

Influence of microorganisms on degradation products of gamma irradiated organic radioactive wastes – preliminary results

Petr Polívka, Hana Váňová, Tomáš Černoušek Centrum výzkumu Řež
Pavel Hrabák, Jana Steinová, Rojina Shrestha Technická univerzita v Liberci
petr.polivka@cvrez.cz

Abstract

General solution for the disposal radioactive waste is storing in the repository. The organic material belong to important components of radioactive waste. Ones of significant representative ILW are ion exchangers which are based on polystyrene polymers and are integral part in technology of PWR reactors. The model wastes were irradiated in gamma facility, the total dose was about 1 MGy, which is presumed dose during first 1,000 years. Microorganisms are widely occurred in near surface and underground water and can be activated and affect processes in repository. This work describes preliminary experimental results.

Key words: radioactive waste, ILW, ion exchangers, microorganisms, degradation, DGR

Úvod

Středně aktivní odpady (ILW) a nízko aktivní odpady (LLW) podle typu a složení především s obsahem radionuklidů s dlouhým poločasem rozpadu vyžadují uložení v hlubinném geologickém úložišti (DGR) nebo v některých případech je možné použít úložiště přípovrchové. Středně aktivní odpady vykazují malé množství uvolňovaného tepla, nevyžadují speciální zacházení tak jako vysokoaktivní odpad a obsahují různé typy materiálů, mezi které patří odpady organické povahy.

V tomto projektu byly zvoleny materiály obsahující organické sloučeniny jako jsou: bitumeny, organické iontoměničové pryskyřice a halogenované polymery (PVC), které jsou přítomné ve významných množstvích v národních inventářích radioaktivních odpadů. Tato část se zaměřuje na hodnocení vlivu gama záření na degradaci polystyrénových pryskyřic v neutrálním a alkalickém pH v simulovaných podmínkách úložiště a působení mikroorganismů na rozkladné produkty. Ty mohou sloužit jako zdroj živin a tvořit příznivé podmínky pro rozvoj mikroorganismů. Jejich dlouhodobý vliv na konstrukci úložiště a inženýrské bariéry má být minimalizován.

Experimentální provedení

Materiál iontoměničů

Jako materiál byly použity katex a anex v poměru 2:1. Silně kyselý katex obsahuje polymerní gelový polystyrenový skelet se sulfonovými funkčními skupinami ($R-SO_3^-$). Silně bazický anex obsahuje polymerní skelet – polystyren zesíťovaný divinylbenzenem s kvarterními amoniiovými funkčními skupinami $R-N^+(CH_3)_3$. Ionexy mají tvar nepravidelných kuliček o průměru od 0,3 do 1,2 mm. Obsah sušiny byl 49 hm.%. a ionexy byly saturovány z 90% své kapacity. Takto připravené ionexy simulují vysycené iontoměnič vystupující z technologie reaktoru typu VVER.

Gama ozařovna s kobaltovým zářičem

Pro experiment byla použita gama ozařovna „PRAZDROJ“, která je studnového typu s tyčovým kobaltovým ^{60}Co zářičem, který je situován v ose ozařovny. Tyčový zdroj se uvolní ze stínícího kontejneru a přesune do pracovní polohy do středového otvoru (**Obrázek 1**).

Technická data

Ozařovací zdroj – „PRAZDROJ“

Nominální aktivita 500 TBq

Rozsah dávkového příkonu 0,25 – 7 kGy/h

Připravené vysycené ionexy byly přeneseny do lahví a byly umístěny do ozařovny v pravidelných rozestupech. Aby bylo dosaženo rovnoměrného ozáření byly použity lahve vhodného geometrického tvaru – s rovnoběžnými stěnami. K zajištění vyšší homogenity samotného ozařovacího pole byly všechny lahve se vzorky v polovině ozařovacího doby otočeny (o 180°) tak, aby původně zadní odvrácená strana od zdroje byla nyní umístěna čelem ke zdroji. Všeobecně se předpokládá, že celková dávka 1 MGy představuje dávku v úložišti během prvních 1000 let. Pro výrazné zkrácení času byla aplikována vyšší ozařovací rychlost.



Obrázek 1: Pohled do ozařovacího zařízení v otevřené poloze (zdroj je umístěn ve stínění)

Dozimetrie

Pro stanovení dávkového příkonu a celkové dávky bylo použito dozimetrického systému alanin / EPR spektroskopie (elektronová paramagnetická rezonance). EPR spektrometr pracuje na základě měření přechodů energetické úrovně nepárových (volných) elektronů na konkrétní rezonanční frekvenci v proměnném magnetickém poli. Alanin tvoří velmi stabilní volný radikál pokud je vystaven ionizujícímu

záření. Tvorba alaninových radikálů a tedy EPR signálu je závislá na dávce, ale je nezávislá na dávkovém příkonu a energii, a je relativně necitlivá na vliv teploty a vlhkost. Vyhodnocení ozářených dozimetřů pomocí EPR spektroskopii trvá krátce – během několika minut. Na základě podmínek a dozimetrických měření byly stanoveny níže uvedené parametry:

Průměrný dávkový příkon: 2,04 kGy/h

Celková dávka: 1028 ± 65 kGy

Teplota v průběhu ozařování: 20 ± 1 °C

Identifikace rozkladných produktů

Po ozáření modelových odpadů byl sledován významný nárůst celkového organického uhlíku ve vodných roztocích vzorcích. Dále byly analyzovány vodné, metanolové a acetonové výluhy pomocí technik FTIR a GC/MS. První výsledky naznačují významné zastoupení trimethylaminu a dimethylaminoacetonitilu (**Obrázek 2**). V současné době probíhá identifikace rozkladných sloučenin.

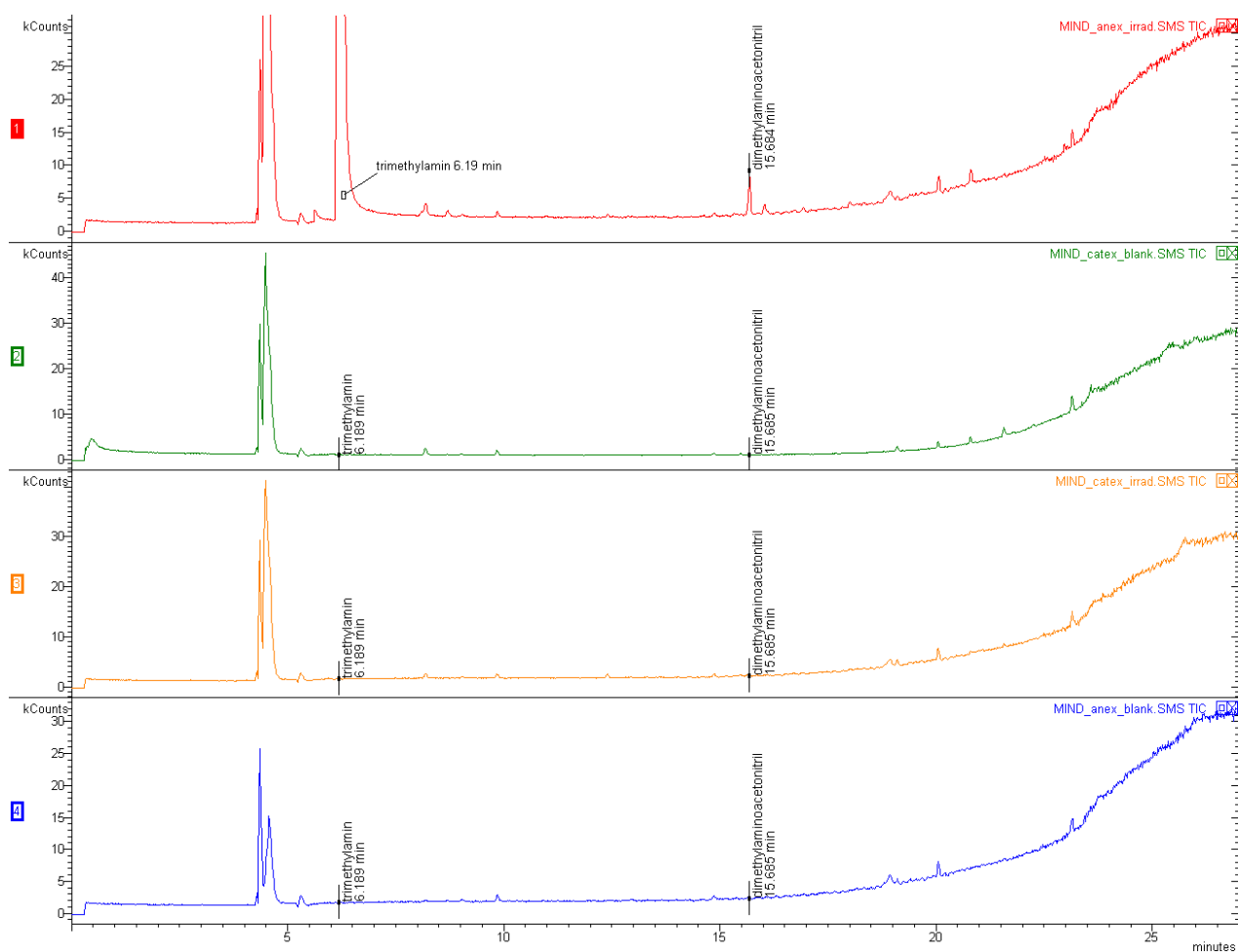
Dále bude hodnocen vliv mikroorganismů na degradační produkty a jejich rozvoj. Batchové experimenty s ozářenými modelovými odpady budou inokulovány podzemní vodou odebranou z reálných podmínek ve spolupráci s podzemními laboratořemi z hloubky cca 100m a případně cca 700m. Vliv mikroorganismů na změny budou sledovány v pravidelných delších časových intervalech, předpokládá se 1, 3, 6, 12 a 24 měsíců. Po tuto dobu bude nutné udržovat vzorky v podmínkách úložiště tj. zcela bez přístupu vzduchu v anaerobním prostředí.

Zhodnocení a závěr

Ze spektra významných organických radioaktivních odpadů byly vybrány hlavní zástupci vyskytující se v řadě národních inventářů. Tato část se zaměřuje na organické iontoměničové pryskyřice, které vystupují z technologie reaktor typu VVER. V první části byly vysycené ionexy gama ozařovány. Pro urychlení procesu byla použita vyšší rychlost ozařování. Po expozici byly identifikovány rozkladné produkty. Dále budou následovat batchové experimenty v anaerobních podmínkách se zaměřením na hodnocení vlivu inokulovaných vod s reálnými mikroorganismy. Uvedené výsledky a postup prací jsou předběžné.

Literatura

- [1] Baidak A, LaVerne JA. Radiation-induced decomposition of anion exchange resins. J Nucl Mater. 2010 Dec 31;407(3):211–9.
- [2] Remya Devi PS, Joshi S, Verma R, Lali AM, Gantayet LM. Effect of gamma radiation on organic ion exchangers. Radiat Phys Chem. 2010 Jan;79(1):41–5.



Obrázek 2: Identifikace látek - chromatogramy katexu a anexu před a po ozařování

Poděkování

This project has received funding from the Euratom research and training programme 2014 - 2018 under grant agreement No 661880.

The presented work was financially supported by the Ministry of Education, Youth and Sport Czech Republic Project LQ1603 (Research for SUSEN). This work has been realized within the SUSEN Project (established in the framework of the European Regional Development Fund (ERDF) in project CZ.1.05/2.1.00/03.0108).