

Likvidace radiačně kontaminované biomasy po havárii JE-distribuce v krajině, logistika sklizně, využití bioplynovou technologií



Projekt: MV VI2017202009 Trvání: 2017 - 2020

ENKI, o.p.s.: J. Pokorný, P. Hesslerová, M. Kajan, L. Kröpfelová, L. Pechar

ČZU: E. Pecharová, I. Kašparová, D. Komínková, V. Zdražil

JU ČB: J. Procházka, J. Brom, V. Nedbal, M. Musil, K. Křováková

SÚRO, v.v.i. : J. Škrkal, P. Rulík, V. Záhorová



MINISTERSTVO VNITRA
ČESKÉ REPUBLIKY



Jihočeská univerzita
v Českých Budějovicích
University of South Bohemia
in České Budějovice



Úvod

Radiační havárie během vegetační sezóny

Následky:

kontaminace rozsáhlých zemědělských ploch

kontaminovaná biomasa vyloučená ze spotřeby



Využití zasažené biomasy

Bioplynové stanice – zdroj tepla a elektrické energie

Byly provedeny testy

- **laboratorní poloprovozní experiment – modelová bioplynová stanice o objemu 20 L**
- **provozní testy – jihočeská komerční BPS o elektrickém výkonu 1MW**

Vypracována „**Ověřená technologie**“

Principy zpracování biomasy v BPS

Anaerobní fermentace (metanizace, digesce) je soubor procesů, při nichž mikroorganismy postupně rozkládají biologicky rozložitelnou organickou hmotu bez přístupu vzduchu.

Produkty:

- **Bioplyn** – metan (40 – 80 objemových %), oxid uhličitý, H_2 , N_2 , H_2S
- **Digestát** – fermentační zbytek tvořený nerozloženou resp. částečně rozloženou biomasou a narostlou mikrobiální biomasou.

Energetická bilance:

- 90 % energie získané mikrobiálním rozkladem je transformováno do bioplynu (metanu),
- 5 % je využito k růstu mikrobiální biomasy
- 5 % se disipuje jako reakční teplo

Faktory ovlivňující proces anaerobní fermentace: teplota – mezofilní reaktory 35 až 43°C; pH – optimálně 6,5-7,5; nutrienty (N, P); mikronutrienty (Na, K, Ca, Fe, S, Mg, Se, W); růstové faktory; toxické a inhibující látky (mastné kyseliny a amoniak); technologické faktory – nejdůležitější je míchání a doba zdržení (minimálně 20 až 40 dní)

Příprava a uložení biomasy: silážování, silážní žlaby

Fermentační reaktory: fermentory

Uložení digestátu: skladovací nádrže – vyvážení



Laboratorní experimenty

Příprava kontaminované travní a kukuřičné siláže

- mikrosilážní nádoby o objemu cca 8 l
- rozprašování roztoku ^{134}Cs o aktivitě 3 kBq/l resp. 4,1 kBq/l.



Fermentace

20 l vsádkový fermentor vyhříváný dnem s termoregulací, míchání, 200 l vak na bioplyn

Postup

Fermentor plněn: inokulem, kukuřičnou nebo travní siláží a teplou vodou na objem přibližně 20 l

Odebráno: několik vzorků siláže ke stanovení aktivity ^{134}Cs a sušiny

Nastaveno: přerušované míchání, vyhřívání na cca. 40 °C

Jímání bioplynu: přes probublávačku 200 l vakem

Průtok měřen: při experimentech 4 – 6 odměrným válcem

Laboratorní experimenty – přehled

exp.	interval	délka	inokulát	biomasa	kont. roztok
		den	základ		kBq
1	16.8. – 23.10.18	68	KS	KS nekont.	
2	23.10.18 – 14.1.19	83	řepa	KS + ^{134}Cs	
3	26.2. – 14.5.19	77	KS	TS + ^{134}Cs	
4	28.5. – 12.7.19	45	KS	TS + ^{134}Cs	
5	27.8. – 12.12.19	107	KS	KS nekont.	~20
6	19.5. – 13.8.20	86	KS	KS nekont.	192,2

Poznámky k tabulce: KS nekont. – nekontaminovaná kukuřičná siláž, KS/TS + ^{134}Cs – kontaminovaná kukuřičná/travní siláž, TS kont. – kontaminovaná travní siláž; délka – od počátku do ukončení experimentu

Dále odebráno

- několik 200 ml vzorků digestátu
- časového vývoje aktivity ^{134}Cs během exp. č. 5 a 6 s časovým odstupem 200 ml digestátu

Provedena separace digestátu

- analytickým sítem s čtvercovými oky o rozměrech 1 mm.
- Vznikly frakce: separát, fugát
- Odebrány vzorky pro stanovení ^{134}Cs .

Hmotnostní aktivita

- ^{134}Cs
- HPGe detektory
- energie 605 a 796 keV (^{134}Cs)



Laboratorní experimenty – bilance

Nativní aktivita

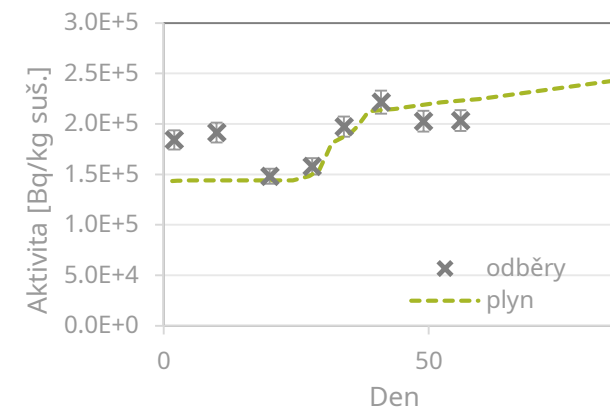
- Snížení o 1,2 – 21 % v průměru o 8,3 %,

Aktivita na sušinu

- Zvýšení o 28 – 75 % v průměru o 46,3 %
- v souladu s bilancí suché hmoty – úbytek 43 % suché hmoty.

exp. č.	vsádka	vstupy		výstupy	Δ dig - směs.
		siláž	směs	digestát	
		Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	%
2	KS	90,5	16,0	15,8	-1,2
3	TS	187,3	28,3	22,4	-21
4	TS	299	46,5	45,1	-3,0
5	KS	5612	1229	1123	-8,6
6	KS	75270	9910	9157	-7,6
AP					-8,3
Min.		91	16	16	-21
Max.		75270	9910	9157	-1,2

Exp. 6 – experimentální hodnoty proložené hodnotami vypočtenými z celkové vložené aktivity, hmotnosti sušiny směsi na počátku experimentu a kumulativní hmotnosti bioplynu



Vývoj bioplynu během experimentů nebyl rovnoměrný, byl charakteristický několika maximy

exp. č.	vsádka	vstupy		výstupy	Δ dig - směs.
		siláž	směs	digestát	
		Bq/kg	Bq/kg	Bq/kg	%
2	KS	2,62E+2	1,60E+2	2,23E+2	39,1
3	TS	5,93E+2	3,99E+2	5,12E+2	28,4
4	TS	9,48E+2	6,61E+2	1,16E+3	75,8
5	KS	1,84E+4	1,47E+4	2,28E+4	54,9
6	KS	1,91E+5	1,84E+5	2,46E+5	33,4
AP					46,3
Min.		2,62E+2	1,60E+2	2,23E+2	28,4
Max.		1,91E+5	1,84E+5	2,46E+5	75,8

Poznámka: Směs – získaná spojením všech surovin

Provozní testy – 1 MW komerční BPS

Jižní Čechy, 2 silážní žlaby, 2 fermentory, postfermentor, 2 sklady, 2 kogenerační jednotky

Odběry

Vstupy: kukuřičná, travní a celozrnná (GPS) siláž, pšenice;

Výstupy: digestát, aerosolové filtry

Období: březen 2017 – květen 2020

Četnost: měsíčně 3 L/vzorek; aerosoly – 6 ks

Místa odběru: silážní žlaby; postfermentor; kogenerační jednotky (175 kW a 896 kW)

Měření ^{137}Cs

HPGe detektory

Forma: nativní nebo sušená

Geometrie: 3 litrová Marinelliho nádoba; mastůvka 200 ml

Analyzovány energie: 662 keV (^{137}Cs)

Statistické vyhodnocení

Program R(x) (R Development Core Team, 2011)

Výpočet založen: na předpokladu log-normálního rozložení změřených hmotnostních aktivit;



Provozní testy – Bilance hmoty

Složka	Hmotnost
	t
Kukuřičná siláž	44986
Travní siláž	4004
GPS	2375
Pšenice	368
Ostatní (soda, mikroprvky, močovina)	33,2
Voda	9023
Σ vstupy	60790
Výstupy	
Digestát	49160
Bioplyn	18472
Σ výstupy	67632

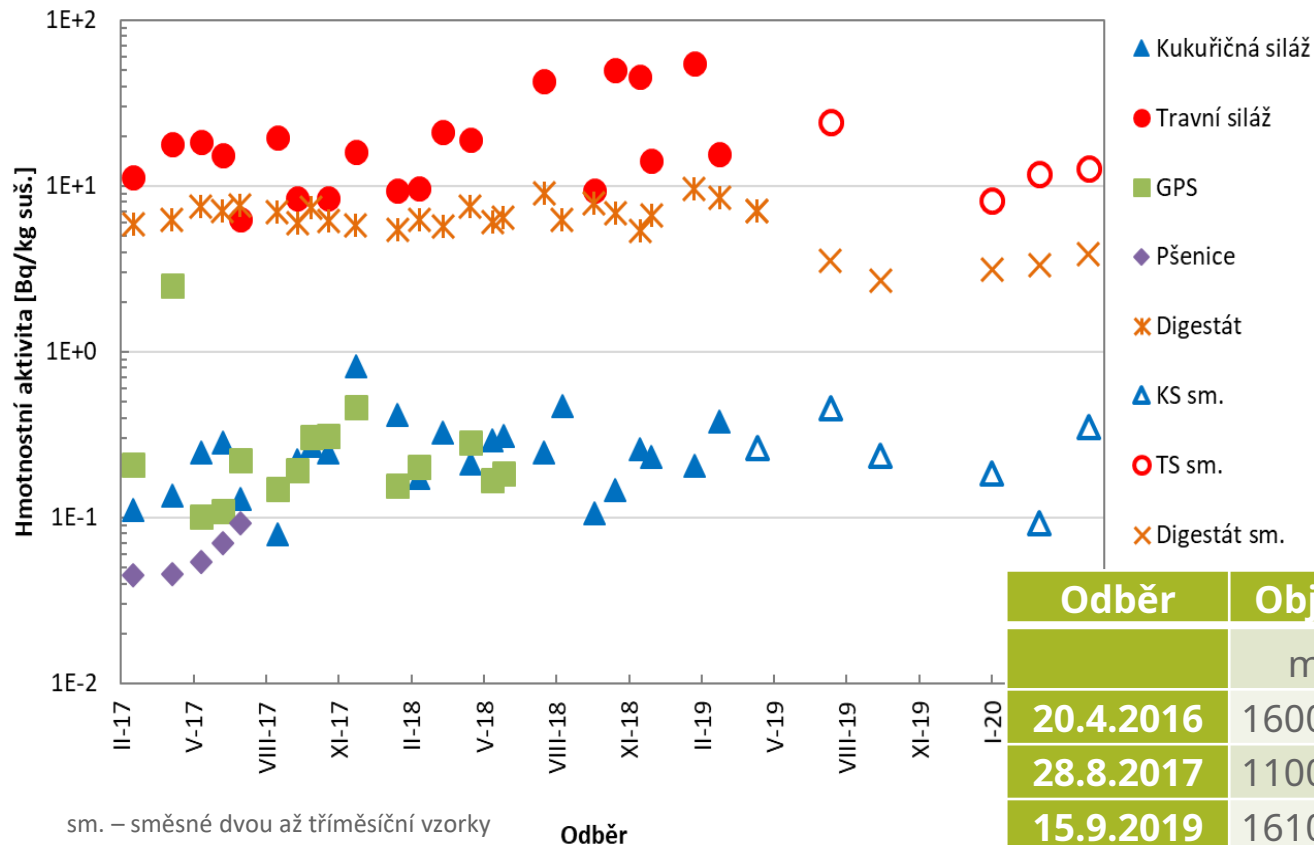
Nativní hmotnost

- Průměrná měsíční hmotnost vsádky činila 1520 t (tedy asi 50 t denně) a z toho 15 % představovala přidaná voda.
- Z bilanční vyplývá, nižší hmotnost vstupů o 11 %.
- Nejvyšší rozdíl 20 % byl v roce 2017 naopak nejnižší 6 % v roce 2020.

Sušina

- Vyprodukováno 23 tis. t suš. produktů: 4,1 tis. t suš. digestátu a 18 tis. t bioplynu -> množství kontaminované sušiny biomasy se snížilo 5 ×

Provozní testy – aktivity ^{137}Cs



Aerosol

Korekce pronikavosti: objemové aktivity vynásobena faktorem 10

Aktivita: 0,11 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ a nižší

Dekontaminační faktor (DF) procesu přeměny biomasy na bioplyn: ^{137}Cs – 6,9E6

Analyzováno 29 vzorků kukuřičné siláže a digestátu, 23 vzorků travních siláží, 15 vzorků GPS a 5 vzorků pšenice 6 aerosolových filtrů

Odběr	Objem	Kogen.	MVA	Cs-137	KSN	K-40	KSN
	m ³	kW		Bq/m ³	Bq/m ³	Bq/m ³	Bq/m ³
20.4.2016	1600000	175		1,1E-7	2,2E-8	5,1E-6	8,1E-7
28.8.2017	1100000	175		8,8E-8	2,0E-8	1,6E-5	1,8E-6
15.9.2019	1610000	175	<	1,5E-7		2,6E-6	8,7E-7
15.9.2019	3700000	896	<	8,6E-8		9,2E-7	4,1E-7
10.7.2020	570000	175	<	2,3E-7		8,9E-6	2,3E-6
12.8.2020	2677200	896	<	4,9E-8		1,3E-6	4,1E-7
AP				9,8E-8		5,9E-6	6,0E-6
GP						3,6E-6	

Provozní testy – Bilance nativní aktivity ¹³⁷Cs

		KS	TS	GPS	Pšenice	Vstupy	Digestát
GP	Bq/kg n.	0,088	5,6	0,06	0,051		0,505
GSD		1,74	1,77	1,59	1,42		1,35
Množství	t n.	4,5E+4	4,0E+3	2,4E+3	3,7E+2	5,2E+4	4,9E+4
Σ A (GP)	Bq	3,94E+6	2,25E+7	1,43E+5	1,87E+4	2,66E+7	2,48E+7
Δ (GP)	%	-6,7					
AP	Bq/kg n.	0,102	6,61	0,067	0,054		0,529
Σ A (AP)	Bq	4,59E+6	2,65E+7	1,59E+5	1,98E+4	3,12E+7	2,60E+7
Δ (AP)	%	-16,8					
GP/GSD	Bq/kg n.	0,050	3,18	0,038	0,036		0,374
GP*GSD	Bq/kg n.	0,152	9,93	0,096	0,072		0,682
Dolní mez	Bq	2,3E+6	1,3E+7	9,0E+4	1,3E+4	1,5E+7	1,8E+7
Horní mez	Bq	6,9E+6	4,0E+7	2,3E+5	2,7E+4	4,7E+7	3,4E+7

Poznámky: Σ A (GP/AP) – sumární aktivita za celé období; Δ (GP/AP) = (digestát - vstupy)/vstupy; Dolní mez = GP/GSD*Množství; Horní mez = GP*GSD*Množství; použity nativní aktivity

Celková aktivita:

vstupy – 26,6 MBq

výstupy (digestát, aerosol) – 24,8 MBq

Příčina 6,7 % rozdílu: nejistota stanovení průměrné hodnoty aktivity ¹³⁷Cs především v travní ale i v kukuřičné siláži, kde rozpětí aktivit dosahovalo až jeden řád.

Aerosol:

(13,8 mil. Nm³) bioplynu × (1E-7 Bq/m³) → odešlo méně než 1 Bq ¹³⁷Cs a obsah ¹³⁷Cs v aerosolu je zanedbatelný.

Interval spolehlivosti (GP/GSD – GP*GSD)

digestát: 0,374 – 0,682 Bq/kg => rozpětí hodnot 18 – 33 MBq

vstupy: 15 – 47 MBq

Obsah ¹³⁷Cs ve vstupních a výstupních surovinách můžeme v rámci nejistoty prohlásit za stejný.

Provozní testy – Bilance aktivity ^{137}Cs na sušinu

	A(GP)	Množství	Podíl	Σ A (GP)	Sušina	A(GP)	Množství	Podíl
	Bq/kg n.	t n.	%	Bq	%	Bq/kg s.	t s.	%
KS	0,088	4,5E+4	74,0	3,94E+6	37,8	0,231	1,7E+4	87,4
TS	5,6	4,0E+3	6,6	2,25E+7	34,8	16,2	1,4E+3	7,2
GPS	0,06	2,4E+3	3,9	1,43E+5	29,7	0,203	7,0E+2	3,6
Pšenice	0,051	3,7E+2	0,6	1,87E+4	86,1	0,059	3,2E+2	1,6
Soda		8,6E+0	0,014		100,0		8,6E+0	0,044
Mikroprvky		2,4E+1	0,039		100,0		2,4E+1	0,123
Močovina			0,001					0,003
		6,5E-1	1		100,0		6,5E-1	3
Voda		9,0E+3	14,8		0,0		0,0E+0	0,0
Vstupy	0,438	6,08E+4		2,66E+7	38,2	1,37	1,9E+4	
Digestát	0,505	4,9E+4	72,7	2,48E+7	8,41	6,01	4,1E+3	18,3
Bioplyn	7,5E-8	1,8E+4	27,3	1,38E+0	100	7,5E-08	1,8E+4	81,7
Výstupy		6,76E+4		2,48E+7		1,10	2,3E+4	

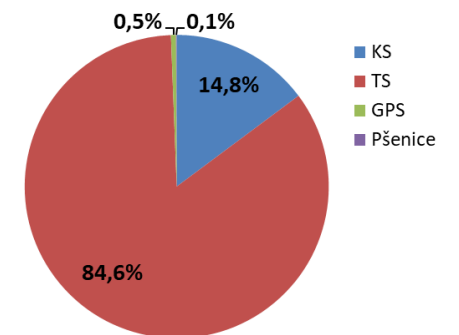
Poznámky: A(GP) – geometrický průměr aktivity vztažený na nativní (n.) nebo suchou (s.) hmotnost; Σ A (GP) – celková aktivita; Podíl – relativní hmotnostní podíl k celkové hmotnosti vstupů resp. výstupů

Průměrná aktivita

- biomasa – 1,37 Bq/kg
- digestát – 6,01 Bq/kg)
- digestát / biomasa = 4,4

Bioplyn tedy představuje asi 4/5 celkové suché hmoty.

Travní siláž – hlavní zdroj ^{137}Cs v digestátu



Vnitřní ozáření

úvazek efektivní dávky, veřejnost

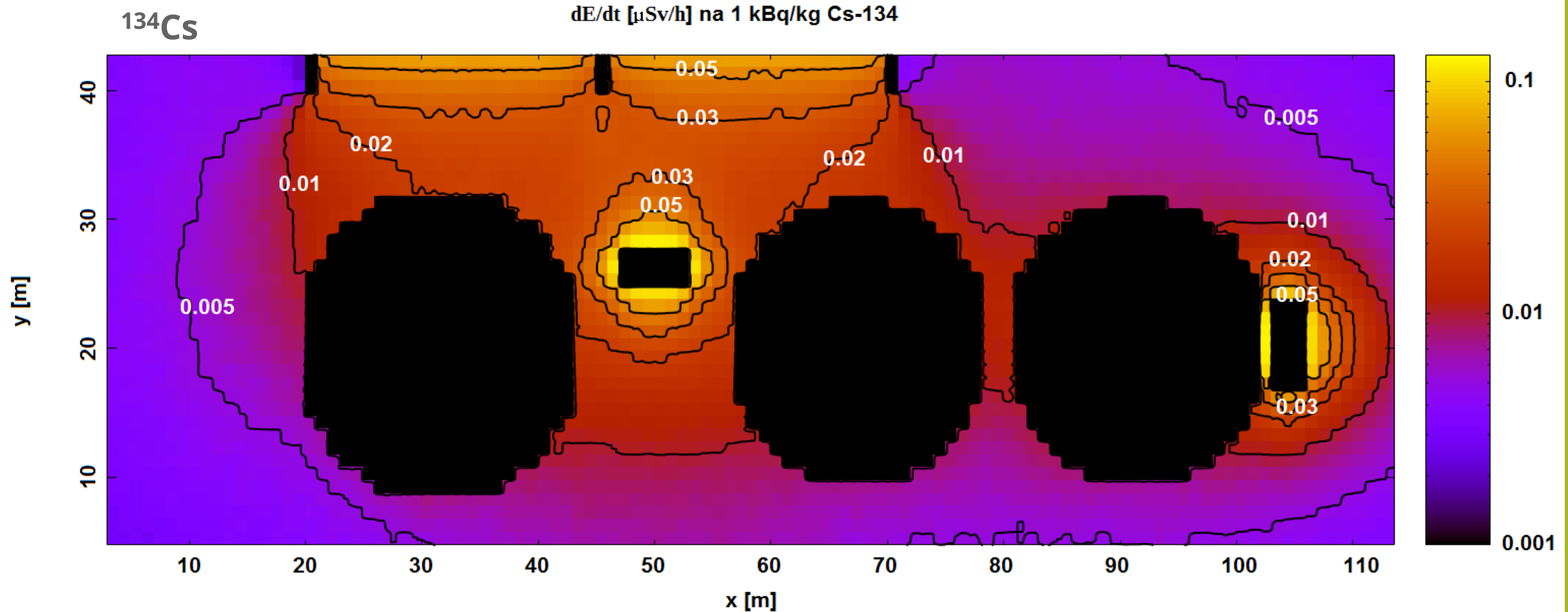
		Doba	Obecné					
Nuklid		h	¹³⁷ Cs (1 kBq/kg)			¹³⁴ Cs (1 kBq/kg)		
typ			F	M	S	F	M	S
f1			1	0.2	0.01	1	0.1	0.01
hinh	Sv/Bq		4,6E-9	9,7E-9	3,9E-8	6,6E-9	9,1E-9	2,0E-8
A	μSv/r	547.5	0,73	1,5	6,2	0,9	1,2	2,7
B	μSv/r	182.5	0,24	0,51	2,1	0,3	0,41	0,91
C	μSv/r	182.5	0,12	0,26	1,0	0,15	0,21	0,46
D	μSv/r	182.5	0,061	0,13	0,52	0,075	0,1	0,23
Celkem	μSv/r		1,2	2,4	9,8	1,4	2.0	4,3

A) Plnění meziskladů; B) Úklid; C) Vizuální kontrola a údržba; D) Pobyt v místnostech

84 % dávky připadá na A + B

Vnější ozáření – výpočet

- MCNPX, ověření geometrického modelu – program Vised.



Vnější + Vnitřní ozáření

- Externí / interní (aktivita 1 kBq/kg)
 - ^{137}Cs : $2,5\text{E-}5 / 9,8\text{E-}6 = 2,4$ x vyšší
 - ^{134}Cs : $6,6\text{E-}5 / 4,3\text{E-}6 = 20$ x vyšší
- Aktivity pod 1 mSv/rok: kBq/kg až desítky kBq/kg
- Nejvýznamnější zdroje: žlaby, zásobníky

Opatření pro zvýšení odvozených limitních hodnot

1. **“Scénář 1” – stínění, ochrana dýchacích cest, kamerový systém, atd.:**
1 mSv/rok ~ 76 kBq/kg $^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$ (rovnoměrné zastoupení); 20 mSv/rok $\sim 1,6$ MBq/kg $^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$.
2. **“Scénář 2”, – dálkové ovládání, robotickou kontrolu a kamerový systém:** 1 mSv/rok ~ 300 kBq/kg $^{134}\text{Cs} + ^{137}\text{Cs}$; 20 mSv/rok \sim jednotky MBq/kg.

Zpracování digestátu

- Bylo řešeno jen částečně
- Nezbytná je separace pevné a kapalné fáze např. dekantací centrifugou.
 - Pevná složka (asi 30 % sušiny) vyžaduje sušení případně spálení ve spalovně
 - Kapalná složka (< 3 % sušiny) vyžaduje další dočištění → kombinace filtračních metod, flokulace a koagulace
 - Odstranění cesia konvenčními separačními metodami nebo například využití kořenové čistírny.
- Uložení pevných částí v dlouhodobém úložišti.
- Zjednodušení celého postupu – evaporační metody – vysoký DF ale velké energetické náklady (mohou být pokryty elektrickou produkcí BPS – 1 MW BPS produkuje 29 TJ tepla a 29 TJ el. energie ročně)

Závěry

- Aktivita ^{134}Cs v sušině digestátu se v modelové BPS zvýšila průměrně o 46 % což odpovídá redukci suché hmoty o 43 %
- Došlo ke 4,4 násobnému zvýšení aktivity ^{137}Cs v digestátu vůči aktivitě vstupních surovin v komerční BPS, což vede k významné 80% redukci množství biomasy a také zajišťuje stabilitu odpadu.
- Během procesu anaerobní digesce je surový materiál promícháván a homogenizován. (Travní siláž, která představuje 6,6 % hmoty vstupů přispěla 85 % celkové aktivity.) Je nezbytné materiály na vstupu do BPS třídit v závislosti na úrovni kontaminace.
- Dekontaminační faktorem $6,9\text{E}6$ může být zvýšen až o dva řády využitím účinnějších filtru.
- Nevýhodou je nutnost stabilizace nebo přepracování digestátu, což zvyšuje náklady celého procesu.

Další výhody:

- relativně rychlá konzervace a uskladnění velkého množství biomasy v silážních žlabech bioplynových stanic,
- možnost využití elektrické energie a tepla vyrobených z bioplynu k výrazné redukci objemu a hmotnosti digestátu,
- zachování zemědělské produkce v kontaminované lokalitě.

Děkuji za pozornost