid, colored, concrete and metal surfaces using the method of successive concessions are shown. The results of industrial tests of these developments, in Zaporizhia NPP, Khmel'nitska NPP and South-Ukrainian NPP, which can be used in the nuclear energy enterprises and for liquidation of accident consequences are presented.