

УДК 621.039.519

ПОТЕНЦИАЛЬНАЯ БИОЛОГИЧЕСКАЯ ОПАСНОСТЬ УРАНА, ИСПОЛЗУЕМОГО В ЯДЕРНОМ ТОПЛИВНОМ ЦИКЛЕ

*Габараев Б.А., Ганев И.Х., Лопаткин А.В.**(НИКИЭТ им. Н.А. Доллежалы)*

В последнее время изучается новое поколение быстрых реакторов, безопасность которых основана на природных законах и может быть названа естественной [1]. Это понятие может быть применено и к ядерному топливному циклу, если иметь в виду радиационную эквивалентность опасности природного урана, используемого в ядерной энергетике, и радиоактивных отходов, наработанных из этого урана.

Рассмотрим опасность для человека ионизирующего излучения (α -, β -частиц и γ -квантов), испускаемого радионуклидами, которые входят в состав природного урана, его семейств и радиоактивных отходов. Согласно НРБ-99 [2] вредное воздействие можно описать поглощенной дозой, Гр

$$D = dE/dm,$$

где dE — энергия, Дж, переданная веществу массой m , кг.

Принято использовать уточненную поглощенную дозу:

эквивалентную дозу для органа или ткани (T) и вида излучения (R)

$$H_{T,R} = W_R D_{T,R},$$

где W_R — множители поглощенной дозы, которые учитывают относительную биологическую эффективность различных видов излучения;

эффективную дозу облучения всего тела человека и отдельных его органов и тканей с учетом их радиочувствительности

$$E_{T,R} = W_T H_{T,R},$$

где W_T — взвешивающий коэффициент для органа или ткани, численные значения которого указаны в НРБ-99.

Эквивалентную и эффективную дозу измеряют в единицах Зв (1 Зв = 1 Гр), деленного для эквивалентной дозы на взвешивающий коэффициент W_R или для эффективной дозы на $W_R W_T$.

Приводимые в НРБ дозовые коэффициенты нуклидов E_i (Зв/Бк) характеризуют эффективную дозу, накопленную за 50 лет после поступления массы i -го нуклида активностью 1 Бк в организм человека.

В качестве количественной меры опасности урана и радиоактивных отходов для человека в настоящей статье использована потенциальная биологическая опасность ПБО = $A_{m,i} E_i$, где $A_{m,i}$ — активность массы m нуклида i , Бк; E_i — дозовый коэффициент нуклида i , Зв/Бк [2, 3].

Для достижения радиационной эквивалентности рекомендовано введение в ядерный топливный цикл различных мероприятий [4], в том числе совместное с ураном извлечение из руды долгоживущих радия (период полураспада 1600 лет), тория (75 тыс. лет) и их последующая трансмутация. Для случая без извлечения радия и тория потенциальную биологическую опасность урана рассчитаем с учетом

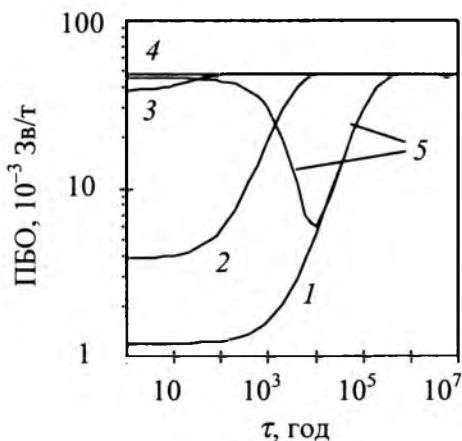
активности 1 т природного урана и суммарного дозового коэффициента извлекаемых из руды четырех членов уранового семейства, Зв/Бк [2, 3]. Опасность при этом относительно мала и принималась ранее не зависящей от времени. В действительности извлечение из руды урана, включая ^{238}U и ^{234}U , приводит к нарушению векового равновесия в радиоактивном семействе ^{238}U , так как прекращается подпитка ^{230}Th при α -распаде ^{234}U . Происходит распад ^{230}Th и девяти членов его семейства, оставшихся в руде. К опасности извлеченных из недр первых четырех членов семейства ^{238}U следует добавить исчезающую при этом в недрах радиационную опасность, так как причиной снижения опасности тория явилось первоначальное извлечение урана (рис. 1).

В случае извлечения ^{230}Th с ураном происходит постепенный распад ^{226}Ra и восьми членов его семейства, оставшихся в недрах. Поэтому исчезающую в руде радиационную опасность следует добавить к опасности извлеченных из руды первых пяти членов семейства ^{238}U . Распад радия повышает потенциальную биологическую опасность извлеченных урана и тория, дает эффект, приемлемый для достижения радиационной эквивалентности, и можно говорить о возможности извлечения с ураном только тория. Такой вариант предпочтительнее, чем извлечение с ураном только радия, на интервале выдержки отходов и урана 1500 лет и более, когда биологическая опасность этих вариантов сравнивается. До этого времени опасность больше при извлечении урана и радия, затем урана и тория. Это видно, например, при рассмотрении временной зависимости в крупномасштабной ядерной энергетике (рис. 2) [5].

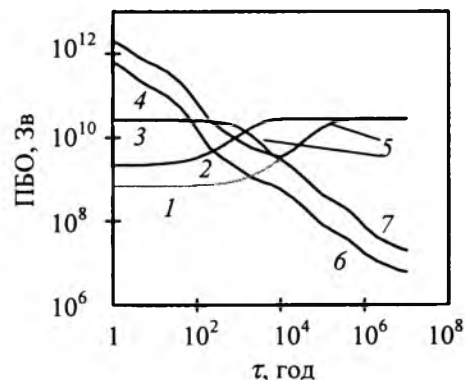
В природном уране ^{226}Ra в 50 раз меньше, чем ^{230}Th , что затрудняет его извлечение из руды. Однако если технология позволит, то на интервале выдержки до 1,5 тыс. лет извлечение только радия предпочтительнее извлечения только тория. Кроме того, в нейтронном поле ^{226}Ra трансмутируется лучше, чем ^{230}Th .

При извлечении радия и тория вместе с ураном происходит небольшая задержка в достижении полной потенциальной биологической опасности вследствие распада ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22,3$ года) и связанных с ним двух (трех вместе с ним) членов ряда ^{238}U .

Общая формула временной зависимости опасности природного урана с учетом ^{234}U , ^{238}U и нуклидов ряда ^{238}U имеет следующий вид:



Р и с. 1. Потенциальная биологическая опасность 1 т природного урана при извлечении из руды урана (1), U + Th (2), U + Th + Ra (3), U + Th + Ra без учета задержки с распадом ^{210}Pb (4), U + Ra (5)



Р и с. 2. Зависимость от времени выдержки потенциальной биологической опасности отходов ядерной энергетики после 2100, 2200 г. и природного урана при извлечении из руды урана (1), U + Th (2), U + Th + Ra (3), U + Th + Ra без учета задержки с распадом ^{210}Pb (4), U + Ra (5)

$$\text{ПБО}(t) = \text{ПБО}_1 + \text{ПБО}_2 [1 - \exp(-\lambda_k t)],$$

где $\text{ПБО}_1 = \lambda_{238} N_{238} \sum_A^B E_i$ — опасность извлекаемых из недр урана и членов его семейства; $\text{ПБО}_2 = \lambda_{238} N_{238} \sum_C^D E_i$ — опасность распавшихся в недрах членов семейства урана; $\lambda_{238} N_{238} = 1,234 \cdot 10^{10}$ Бк/т — активность 1 т ^{238}U с учетом распада урана без членов его семейства; $\sum_A^B E_i$ — сумма дозовых коэффициентов i -х нуклидов (первый из них обозначен A , как правило это ^{238}U , последний B), которые извлекаются из недр, плюс те, которые распадаются сравнительно быстро (ч, сут) после извлечения из руды набора тех или иных долгоживущих элементов (U , $\text{U} + \text{Th}$, $\text{U} + \text{Ra}$, $\text{U} + \text{Th} + \text{Ra}$); в случае $\text{U} + \text{Th} + \text{Ra}$ есть варианты, когда можно считать, что ^{210}Pb распадется сразу же после их извлечения; $\sum_C^D E_i$ — сумма дозовых коэффициентов i -х нуклидов (последний из которых D), распадающихся вместе с остающимся в руде долгоживущим нуклидом C (^{230}Th , если из руды извлекается только уран, ^{226}Ra , если извлекается $\text{U} + \text{Th}$, ^{210}Pb , если извлечены $\text{U} + \text{Th} + \text{Ra}$ и решено учесть распад свинца); λ_k — постоянная распада наиболее долгоживущего нуклида (^{230}Th , ^{226}Ra или ^{210}Pb), остающегося в руде.

Приведем формулы расчета $\text{ПБО}(t)$ 1 т природного урана (Зв/т) без учета ^{235}U для случаев, когда:

извлекают только $^{234,238}\text{U}$, быстро распадаются ^{234}Th , ^{234}Pa , всего из руды извлекают четыре нуклида, учитывают распад ^{230}Th ($\lambda_{230\text{Th}} = 9,193 \cdot 10^{-6} \text{ год}^{-1}$) и девяти членов его семейства —

$$\text{ПБО}_{\text{Unp}}(t) = 1196 + 4,677 \cdot 10^4 [1 - \exp(-9,193 \cdot 10^{-6} t)];$$

извлекают уран и торий (пять первых членов семейства) при учете распада ^{226}Ra ($\lambda_{226\text{Ra}} = 4,335 \cdot 10^{-4} \text{ год}^{-1}$) и восьми членов его семейства —

$$\text{ПБО}_{\text{Unp}}(t) = 3787 + 4,418 \cdot 10^4 [1 - \exp(-4,335 \cdot 10^{-4} t)];$$

извлекают уран, торий и радий (шесть членов семейства) при учете быстрого распада пяти последующих членов семейства (всего из руды извлекают и распадаются 11 членов семейства ^{238}U), дополнительно распадается ^{210}Pb ($\lambda_{210\text{Pb}} = 0,03067 \text{ год}^{-1}$) и два члена его семейства —

$$\text{ПБО}_{\text{Unp}}(t) = 4,812 \cdot 10^4 + 9,888 \cdot 10^3 [1 - \exp(-0,03067 t)];$$

извлекают уран, торий и радий (всего шесть членов семейства), считаем, что быстро распадаются все остальные восемь членов семейства, в том числе ^{210}Pb —

$$\text{ПБО}_{\text{Unp}}(t) = 4,8 \cdot 10^4 \text{ Зв/т} = \text{const.}$$

Показатели распада приведены в табл. 1, $\text{ПБО}_{\text{Unp}}(t)$ — на рис. 1.

Таблица 1. Сумма дозовых коэффициентов нуклидов, Зв/Бк и потенциальная биологическая опасность 1 т природного урана, Зв/т

Извлечение	E_{1-4}	E_{5-14}	E_{1-5}	E_{6-14}	E_{1-11}	E_{12-14}	E_{1-14}
U	$9,69 \cdot 10^{-8}$	$3,79 \cdot 10^{-6}$					
U + Th			$3,07 \cdot 10^{-7}$	$3,58 \cdot 10^{-6}$			
U + Th + Ra					$3,09 \cdot 10^{-6}$	$8,01 \cdot 10^{-7}$	
U + Th + Ra + Pb							$3,89 \cdot 10^{-6}$
Извлечение	ПБО ₁	ПБО ₂	ПБО ₁	ПБО ₂	ПБО ₁	ПБО ₂	ПБО
U	$1,2 \cdot 10^3$	$4,68 \cdot 10^3$					
U + Th			$3,79 \cdot 10^3$	$4,42 \cdot 10^3$			
U + Th + Ra					$3,81 \cdot 10^3$	$9,89 \cdot 10^3$	
U + Th + Ra + Pb							$4,8 \cdot 10^4$

Радий хорошо трансмутируется в нейтронном поле, тогда как трансмутацию ^{230}Th осложняет накопление ^{231}Pa и ^{232}U . Один из возможных путей трансмутации ^{230}Th — облучение его протонами. Однако такая трансмутация тория экономически не оправдана ввиду высокой стоимости ускорителя. Поэтому представляет интерес извлечение радия с ураном (при оставлении тория в руде или его сбросе в хвостохранилище). Для этого случая

$$\text{ПБО}(t) = 1196 + 2591[1 - \exp(-9,193 \cdot 10^{-6}t)] + 44\,180\{1 - [\exp(-9,193 \cdot 10^{-6}t - \exp(-4,335 \cdot 10^{-4}t))]\},$$

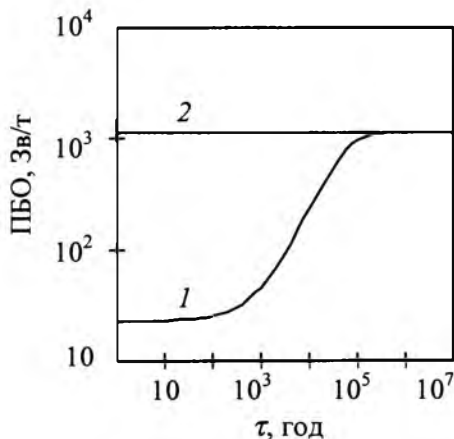
где первый член учитывает опасность первых четырех нуклидов семейства ^{238}U , второй описывает рост опасности урана в результате распада ^{230}Th , третий относится к ^{226}Ra , концентрация которого вследствие распада ^{230}Th возрастает от нуля до некоторого максимального значения при $t = 10$ тыс. лет и затем спадает до нуля. При этом опасность извлеченного урана снижается до минимальной и растет далее так же, как в случае без извлечения других элементов с ураном и распада при этом тория (см. рис. 1, 2).

Извлечение радия с ураном, когда торий остается в руде, приводит к быстрому распаду девяти членов семейства ^{238}U — радия и восьми следующих за ним, что приводит к высокой потенциальной биологической опасности и облегчает достижение баланса урана с отходами при выдержке до 1500 лет.

На рис. 3 показан с учетом распада протактиния вклад потенциальной биологической опасности ^{235}U в опасность природного урана —

$$\text{ПБО}_{\text{натур}}(t) = 22,9 + 1091[1 - \exp(-2,113 \cdot 10^{-5}t)].$$

В табл. 2, 3 приведены дозовые коэффициенты радионуклидов при поступлении в организм человека с водой или пищей для семейств ^{238}U и ^{235}U .



Р и с. 3. Потенциальная биологическая опасность 1 т природного урана при извлечении из руды ^{235}U с учетом распада протактиния (1), ^{235}U + Pa (2)

Т а б л и ц а 2. Дозовые факторы при поступлении с пищей радионуклидов семейства распада ²³⁸U (вариант извлечения радия и тория) [3]

Номер радионуклида <i>i</i>	Первый путь распада ²³⁸ U		Второй путь распада ²³⁸ U	
	Нуклид <i>i</i>	<i>E_i</i> , Зв/Бк	Нуклид <i>i</i>	<i>E_i</i> , Зв/Бк
1	²³⁸ U	4,4·10 ⁻⁸	²³⁸ U	4,4·10 ⁻⁸
2	²³⁴ Th	3,4·10 ⁻⁹	²³⁴ Th	3,4·10 ⁻⁹
3	²³⁴ Pa	5,1·10 ⁻¹⁰	²³⁴ Pa	5,1·10 ⁻¹⁰
4	²³⁴ U	4,9·10 ⁻⁸	²³⁴ U	4,9·10 ⁻⁸
5	²³⁰ Th	2,1·10 ⁻⁷	²³⁰ Th	2,1·10 ⁻⁷
6	²²⁶ Ra	2,8·10 ⁻⁷	²²⁶ Ra	2,8·10 ⁻⁷
7	²²² Rn	2,5·10 ⁻⁶	²²² Rn	2,5·10 ⁻⁶
8	²¹⁸ Po	2,9·10 ⁻¹⁰	²¹⁸ Po	2,9·10 ⁻¹⁰
9	²¹⁴ Pb	1,4·10 ⁻¹⁰	²¹⁸ At	2,1·10 ⁻¹²
10	²¹⁴ Bi	1,1·10 ⁻¹⁰	²¹⁸ Rn	4,7·10 ⁻¹³
11	²¹⁰ Tl	1,7·10 ⁻¹²	²¹⁴ Po	3,2·10 ⁻¹⁶
12	²¹⁰ Pb	6,8·10 ⁻⁷	²¹⁰ Pb	6,8·10 ⁻⁷
13	²¹⁰ Bi	1,3·10 ⁻⁹	²¹⁰ Bi	1,3·10 ⁻⁹
14	²⁰⁶ Tl	8,2·10 ⁻¹³	²¹⁰ Po	2,4·10 ⁻⁷
Σ <i>E_i</i> , <i>i</i> = 1—14		3,77·10 ⁻⁶		4,01·10 ⁻⁶
Среднее <i>E_{ср14}</i>		2,69·10 ⁻⁷		2,86·10 ⁻⁷
Среднее по двум путям распада		2,79·10 ⁻⁷		2,79·10 ⁻⁷
<i>E_{ср 1—14}</i> / <i>E_{ср 1—4}</i>		11,5		11,5

Т а б л и ц а 3. Дозовые факторы при поглощении с пищей радионуклидов семейства распада ²³⁵U [4]

Номер радионуклида	Нуклид	<i>E_i</i> , Зв/Бк
Без извлечения протактиния с ураном		
1	²³⁵ U	4,6·10 ⁻⁸
2	²³¹ Th	3,4·10 ⁻¹⁰
Σ <i>E_i</i> , <i>i</i> = 1—2		4,634·10 ⁻⁸
Среднее		2,317·10 ⁻⁸
<i>E_{ср 2}</i> / <i>E_{235U}</i>		0,504
С извлечением протактиния с ураном		
1	²³⁵ U	4,6·10 ⁻⁸
2	²³¹ Th	3,4·10 ⁻¹⁰
3	²³¹ Pa	7,1·10 ⁻⁷
4	²²⁷ Ac	1,1·10 ⁻⁶
5	²²⁷ Th	8,9·10 ⁻⁹
6	²²³ Ra	1,0·10 ⁻⁷
7	²¹⁹ Rn	5,1·10 ⁻¹¹
8	²¹⁵ Po	3,5·10 ⁻¹⁵
9	²¹¹ Pb	1,8·10 ⁻¹⁰
10	²¹¹ Bi	6,5·10 ⁻¹¹
11	²⁰⁷ Tl	8,5·10 ⁻¹³
Σ <i>E_i</i> , <i>i</i> = 1—11		1,97·10 ⁻⁶
Среднее		1,79·10 ⁻⁷
<i>E_{ср 11}</i> / <i>E_{ср 2}</i>		7,71

При извлечении одновременно снижается долговременная активность урановых отвалов в хвостохранилищах, так как в них не попадают долгоживущие ^{226}Ra и ^{230}Th в случае их извлечения и трансмутации вместе с добытым ураном или отдельно. В последнем случае радий и торий должны быть отделены от урана. Снижение активности урановых отвалов является важной экологической проблемой, решение которой так же актуально для будущей перспективной ядерной энергетики, как и достижение радиационной эквивалентности.

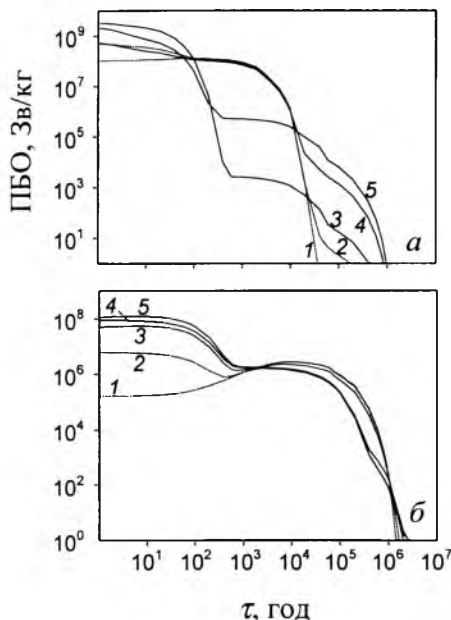
В табл. 2, 3 приведены варианты без извлечения из руды радия, тория и проактиния с ураном. Тогда число учитываемых распадов снижается до четырех для ^{238}U и до двух для ^{235}U . Сравним варианты с извлечением и без извлечения долгоживущих радия и тория из семейства ^{238}U и ^{235}U . Извлечение из руды радия и тория в случае ^{238}U повышает соотношение средних дозовых факторов $E_{\text{ср1-14}}/E_{\text{ср1-4}}$ в 11,5 раза и в случае ^{235}U $E_{\text{ср1-11}}/E_{\text{ср1-2}}$ в 7,7 раза. Если учесть повышение числа членов в случае извлечения в 3,5 и 5,5 раза для семейства ^{238}U и ^{235}U , то ПБО_{сем²³⁸U} возрастает в случае извлечения в 40,2 раза по сравнению со случаем без извлечения, ПБО_{сем²³⁵U} — в 42,4 раза соответственно. На рис. 2 показана потенциальная биологическая опасность отходов, накопленных к 2100 и 2200 гг. ядерной энергетикой мощностью 300 ГВт, и природного урана при потреблении 76 тыс. т до 2000 г. и 500 тыс. т при дальнейшем развитии после 2000 г., всего $5,76 \cdot 10^5$ т [5].

В табл. 4 приведено время выдержки отходов до достижения баланса опасности отходов и использованного природного урана при различных вариантах извлечения из руды радия и тория вместе с ураном. Если рассчитывать на то или иное время достижения баланса урана и отходов, то в течение 1500 лет лучше извлекать радий с ураном, при $1500 < \tau < 2 \cdot 10^5$ год — Th + U. Время достижения радиационного баланса без извлечения радия и тория с ураном составляет 2—10 тыс. лет для отходов 2100 и 2200 гг., т.е. с практической точки зрения слишком велико. Извлечение тория с ураном снижает время достижения баланса до 240—800 лет, извлечение радия — до 70—220 лет, что почти совпадает с вариантом извлечения U + Ra + Th (70—200 лет).

Т а б л и ц а 4. Время достижения радиационной эквивалентности в ядерной энергетике с учетом и без учета извлечения радия и тория с ураном

Извлечение из руды	Время достижения баланса, год, для отходов	
	2100 г.	2200 г.
U	2000	10 000
U + Ra	70	220
U + Th	240	800
U + Ra + Th	70	200

Интерес представляет рассмотрение возможности гетерогенной трансмутации выделенных из руды радия и тория в нейтронном поле реакторов [6]. Динамика потенциальной биологической опасности изотопной смеси при выдержке ^{226}Ra и ^{230}Th после облучения в течение одной кампании в реакторах БРЕСТ, ВВЭР или без облучения представлена на рис. 4. Видно, что на протяжении первых 100 лет выдержки биологическая опасность облученных изотопов в 10—100 раз превышает



Р и с. 4. Потенциальная биологическая опасность при поглощении с пищей 1 кг изотопной смеси, образующейся при выдержке ^{226}Ra (а) и ^{230}Th (б) без облучения (1), после облучения в БРЕСТ (2) или ВВЭР (4), а также 1 кг изотопной смеси, из которой после облучения в БРЕСТ или ВВЭР удален ^{226}Ra (3, 5) или ^{230}Th (3, 5) обусловлен присутствием ^{232}U и продукта его распада ^{228}Th , на более значительном интервале времени — ^{231}Pa и его дочернего продукта ^{227}Ac .

В целом можно сделать вывод, что трансмутация ^{226}Ra в целях уменьшения потенциальной биологической опасности захораниваемой изотопной смеси целесообразна, особенно в случае трансмутации в реакторе БРЕСТ. Подобный подход к трансмутации ^{230}Th в реакторах БРЕСТ и ВВЭР, по-видимому, не дает существенного эффекта.

опасность выдерживаемой смеси от необлученных актиноидов. При выдержке необлученного ^{226}Ra основной вклад в биологическую опасность изотопной смеси вносит ^{226}Ra , а также ^{222}Rn . В случае ^{226}Ra после 100—200 лет выдержки биологическая опасность резко уменьшается и становится ниже опасности необлученной смеси в несколько раз. Особенно велик эффект для смеси актиноидов, облученной в реакторе БРЕСТ. Характеристики облученной и необлученной смеси выравниваются за счет присутствия долгоживущих радионуклидов в облученной смеси примерно через 10 тыс. лет выдержки. В случае ^{230}Th сближение опасности различных вариантов при поглощении с пищевыми продуктами происходит через 1 тыс. лет выдержки. Далее в течение значительного интервала времени опасность сохраняется или растет, снижение начинается только через 10—100 тыс. лет выдержки.

Высокий уровень потенциальной биологической опасности отделенной смеси облученного ^{230}Th при времени выдержки 100 лет

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адамов Е.О., Большов Л.А., Ганев И.Х. и др. Белая книга ядерной энергетики. Под ред. Е.О. Адамова. М., НИКИЭТ, 2001.
2. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99). М., Центр сан.-эпидем. норм. Минздрава России, 1999.
3. EAF-97: Biological and Transport Libraries. CEDE (ingestion) and CEDE (inhalation) (Sv/Bk). Vienna: IAEA, 1997.
4. Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др. Трансмутационный топливный цикл в ядерной энергетике России. Монография. М., НИКИЭТ, 1999.
5. Адамов Е.О., Габараев Б.А., Ганев И.Х. и др. Потенциал развития и возможность достижения состояния радиационной эквивалентности урана и отходов в перспективной ядерной энергетике. — Атомная энергия, 2003, т. 95, вып. 2, с. 83—88.
6. Габараев Б.А., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др. Некоторые вопросы топливного цикла нового поколения быстрых реакторов: Препринт НИКИЭТ, ЕТ-04/65, 2004.