

4. Danielson L. Electron reflection from cesium-coated polycrystalline metals at low primary energies. — J. Appl. Phys., 1981, v. 52, p. 300.
5. Gunther B., Lieb D., Richmond C., Ruff F. Summary Report on Oxygen Additives. ThermoElectron Corp. № TE 4166-6-74, 1974, USA.

Поступила в Редакцию 24.03.2000

УДК 621.039.519

РАДИАЦИОННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА И ОТХОДОВ ПРИ НЕВОДНЫХ МЕТОДАХ ПЕРЕРАБОТКИ

*Адамов Е.О., Габараев Б.А., Ганев И.Х., Лопаткин А.В.,
Муратов В.Г., Орлов В.В. (НИКИЭТ)*

В дополнение к традиционно рассматриваемому замкнутому ядерному топливному циклу, ориентированному на извлечение из отработавшего топлива плутония и его возврат в ЯТЦ, трансмутационный решает задачу достижения баланса биологической опасности отходов и извлеченного из недр сырьевого материала. Трансмутационный ЯТЦ включает дополнительные операции совместного извлечения с ураном при его добыче радия и тория — долгоживущих членов радиоактивного семейства урана с их трансмутацией, длительную контролируруемую выдержку отходов перед окончательным захоронением либо захоронение без выдержки с отложенным достижением радиационного баланса уже захороненных отходов, трансмутацию Am, Cm, возможно, Np и долгоживущих продуктов деления, рецикл конструкционных материалов, извлечение стронция и цезия для полезного использования [1]. Новое поколение быстрых реакторов с полным воспроизводством плутония в активной зоне (КВА ~ 1) и не имеющих урансодержащих экранов позволяет реализовать принцип нераспространения плутония за счет исключения разделения урана и плутония на всех стадиях радиохимического передела отработавшего топлива, поскольку технической необходимости в таком разделении нет. Их топливный цикл может реализовать и идею достижения радиационного баланса между захораниваемыми долгоживущими компонентами отходов и потребляемым природным ураном. Исследования показали, что для достижения этой цели достаточно такой регенерации отработавшего топлива, при которой при выделении элементов в отходы направлялось не более 0,1% актиноидов, 1—10% — продуктов деления, Sr, Cs, I, Tc, Np, Cm. Время выдержки ТВС перед переработкой 1 год. Нептуний должен направляться в отходы с доведением до безопасной концентрации или на хранение для последующего использования, кюриум — для вне реакторной выдержки в течение 70—100 лет с последующим возвращением в реактор его долгоживущих изотопов и плутония — продукта распада короткоживущих.

В настоящее время изучается возможность удовлетворения перечисленным требованиям водной технологии, технологии расплавов фторидных солей, газотворидной, электролиза хлоридных или фторидных солей, металлургической и др. Разработаны принципиальные схемы каждой технологии, получены предварительные оценки возможности очистки топлива от продуктов деления и фракционирования отходов. В работе [2] показано, что каждая из них в большей или меньшей степени удовлетворяет поставленным требованиям.

Существенным моментом любой технологии переработки топлива является требование экономической эффективности при размещении производства на АЭС для обслуживания энергоблоков данной АЭС в целях исключения дальних перевозок топлива и высокоактивных веществ, а также внешних по отношению к АЭС хранилищ свежего и отработавшего топлива.

В отраслевой программе [3] выдвинуты следующие требования к радиохимической технологии:

уран и плутоний не должны разделяться на всех стадиях регенерации, при этом атомарное содержание плутония в смеси актиноидов в технологических процессах не должно превышать 25%;

остаток продуктов деления в регенерированном топливе может составлять 0,1—10% по массе;

в процессе регенерации топлива америций не должен отделяться от урана и плутония. Если в технологических процессах америций отделяется, то на заключительных стадиях он должен быть возвращен в свежее топливо;

в процессе регенерации из отработавшего топлива должны выделяться в отдельные фракции для последующей выдержки в хранилище не менее 90% кюрия и нептуния, не менее 99% стронция, цезия, не менее 95% иода и технеция;

в безвозвратные отходы, которые в последующем выдерживаются и захораниваются, не должно направляться более 0,1% по массе урана, плутония, америция и кюрия, 1—5% по массе цезия, стронция, технеция и иода;

все остальные продукты деления и актиноиды направляются в отходы;

атомарное содержание долгоживущих α -излучателей в выделенных для хранения фракциях стронция, цезия, иода и технеция не должно превышать 0,1%;

все фракции отходов должны быть в твердой форме и иметь малый объем;

для выделяющихся в процессе регенерации радиоактивных газов должны быть предложены способы улавливания и хранения;

предпочтительно, чтобы после радиохимической регенерации смесь актиноидов имела бы форму нитридов или металла.

Радиохимическая технология одна от другой отличается степенью очистки топлива от продуктов деления, а также степенью разделения актиноидов. Требованиями к радиохимической технологии допускается остаток в регенерированном топливе до 10% образовавшихся при облучении продуктов деления. По каждой технологии в топливе остается свой набор нуклидов — актиноидов и продуктов деления. При многократном облучении оставшиеся продукты деления и актиноиды могут стать источником накопления в топливе долгоживущих радионуклидов и как следствие повышенной долговременной активности направляемых на захоронение отходов.

Расчетное моделирование рецикла топлива в замкнутом топливном цикле реактора БРЕСТ-1200 с заданными остатками продуктов деления и актиноидов в топливе после регенерации проводили в два этапа:

по программе MCNP-4B [4] в трехмерной модели реактора рассчитывали спектр нейтронов в топливе;

по программе UCDAS, используя расчетный спектр, моделировали рецикл топлива с заданным фракционированием топлива при переработке, некоторые расчеты дублировали по программе FISPACT [5].

При моделировании рецикла рассмотрены 12 циклов обращения топлива, гарантирующих выход на равновесие концентрации рециклируемых нуклидов в топливе и состоящих из следующих этапов: облучение в реакторе в течение 5 лет, выдержка в течение 1 года, радиохимическая переработка с заданным фракционированием без учета ее длительности и длительности хранения перед облучением. Исходные данные для четырех сценариев рецикла приведены в табл. 1.

Вариант 1 (базовый) — при переработке в свежем топливе остается 99,9% U, Pu, Am, выделяется 99,9% Cm для выдержки до распада в плутоний и возвращения в цикл и 95% Cs, Sr, Tc, I для различных целей, не выделяются Np, Th, Pa, Bk, Cf и основная часть продуктов деления, проводится дозагрузка отвалного урана (0,3% ^{235}U), и цикл повторяется заново. На каждом шаге рециклирования формируются отходы переработки отработавшего топлива для полученной композиции свежего топ-

Т а б л и ц а 1. Содержание элементов в отходах и топливе (предварительная оценка)

Элемент	Базовый вариант № 1			Электролиз хлоридных солей № 2 (технология ВНИИНМ)		
	Извлечение из отработавшего топлива, %	Наличие в свежем топливе, %	Поступление в отходы, %	Извлечение из отработавшего топлива, %	Наличие в свежем топливе, %	Поступление в отходы, %
U, Pu, Am	99,9	99,9	0,1	99,9	99,9	0,1
Cm	99,9 ³	99,9 ⁴	0,1	99,9 ³	99,9 ⁴	0,1
Набор 1 ¹	0	0	100	0	0	100
Sr, Cs	95 ⁵	0	5	95 ⁵	0	5
Tc	95 ⁶	0	5	95 ⁶	0	5
I	95 ⁶	0	5	95 ⁶	0	5
Набор 2	0	0	100	10	10	90
Газофторидная технология № 3 (РНЦ «Курчатовский ин-т»)				Металлургическая переработка № 4		
Tc	95 ⁶	0	5	5 ⁶	5	95
I	95 ⁶	0	5	95 ⁶	0	5
Ce—Lu ²	0	0	100	0	0	100
Ru, Mo	100 ⁷	100	0	5 ⁷	5	95
Zr	0	0	100	5 ⁷	5	95
Остальные продукты деления	0	0	100	0	0	100

¹Набор 1 — Np, Th, Pa, Bk, Cf, набор 2 — Ce—Lu², Ru, Mo, Zr, остальные продукты деления. ²Ce—Lu — Ce, Pr, Nb, Pm, Eu, Sm, Gd, Tb, Dy, Er, Tm, Yb, Lu. ³Cm выделяется для контролируемого хранения в течение 100 лет. ⁴Cm и продукт его распада Pu возвращаются после хранения в топливный цикл. ⁵Sr и Cs выделяются для полезного использования или контролируемого хранения. ⁶Tc и I выделяются для трансмутации или контролируемого хранения. ⁷Ru, Mo извлекаются попутно с твэлами. Данные об U, Pu, Am, Cm, Np, Th, Pa, Bk, Cf, Sr, Cs в вариантах № 3, 4 совпадают с базовым.

лива, которые имеют следующий состав, %: U, Pu, Am, Cm 0,1, Np, Th, Pa, Bk, Cf 100, Cs, Sr, Tc, I 5 (95% Cs и Sr направляются на хранение или полезное использование, 95% Tc и I — на хранение или для трансмутации) и 100% остальных продуктов деления. После выхода состава топлива на равновесие рассчитывается потенциальная биологическая опасность отходов и рециклируемого топлива. Все перечисленные численные значения и операции базового варианта сохраняются в последующих вариантах переработки.

Вариант 2 (электролиз хлоридных солей с восстановлением до металла [2]) — не выделяется из отработавшего топлива и поступает в отходы 90% Ce, Pr, Nb, Pm, Eu, Sm, Gd, Tb, Dy, Er, Tm, Yb, Lu (10% уходит попутно с извлекаемыми актиноидами и остается в свежем топливе).

Вариант 3 (газофторидная технология [2]) — извлекаются попутно с элементами топлива и остаются в свежем топливе полностью рутений, молибден, не выделяются все остальные продукты деления.

Вариант 4 (металлургическая переработка без разрушения нитридов актиноидов [2]) — после переработки в свежем топливе остается 5% Zr, Mo, Tc, Ru, на каждом шаге рециклирования формируются отходы для полученной композиции свежего топлива, которые включают также 95% Zr, Mo, Tc, Ru.

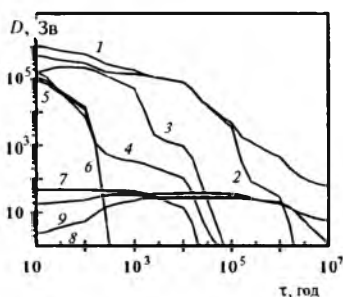
Следует еще раз отметить, что данные об очистке топлива и фракционировании отходов представляют собой предварительные оценки и в дальнейшем будут уточняться. Однако масштаб показателей позволяет рассчитать радиационный баланс топливного цикла и высказать рекомендации по совершенствованию каждой технологии.

Используемая категория потенциальной биологической опасности, или потенциальной коллективной дозы (D) определяется суммой произведений активности A_i (Бк) нуклидов из числа высокоактивных отходов топлива или сырья на их дозовые коэффициенты E_i (Зв/Бк) [6]:

$$D_{\text{BAO}} = \sum A_{\text{BAO}, i} E_{\text{BAO}, i}; D_{\text{У пр}} = A_{^{238}\text{U}} (\sum E_j); D_{\text{T}} = \sum A_{\text{T}, i} E_{\text{T}, i},$$

где индекс j описывает 14 распадов членов радиоактивного семейства ^{238}U .

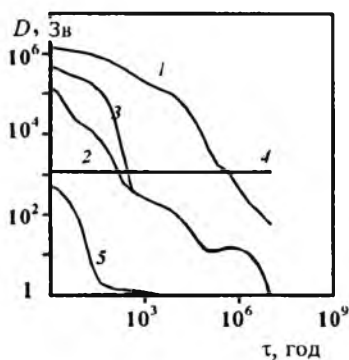
Для базового варианта рассчитано снижение радиоактивности отработавшего топлива и отходов. Предполагалось, что реактор работает в равновесном режиме с рециркуляцией урана, плутония и америция и подпитывается отвальным ураном. Энергетический плутоний ВВЭР направляется на первые загрузки вновь вводимых реакторов БРЕСТ. Кюрий выдерживается примерно 100 лет до распада $^{243,244}\text{Cm}$ в изотопы плутония, образовавшаяся смесь плутония и остатков кюрия возвращается в топливный цикл БРЕСТ. Вклад отдельных элементов в потенциальную биологическую опасность (коллективную дозу D при потреблении с пищей) показан на рис. 1.



Р и с. 1. Вклад отдельных элементов в потенциальную биологическую опасность (дозу) в базовом варианте отработавшего топлива реактора БРЕСТ-1200 при нормировке на 1 кг актиноидов или 1,06 кг нитридного топлива: 1 — отработавшее топливо; 2 — плутоний; 3 — америций; 4 — кюрий; 5 — $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$; 6 — $^{137}\text{Cs} + ^{137\text{m}}\text{Ba}$; 7 — ^{14}C ; 8 — ^{237}Np ; 9 — уран

В интервале времени выдержки $40\text{—}10^3$ лет потенциальная опасность отработавшего топлива реактора БРЕСТ определяется плутонием и америцием, $10^3\text{—}10^5$ лет — плутонием, $10^5\text{—}10^7$ лет — продуктами распада цепочки $^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{Pa} \rightarrow ^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th} \rightarrow \dots$. Если организован описанный рецикл и в подлежащие захоронению отходы попадает 0,1% урана, плутония, америция и кюрия (основная масса этих актиноидов рециклируется и трансмутируется), 100% остальных актиноидов и 5% стронция, цезия, технеция и иода, а также все остальные продукты деления из имеющихся в отработавшем топливе, то радиационный баланс между радиоактивными отходами и использованным природным ураном достигается через 150 лет выдержки (рис. 2). Если же в отходы попадает 100% цезия и стронция, то радиационный баланс достигается через 300 лет. Время достижения определяется распадом цезия и стронция.

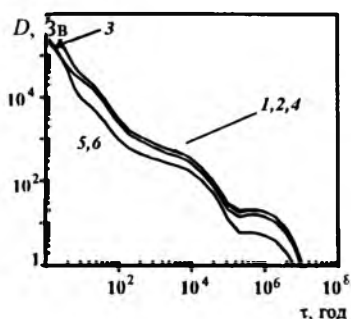
На рис. 2 биологическая опасность отходов сравнивается с опасностью 13,7 кг природного урана с учетом его радиоактивного семейства (т.е. в предположении, что совместно с ураном извлекается торий и радий, которые затем выжигаются в реакторах совместно с ураном). Эта масса природного урана необходима для производст-



Р и с. 2. Потенциальная биологическая опасность высокоактивных отходов реактора БРЕСТ-1200 (нормировано на 1 кг актиноидов и 132 г стали оболочек твэлов) следующего состава: 1 кг актиноидов + 132 г стали оболочек твэлов марки ЭП-823 (1); по 5% Sr, Cs, Tc, I + 100% других продуктов деления + по 0,1% U, Pu, Am, Cm + 100% Th, Pa, Np, Bk, Cf + 132 г стали (2), 100% продуктов деления + по 0,1% U, Pu, Am, Cm + 100% Th, Pa, Np, Bk, Cf + 132 г стали (3); 13,7 кг природного урана (4); 132 г стали оболочек твэлов (5)

ва в тепловом реакторе плутония для 1 кг топлива БРЕСТ-1200 первой загрузки, которую рециклировали 12 раз с выделением отходов в течение 60-летней работы реактора. Отходами теплового реактора в оценке баланса пренебрегли. Принятая для сравнения масса урана может быть принята на весь период предполагаемого развития реакторов БРЕСТ в 21-м веке. При выходе реакторов в стационарный режим работы необходимо в качестве критерия принимать 1 т природного урана, потребляемую реакторами для компенсации 1 т продуктов деления. При этом время достижения баланса увеличивается.

Потенциальная биологическая опасность радиоактивных отходов. Приведем результаты расчета потенциальной биологической опасности отходов (продуктов деления и актиноидов) для шести вариантов технологии регенерации отработавшего топлива реактора БРЕСТ. Рассмотрим близкий к равновесию состав топлива с учетом влияния на него особенностей радиохимической технологии (рис. 3, табл. 2).



Р и с. 3. Зависимость потенциальной биологической опасности отходов от времени выдержки при базовой технологии регенерации (1), электролизе хлоридных солей (2), газофторидной (3), металлургической технологии (4), газофторидной высокотемпературной (5), электролизе хлоридных солей по линекс-процессу (6)

Т а б л и ц а 2. Масса нуклида, отнесенная к электрической мощности 1 ГВт реактора БРЕСТ-1200, при стационарном составе топлива (после циклирования и выдержки), кг/ГВт

Нуклид	Вариант			
	№ 1	№ 2	№ 3	№ 4
^{90}Sr	44,9	44,9	41,4	44,9
^{137}Cs	130	130	120	130
^{99}Tc	94,2	94	109	97,9
^{129}I	15	15	14	15
$^{90-96}\text{Zr}$	366	367	339	383
$^{95-100}\text{Mo}$	366	365	2670	383
^{93}Mo	$1,08 \cdot 10^{-8}$	$1,08 \cdot 10^{-8}$	$7,3 \cdot 10^{-6}$	$1,47 \cdot 10^{-8}$
Ru	310	311	2110	326
^{103}Rh	99,3	99,2	141	99,6
$^{104-110}\text{Pd}$	176	176	198	176
^{130}Te	35,5	35,6	33,1	35,6
^{151}Sm	14	14,7	13	14
^{226}Ra	$1,63 \cdot 10^{-9}$	$1,63 \cdot 10^{-9}$	$1,82 \cdot 10^{-9}$	$1,64 \cdot 10^{-9}$
^{230}Th	$6,22 \cdot 10^{-5}$	$6,17 \cdot 10^{-5}$	$6,88 \cdot 10^{-5}$	$6,21 \cdot 10^{-5}$
^{231}Pa	$1,02 \cdot 10^{-6}$	$1,02 \cdot 10^{-6}$	$1,13 \cdot 10^{-6}$	$1,02 \cdot 10^{-6}$
^{232}U	$3,57 \cdot 10^{-5}$	$3,56 \cdot 10^{-5}$	$3,41 \cdot 10^{-5}$	$3,56 \cdot 10^{-5}$
^{238}U	35 700	35 600	31 900	35 600
$^{238-242}\text{Pu}$	6650	6630	6200	6640
^{237}Np	9,56	9,58	8,85	9,59
^{241}Am	79,9	79,8	80,4	79,9
^{242m}Am	14,6	14,6	15	14,6
^{243}Am	34,1	34,1	37	34,2
^{243}Cm	0,273	0,274	0,281	0,274
^{244}Cm	29,4	29,5	32,9	29,5
^{245}Cm	3,01	3	3,39	3
^{246}Cm	3,09	3,09	3,64	3,1

Почти совпадает биологическая опасность радиоактивных отходов по вариантам 1, 2, 4, снижается опасность по варианту 3 и дополнительным вариантам 5, 6. В случае высокотемпературной газотермической технологии (вариант 5) в отходы поступает, %: Sr, Cs, I 1, Sb 85, Ru 90, Nb, Zr 92, Tc, Mo 95, Ag, Ro 97, остальные продукты деления 100, U, Pu, Am, Cm, Np, Th, Pa, Bk, Cf — по варианту 1. В случае электролиза в хлоридных солях с восстановлением нитридного топлива по линекс-процессу (вариант 6) в отходы направляются, %: Sr, Cs 1, Ru, Ro, Pd, Ag, Tc, Mo, Zr, Nb 95, La, Ho, Ce—Lu (см. табл. 1) 97, остальные продукты деления 100, U, Pu, Am, Cm, Np, Th, Pa, Bk, Cf — по варианту 1.

Анализ показывает:

рецикл остатков редкоземельных элементов в топливе (вариант № 2) не приводит к повышению более чем на 20% их равновесной концентрации и почти не увеличивает накопление долгоживущих продуктов деления;

остаток в топливе при химической переработке 5% Zr, Mo, Tc, Ru (вариант № 4) также почти не изменяет потенциальную биологическую опасность радиоактивных отходов;

уменьшение доли стронция и цезия в отходах (варианты № 5, 6) снижает потенциальную опасность отходов;

если из топлива при химической переработке не выделяются рутений, молибден (вариант № 3), то к 12-му циклу их концентрация в топливе повышается примерно в 6 раз по сравнению с однократным облучением и составляет 8,4% по отношению к тяжелым атомам. В результате они вытесняют из топлива уран и плутоний, топливо становится непригодным для использования в реакторе БРЕСТ, так как нарушается необходимый уровень воспроизводства. Глубина выгорания топлива снижается на 25%, уменьшается и активность отходов (продуктов деления и актиноидов). Можно сделать вывод, что в рамках рассматриваемой технологии необходимо искать пути для выделения рутения и молибдена либо отказаться от данной (низкотемпературной газотермической) технологии.

Данные, касающиеся вклада нуклидов в потенциальную биологическую опасность отходов для различного времени выдержки отходов, получены для базового варианта переработки № 1.

В первые 30—40 лет выдержки преобладает вклад церия, рутения и $^{85}\text{Kг}$ в общую потенциальную биологическую опасность, в последующие 40 лет замечен вклад стронция и цезия, в интервале 100—300 лет — ^{241}Am . Далее до 200 тыс. лет на первом месте $^{239,240}\text{Pu}$, после этого (до 10 млн лет) — ^{229}Th ($T_{1/2} = 7300$ лет), являющийся продуктом распада цепочки $^{237}\text{Np} (\alpha) \rightarrow ^{233}\text{U} (\alpha) \rightarrow ^{229}\text{Th}$. На уровне вклада 1—10% в общую потенциальную биологическую опасность отходов заметны ^{238}Pu (89 лет), ^{221}Fr (4,8 мин), ^{237}Np , ^{225}Ra (14,8 сут), ^{233}U , ^{225}Ac (10 сут) и ^{222}Rn (3,8 сут). Естественно, что короткоживущие нуклиды находятся в вековом равновесии с родоначальниками радиоактивных рядов ^{232}U — ^{235}U .

Основной вклад в потенциальную биологическую опасность при выдержке 100 тыс. лет—10 млн лет вносят нуклиды из семейства ^{233}U , включая родоначальника семейства. В конце рассмотренного этапа выдержки на интервале 2—10 млн лет повышается вклад таких нуклидов, как ^{222}Rn , ^{227}Ac , ^{231}Pa и ^{236}U . Рост вклада этих нуклидов в общую биологическую опасность связан с распадом более тяжелых нуклидов и свидетельствует о большом промежутке времени, необходимом до полного распада всех тяжелых радионуклидов в стабильное состояние.

Вклад в потенциальную биологическую опасность таких актиноидов, как ^{244}Cm , $^{242\text{m}}, ^{243}\text{Am}$, незначителен, продуктов деления ^{129}I , ^{99}Tc — малозаметен, кроме вклада технеция в варианте металлургической переработки (№ 4), где в отходы направляется 100% технеция в отличие от 5% в остальных вариантах.

Вследствие подробного исследования с помощью программ UCDAС и FISPACT всех цепочек распада актиноидов в результатах расчета появились короткоживущие нуклиды, вносящие большой вклад в потенциальную биологическую опасность. Заметим, что ранее они приближенно учитывались в виде суммы распадов дочерних элементов, сопровождающих распад учитываемого родоначальника цепочки.

Сравним вклад ^{241}Am , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{229}Th , ^{221}Fr , ^{222}Rn (рис. 4) в потенциальную биологическую опасность при различных способах химической переработки топлива (варианты № 2—4). Видно почти полное совпадение результатов для базового и вариантов № 2—4 переработки. Наиболее заметным результатом является отсутствие ^{99}Tc в отходах в вариантах переработки № 1—3 и его наличие в отходах металлургической переработки (вариант № 4).

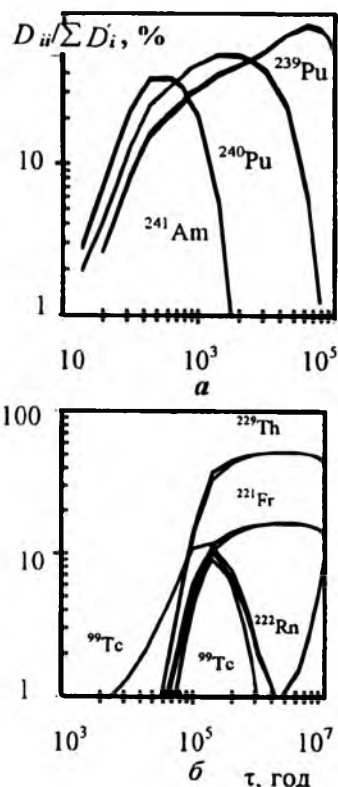
Масса нуклидов после 12 циклов и 1 года выдержки приведена в табл. 2 при нормировке на 1 ГВт. Результаты получены на основании данных о числе ядер в 1 кг топлива и с учетом массы тяжелых атомов в реакторе БРЕСТ-1200, равной 56,7 т (47,2 т/ГВт) при загрузке 60 т нитридного топлива [2].

По составу выделяется третий вариант переработки (газофторидная), по которому в топливе находится в 7 раз больше молибдена, рутения и заметно меньше урана (на 10%) и плутония (на 5%). Мало содержание в топливе реактора БРЕСТ-1200 ^{93}Mo (в варианте № 3 его относительно больше), ^{226}Ra , ^{230}Th , ^{231}Pa и ^{232}U .

Биологическая опасность природного урана. Усовершенствование в последнее время методического обеспечения и константной базы позволило по-новому оценить потенциальную биологическую опасность природного урана, используемую в качестве базовой характеристики при расчете радиационной эквивалентности. В настоящее время она оценивается с учетом индивидуальных дозовых факторов всех членов его радиоактивного семейства.

Начиная с ^{218}Po , цепочки распадов разветвляются. В табл. 3 приведены дозовые факторы E_i для нуклидов двух основных цепочек. Обе цепочки содержат по 14 радионуклидов. В состоянии векового равновесия при каждом распаде ^{238}U происходят распады всех нуклидов цепочки, каждый из которых вносит свой вклад в потенциальную биологическую опасность природного урана. Ранее считали, что активность ^{238}U повышалась в 14 раз по числу нуклидов в цепочке. Дозовый фактор для всех 14 распадов принимался равным дозовому фактору ^{238}U , так как в НРБ отсутствовали данные для всех нуклидов. Согласно настоящей оценке средний по всем 14 нуклидам дозовый фактор и потенциальная биологическая опасность семейства ^{238}U увеличились за счет ^{222}Rn в 6,3 раза. Это обстоятельство существенно облегчает достижение радиационного баланса. Баланс достигается за умеренное время выдержки 120—150 лет при потреблении 13,7 кг природного урана на 1 кг тяжелых атомов реактора БРЕСТ (см. рис. 2).

В заключение можно отметить следующее. Рассмотрено влияние новых требований к методам переработки отработавшего ядерного топлива, которые связаны с нераспространением делящихся материалов и достижением радиационного баланса между



Р и с. 4. Вклад i -го нуклида в потенциальную биологическую опасность отходов для вариантов переработки № 1—4 на начальном (а) и конечном этапе выдержки (б)

Т а б л и ц а 3. Дозовые факторы нуклидов при распаде ^{238}U [6]

Цепочка распада			
первая		вторая	
Нуклид	E_p , Зв/Бк	Нуклид	E_p , Зв/Бк
^{206}Tl	$8,2 \cdot 10^{-13}$	^{210}Po	$2,4 \cdot 10^{-7}$
^{210}Bi	$1,3 \cdot 10^{-9}$	^{210}Bi	$1,3 \cdot 10^{-9}$
^{210}Pb	$6,8 \cdot 10^{-7}$	^{210}Pb	$6,8 \cdot 10^{-7}$
^{210}Tl	$1,7 \cdot 10^{-12}$	^{214}Po	$3,2 \cdot 10^{-16}$
^{214}Bi	$1,1 \cdot 10^{-10}$	^{218}Rn	$4,7 \cdot 10^{-13}$
^{214}Pb	$1,4 \cdot 10^{-10}$	^{218}At	$2,1 \cdot 10^{-12}$
^{218}Po	$2,9 \cdot 10^{-10}$	^{218}Po	$2,9 \cdot 10^{-10}$
^{222}Rn	$2,5 \cdot 10^{-6}$	^{222}Rn	$2,5 \cdot 10^{-6}$
^{226}Ra	$2,8 \cdot 10^{-7}$	^{226}Ra	$2,8 \cdot 10^{-7}$
^{230}Th	$2,1 \cdot 10^{-7}$	^{230}Th	$2,1 \cdot 10^{-7}$
^{234}U	$4,9 \cdot 10^{-8}$	^{234}U	$4,9 \cdot 10^{-8}$
^{234}Pa	$5,1 \cdot 10^{-10}$	^{234}Pa	$5,1 \cdot 10^{-10}$
^{234}Th	$3,4 \cdot 10^{-9}$	^{234}Th	$3,4 \cdot 10^{-9}$
^{238}U	$4,4 \cdot 10^{-8}$	^{238}U	$4,4 \cdot 10^{-8}$
$\Sigma E(1-14)$	$3,77 \cdot 10^{-6}$		$4,01 \cdot 10^{-6}$
$\Sigma E(1-14)/14$	$3,89 \cdot 10^{-6}$		$3,89 \cdot 10^{-6}$
$\Sigma (E(1-14)/14)/E_{14}$	6,12		6,51

радиоактивными отходами и потребляемым природным ураном. При этом можно требовать достижения такого баланса на момент захоронения отходов. Тогда перед захоронением требуется их длительная (150—200 лет) контролируемая выдержка в специально построенных для этой цели хранилищах либо захоронение можно проводить и без предварительной выдержки с соблюдением санитарных норм, подразумевая при этом, что через исторически непродолжительный и поддающийся прогнозированию срок радиационный баланс будет достигнут.

Анализ проведен для всех нуклидов из числа актиноидов и продуктов деления. Показано, что основной вклад в потенциальную биологическую опасность топлива в интервале 40—1000 лет вносят плутоний и америций (см. рис. 1). Показано (см. рис. 2), что при контролируемой выдержке 120—150 лет возможно достижение баланса потенциальной биологической опасности природного урана и отходов при различном составе отходов.

Для базового, т.е. отвечающего принятым требованиям к радиохимической технологии и остальных вариантов переработки определен вклад отдельных нуклидов в потенциальную биологическую опасность отходов в зависимости от времени выдержки (см. рис. 4). При различных вариантах переработки вклад нуклидов продуктов деления в потенциальную биологическую опасность различается слабо. Вклад ^{99}Tc заметен только при металлургической переработке.

Представленные результаты показывают, что рассмотренные различия радиохимической технологии по фракционированию отходов и степени очистки топлива принципиально не сказываются на возможности достижения радиационного баланса. Указанный баланс, и это еще раз подтверждают представленные результаты, в долговременном плане определяется плутонием, америцием и продуктами их распада. Если принятые требования к продуктам деления в целом выполняются, то особенности тех-

нологии могут изменять радиационные характеристики отходов лишь на отдельных этапах выдержки и в целом на радиационный баланс существенного влияния не оказывают. Единственное исключение — нельзя допускать, чтобы какой-либо нуклид или элемент полностью оставался в топливе при переработке. Равновесная концентрация продуктов деления достаточно велика (5—10% по отношению к актиноидам), и их накопление существенно изменяет размножающие и воспроизводящие свойства топлива, делая его непригодным для использования. Это обстоятельство ранее не учитывалось в предъявляемых к радиохимической технологии требованиях. Соответственно по результатам настоящей работы в требования внесена корректировка, рекомендуемая оставлять в топливе не более 10% каждого элемента продуктов деления.

Уточнена потенциальная биологическая опасность природного урана, учитывающая дозовые факторы всех членов радиоактивных семейств урановых изотопов. Это уточнение повышает его потенциальную биологическую опасность в 6 раз по сравнению с прежними оценками, что существенно облегчает условия достижения радиационного баланса.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др. Трансмутационный топливный цикл в крупномасштабной ядерной энергетике России. Монография. НИКИЭТ, 1999.
2. Белая книга ядерной энергетики. Под общ. ред. Е.О. Адамова. 1-е изд. М., НИКИЭТ, 1998.
3. Программа Минатома России «Замкнутый топливный цикл широкомасштабной ядерной энергетики на быстрых реакторах с трансмутацией долгоживущих РАО, отвечающий требованиям нераспространения ядерного оружия и радиационной эквивалентности при захоронении радиоактивных отходов». Утверждена 12.07.99.
4. MCNP-4B, Manual. LA-12625M.
5. Forres R., Sublet J. FISPACT 4. User Manual. UKAEA FUS 287, 1995.
6. The European Activation File: EAF-97 Biological and Transport Libraries. UKAEA FUS 354.

Поступила в Редакцию 7.04.2000

УДК 613.649.16

ОЦЕНКА ВЕРОЯТНОСТИ ВОЗНИКНОВЕНИЯ ОПАСНОСТИ ПРИ ОБРАЩЕНИИ С РАДИАЦИОННО ТОКСИЧНЫМИ ВЕЩЕСТВАМИ

Билык Н.А., Харин В.И. (ВНИИЭФ)

В связи с широким использованием радиоактивных веществ в промышленности, сельском хозяйстве, медицине и ядерной энергетике возросли объемы их перевозок всеми видами транспорта при выполнении требований к конструкции упаковочного комплекта и условиям перевозки [1—3].

Радиоактивные вещества представляют опасность для здоровья людей и могут нанести ущерб окружающей среде. В связи с этим становится актуальной оценка безопасности перевозки транспортного упаковочного комплекта с радиоактивными веществами. При этом необходимо учитывать, что перевозка включает в себя все операции, а также условия (нормальные и аварийные), связанные с обращением с радиоактивными веществами: проектирование, изготовление и обслуживание упаковочных комплектов, подготовка, обработка, перевозка, транзитное хранение и приемка в пункте назначения. Радиоактивные вещества могут находиться в жидком, газообразном и твердом состоянии. При транспортировании опасность представляют: ионизирующее излучение с дозой, превышающей допустимый уровень [3, 4];