

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ионайтис Р.Р. Нетрадиционные средства управления ядерными реакторами. М., МГТУ, 1992. 231 с.
2. Митенков Ф.М., Антоновский Г.М., Кууль В.С. и др. Энергетический реактор повышенной безопасности ВПБЭР-600 для АС нового поколения. — Атомная энергия, 1992, т. 73, вып. 1, с. 6—13.
3. Ионайтис Р.Р. Разработка системы остановки с газовой АЗ и водной системой длительного удержания. Годовой отчет НИКИЭТа, 1995, с. 85—87.
4. Upton H. Passively safe nuclear power generation for the twenty first century. — In: ICONE-4, v. 2, ASME, 1996, p. 379—393.
5. Афров А.М., Беркович В.М., Генералов В.Н. и др. Проект АЭС нового поколения, сооружаемой на площадке Нововоронежской АЭС. — Труды 11-го Межд. коорд. сов. МХО Интератомэнерго. М., 23-27.08.99. Приложение 1. 38 с.
6. Антоновский Г.М., Беляев А.А., Гуреева Л.В. и др. Энергоблок большой мощности с реактором УВР(1500). — Там же, приложение 6. 19 с.
7. Петров А.А., Черкашов Ю.М. Реакторная установка повышенной безопасности с многопетлевым кипящим реактором электрической мощности 1000 МВт. — Там же, приложение 8. 9 с.
8. Ионайтис Р.Р. Разработка трубопроводной арматуры безопасности РУ ВК-300. — Там же, приложение 28. 13 с.
9. Juhu P., Kupitz J., Cho B. e.a. IAEA activities on passive safety systems and overview of international development. — Nucl. Engng Des., 2000, v. 201, № 1, p. 41—59.
10. Tujikara Y., Oshibe T., Kijima K. e.a. Development of passive safety system for next generation PWR in Japan. — Ibid., p. 61—70.
11. Бубнова Т.А., Ионайтис Р.Р., Петров А.А. Жидкостная система длительного удержания РУ РБМК в подкритическом состоянии. Годовой отчет НИКИЭТа, 2001, с. 61—63.
12. Theofanous T. Boron mixing in the lower plenum of a BWR. — Nucl. Engng Des., 1991, v. 126, № 2, p. 245—255.
13. Grunwald G. Investigation of coolant mixing in PWR at the Rossendorf mixing test facility ROCOM. — In: Ann. Rep. 1998, Jul., p. 1—6 (Inst. für Sicherheitsforschung Forschungszentrum Rossendorf. Institute of Safety Research).
14. Бубнова Т.А., Ионайтис Р.Р., Фатеев Ю.Д. Экспериментальные исследования по вводу жидкого поглотителя в КО СУЗ РУ РБМК. Годовой отчет НИКИЭТа, 2000, с. 135—136.
15. Kiger K., Gavelli F. Boron mixing in complex geometries: flow structure detail. — Nucl. Engng Des., 2001, v. 208, № 1, p. 67—85.
16. Мелихов В.И., Мелихов О.И., Якуш С.Е. и др. Исследование разбавления бора в реакторе ВВЭР-1000. — Теплоэнергетика, 2002, № 5, с. 22—26.

Поступила в Редакцию 15.01.03

УДК 621.039.7

ПРИНЦИПЫ ПОДБОРА МАТРИЦ ДЛЯ ВКЛЮЧЕНИЯ ВЫСОКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Бабаев Н.С., Очкин А.В. (Российский химико-технологический ун-т им. Д.И. Менделеева), Глаголенко Ю.В., Дзекун Е.Г., Ровный С.И. (ФГУП ПО «Маяк»)

Обращение с радиоактивными отходами является одной из основных проблем ядерной энергетики. Наибольшую опасность представляют жидкие высокоактивные отходы, образующиеся при радиохимической переработке отработавшего ядерного топлива. Их хранение в таком виде дорого и небезопасно, и они должны быть включены в матрицы, обеспечивающие надежную изоляцию от биосферы. В

промышленности реализованы два процесса иммобилизации, в которых в качестве матриц использовано фосфатное [1] или боросиликатное стекло [2]. Очевидно, что эти матрицы не идеальны с точки зрения современных знаний об условиях и сроках хранения композитов с радиоактивными отходами.

Требования к свойствам матриц могут быть определены только после детального рассмотрения радионуклидного состава жидких отходов. Очевидно, что одним из ключевых является расчет времени, необходимого для распада радионуклидов до безопасного уровня.

Радионуклидный состав отходов. Радионуклиды, представленные в отходах, могут быть разделены на две группы: продукты деления и продукты активации. При работе одного номинального блока АЭС электрической мощностью 1000 МВт каждую секунду происходит около 10^{20} делений ядер урана или плутония и соответственно образуется около $2 \cdot 10^{20}$ радиоактивных ядер продуктов деления. Большинство из них являются короткоживущими и распадаются еще в реакторе, их энергия распада учитывается при расчете тепловой мощности АЭС. Лишь у небольшой части нуклидов период полураспада превышает 15 лет, и именно они определяют долговременную стратегию обращения с отходами. За 300 сут работы одного блока электрической мощностью 1000 МВт образуется около $2,5 \cdot 10^{17}$ Бк таких радионуклидов — продуктов деления, их общая активность в основном определяется ^{137}Cs и ^{90}Sr .

Имеется и другая группа радионуклидов, относящихся к актиноидам. Они образуются при последовательном поглощении нейтронов ядрами ^{235}U и ^{238}U (табл. 1). Выдержка в 1 год выбрана вследствие того, что в течение первого года после выгрузки отработавшего топлива активность некоторых радионуклидов, в том числе ^{239}Pu увеличивается.

Т а б л и ц а 1. Активность актиноидов и ^{137}Cs в топливе PWR (начальное обогащение 3,2%, глубина выгорания 33 МВт·сут/кг), Бк/т [3]

Радионуклид	Минимально значимая удельная активность, Бк/г [4]	$T_{1/2}$, год	Выдержка			
			1 год	5 лет	7 лет	500 лет
^{237}Np	1	$2,14 \cdot 10^6$	$1,14 \cdot 10^{10}$	$1,14 \cdot 10^{10}$	$1,14 \cdot 10^{10}$	$1,14 \cdot 10^{10}$
^{238}Pu	1	87,7	$8,99 \cdot 10^{13}$	$8,84 \cdot 10^{13}$	$8,73 \cdot 10^{13}$	$1,73 \cdot 10^{12}$
^{239}Pu	1	24 110	$1,26 \cdot 10^{13}$	$1,26 \cdot 10^{13}$	$1,26 \cdot 10^{13}$	$1,24 \cdot 10^{13}$
^{240}Pu	1	6560	$1,88 \cdot 10^{13}$	$1,88 \cdot 10^{13}$	$1,88 \cdot 10^{13}$	$1,78 \cdot 10^{13}$
^{241}Pu	100	14,35	$4,40 \cdot 10^{15}$	$3,64 \cdot 10^{15}$	$3,31 \cdot 10^{15}$	0
^{242}Pu	1	$3,75 \cdot 10^5$	$6,88 \cdot 10^{10}$	$6,88 \cdot 10^{10}$	$6,88 \cdot 10^{10}$	$6,88 \cdot 10^{10}$
^{241}Am	1	432	$1,20 \cdot 10^{13}$	$3,77 \cdot 10^{13}$	$4,85 \cdot 10^{13}$	$3,48 \cdot 10^{13}$
^{243}Am	1	7370	$6,18 \cdot 10^{11}$	$6,18 \cdot 10^{11}$	$6,18 \cdot 10^{11}$	$5,90 \cdot 10^{11}$
^{242}Cm	100	0,446	$3,25 \cdot 10^{14}$	$7,73 \cdot 10^{11}$	$1,44 \cdot 10^{11}$	0
^{244}Cm	10	18,1	$6,92 \cdot 10^{13}$	$5,92 \cdot 10^{13}$	$5,51 \cdot 10^{13}$	0
^{137}Cs	10	30,21	$3,85 \cdot 10^{15}$	$3,51 \cdot 10^{15}$	$3,35 \cdot 10^{15}$	$4,12 \cdot 10^{10}$

Активность актиноидов, кроме ^{241}Pu , при выгрузке топлива существенно меньше активности продуктов деления, но большинство из них являются долгоживущими α -излучающими, радиационная опасность которых значительно выше. Кроме того, содержание актиноидов зависит от глубины выгорания топлива и его первоначального состава. Так, при использовании смешанного уран-плутониевого топлива, включающего оксид плутония, содержание америция и кюрия увеличится, их изотопный состав сместится в сторону более тяжелых изотопов.

При обращении с высокоактивными отходами необходимо прежде всего определить, какой уровень активности отвержденных отходов можно рассматривать настолько низким, что они перестанут представлять опасность для человека. Различная радиационная опасность α - и β -излучающих хорошо видна при сопоставлении минимально значимой удельной активности [4]. Для долгоживущих α -излучающих она установлена в 1 Бк/г, тогда как для β -излучающих в 100—10 тыс. раз больше и лишь для ^{137}Cs составляет 10 Бк/г. Согласно ОСПОРБ-99 [5] вещества, удельная активность которых превышает минимально значимую удельную активность, относятся к радиоактивным отходам. Так как пока нет других нормативных документов, регламентирующих безопасные уровни удельной активности отвержденных отходов, время выдержки в первом приближении будет определяться распадом до удельной активности, меньшей минимально значимой удельной активности.

В табл. 1 из продуктов деления представлен лишь ^{137}Cs . Имеются еще 10 радионуклидов — продуктов деления, период полураспада которых превышает 15 лет. Однако из-за большого периода полураспада их активность существенно ниже активности ^{137}Cs , и ее трудно определить прямыми измерениями. В табл. 2 представлена активность долгоживущих продуктов деления, отнесенная к активности ^{137}Cs . Для нулевой выдержки ее рассчитывали по уравнению

$$A_i/A_{137} = y_i \lambda_i / (y_{137} \lambda_{137}), \quad (1)$$

где индекс i относится к данному радионуклиду; A_i , y_i , λ_i — активность, выход при делении ^{235}U на тепловых нейтронах [6] и постоянная распада i -го нуклида соответственно. Результаты расчета по уравнению (1) не зависят от времени работы реактора и числа делений в реакторе за единицу времени. Лишь при расчете активности ^{151}Sm и ^{135}Cs учитывали захват тепловых нейтронов продуктами деления (во втором случае захват нейтронов ^{135}Xe), и расчет проводили для плотности потока нейтронов $2 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$. Активность для другого времени выдержки была рассчитана по обычному уравнению радиоактивного распада.

При анализе табл. 2 можно выделить три группы радионуклидов. Первая группа радионуклидов, период полураспада которых не превышает 100 лет, определяет общую активность продуктов деления при выдержке до 500 лет. Основной вклад в активность этой группы вносят ^{137}Cs и ^{90}Sr , затем ^{151}Sm , незначителен вклад ^{121m}Sn , который далее не будет учитываться. Вторую группу составляют радионуклиды с периодом полураспада несколько сот тысяч лет. Их активность будет определять общую активность продуктов деления примерно до 500 тыс. лет. Здесь доминирует ^{99}Tc , тогда как вклад ^{79}Se и ^{126m}Sn составляет лишь несколько процентов. Затем общая активность продуктов деления будет определяться долгоживущими продуктами деления ^{93}Zr , ^{135}Cs и ^{129}I .

Т а б л и ц а 2. Активность долгоживущих продуктов деления, отнесенная к активности ¹³⁷Cs A_i/A_{137}

Радио- нуклид	$T_{1/2}$, год [6]	Минимально значимая удельная активность, Бк/г [4]	Выход при делении ²³⁵ U, % [6]	Сечение захвата тепловых нейтронов, 10^{-28} м ² [6]	Выдержка, год			
					0	300	500	1000
¹⁵¹ Sm	93	10 ⁴	0,415	15 200	0,0018	0,18	4,11	9,6·10 ³
¹³⁷ Cs	30,17	10	6,236	0,25	1	1	1	1
¹³⁵ Cs	2,3·10 ⁶	10 ⁴	6,535	8,9	3,8·10 ⁻⁶	0,0037	0,37	0,37·10 ⁵
¹²⁹ I	1,57·10 ⁷	100	0,779	31	2,3·10 ⁻⁷	2,3·10 ⁻⁴	0,023	2130
¹²⁶ Sn	2,3·10 ⁵	—	0,0594	—	1,2·10 ⁻⁶	0,0012	0,12	1,1·10 ⁴
^{121m} Sn	52	—	0,00154	—	1,4·10 ⁻⁴	0,0025	0,018	2,1
¹⁰⁷ Pd	6,5·10 ⁶	—	0,139	—	1,1·10 ⁻⁷	1,0·10 ⁻⁴	0,010	940
⁹⁹ Tc	2,11·10 ⁵	10 ⁴	6,161	20	1,4·10 ⁻⁴	0,14	13,6	1,3·10 ⁶
⁹³ Zr	1,5·10 ⁶	1000	6,300	2	2,0·10 ⁻⁵	0,020	2,0	1,9·10 ⁵
⁹⁰ Sr	28,64	100	5,835	0,014	0,99	0,68	0,53	0,29
⁷⁹ Se	4,8·10 ⁵	—	0,0471	—	3,5·10 ⁻⁶	0,0034	0,34	3,2·10 ⁴

Более детальный анализ можно сделать только с учетом различной радиационной опасности нуклидов. Так, при выдержке 500 лет активность ⁹⁹Tc превышает активность ¹³⁷Cs более чем в 10 раз, однако его радиационная опасность меньше. Если взять в качестве меры радиационной опасности минимально значимую удельную активность, то радиационная опасность двух радионуклидов сравняется, когда отношение их активности станет равным отношению значений минимально значимой удельной активности. Например, после выдержки 500 лет активность ⁹⁹Tc и ¹⁵¹Sm будет больше активности ¹³⁷Cs, однако радиационная опасность последнего будет выше, так как отношение минимально значимой удельной активности первых и последнего равно 1000. Время t , когда отношение активности i -го радионуклида и ¹³⁷Cs A_i/A_{137} станет равным отношению их минимально значимой удельной активности, может быть рассчитано по формуле

$$t = \{ \ln[(MЗУA_i/MЗУA_{137})/(A_0/A_{0137})] \} / (\lambda_{137} - \lambda_i), \tag{2}$$

где A_0/A_{0137} — отношение активности в начальный момент времени; λ — постоянная распада; МЗУА — минимально значимая удельная активность.

Расчет по уравнению (2) приводит к следующим значениям времени и выдержки, год: ¹⁵¹Sm 854, ¹³⁵Cs 844, ¹²⁹I 764, ⁹³Zr 670, ⁹⁹Tc 687, при этом чем меньше расчетное время выдержки, тем выше радиационная опасность радионуклида. Например, в технологическом процессе остекловывания высокоактивных отходов на ПО «Маяк» [1] при переработке значительного количества отработавшего топлива с топливной композицией на основе алюминия, определяющего массу стекла, в 1 кг матрицы включали около 145 Ки. Тогда для включения ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr потребуется около 1500 кг стекла, и удельная активность по ¹³⁵Cs составит 10⁴ Бк/г, что соответствует его минимально значимой удельной активности. Очевидно, что после 844 лет выдержки удельная активность ¹³⁵Cs и ¹³⁷Cs, а также ¹⁵¹Sm в таких стеклах

будет меньше их минимально значимой удельной активности, однако удельная активность трех других нуклидов ^{129}I , ^{93}Zr и ^{99}Tc будет выше (в действующем процессе ^{129}I и ^{99}Tc в стеклянную матрицу не включаются).

Таким образом, при включении продуктов деления можно выполнить с большими или меньшими трудностями требование о допустимой удельной активности радионуклидов с очень большим периодом полураспада. Однако положение существенно осложняется при переходе к актиноидам. Согласно НРБ-99 [4] минимально значимая удельная активность ^{235}U , ^{238}U и ^{244}Cm равна 10 Бк/г, тогда как природного урана, ^{237}Np , изотопов плутония с массовым числом 238, 239, 240 и 242, ^{241}Am и ^{243}Am она составляет 1 Бк/г. Это означает, что даже для остаточного плутония в отходах, потери которого в рафинате при экстракции не превышают 0,025% общего количества [1], надо либо использовать очень большую массу матриц, либо контролировать хранение в течение очень большого периода времени. Так, для ^{239}Pu 0,025% активности составит $3,1 \cdot 10^9$ Бк/т. Тогда для его включения на уровне минимально значимой удельной активности потребуется 3100 т, при включении в 1,5 т, как в случае фосфатного стекла, для уменьшения активности в 2100 раз потребуется выдержка свыше 265 тыс. лет. Еще большие значения получим для ^{242}Pu . Такие сроки контролируемого хранения нереальны.

Необходимо отметить, что минимально значимая удельная активность в принципе предназначена не для контроля могильников высокоактивных отходов, а для ограничения выброса радиоактивности в нормальных условиях. При этом радионуклиды могут быть в растворимом состоянии. Так как скорость выщелачивания радионуклидов из матричных материалов низка, то пороговые значения удельной активности в матричных материалах, которые позволяют их перевести в неконтролируемое хранение, целесообразно установить выше минимально значимой удельной активности, а степень превышения должна зависеть от скорости выщелачивания, т.е. вида матричного материала и природы радионуклида. Сейчас нет возможности обсуждать допустимую пороговую концентрацию, и в настоящей работе лишь проиллюстрируем возможности данного подхода. Для этого необходимо перейти от относительного количества долгоживущих радионуклидов к абсолютному.

Данные табл. 3 получены умножением данных табл. 2 на активность ^{137}Cs . Его активность сразу после выгрузки топлива составляет $3,96 \cdot 10^{15}$ Бк/т [3]. Расчет для выгорания 33 МВт-сут/кг с использованием энергии одного деления ядра ^{235}U $3,11 \cdot 10^{-11}$ Дж [3] и выхода 6,236% [6] приводит к близкому значению $4,16 \cdot 10^{15}$ Бк/т.

Необходимо отметить, что приведенная в табл. 3 активность рассчитана только для деления ^{235}U , тогда как в реакторе происходит также деление ^{239}Pu , при этом энергия одного деления составляет $3,2 \cdot 10^{-11}$ Дж [3], выход продуктов деления может существенно отличаться. Например, выход ^{90}Sr при делении плутония составляет лишь 2,1%. Вследствие этого реальная активность может быть рассчитана по уравнению

$$A = (y_{235} + xy_{239})A_{235}/(1 + x)y_{235},$$

где y_{235} , y_{239} — выход при делении ^{235}U и ^{239}Pu ; x — число делений ^{239}Pu , приходящееся на одно деление ^{235}U ; A_{235} — активность, приведенная в табл. 3. Например, активность ^{90}Sr $2,76 \cdot 10^{15}$ Бк/т [3] соответствует $x = 0,84$.

Т а б л и ц а 3. Активность долгоживущих продуктов деления, Бк/г

Радионуклид	Минимально значимая активность, Бк [4]	Минимально значимая удельная активность, Бк/г [4]	Уровень вмешательства, Бк/кг [4]	Предельно допустимое поступление, Бк [7]	f , Зв/Бк	Выдержка, год		
						0	500	1000
^{137}Cs	10^4	10^1	11	10^6	$2 \cdot 10^{-8}$	$4 \cdot 10^{15}$	$4 \cdot 10^{10}$	$4 \cdot 10^5$
^{135}Cs	10^7	10^4	69	10^7	$2 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{10}$	$1,5 \cdot 10^{10}$	$1,5 \cdot 10^{10}$
^{79}Se	—	—	48	10^7	$2 \cdot 10^{-9}$	$1,4 \cdot 10^{10}$	$1,4 \cdot 10^{10}$	$1,3 \cdot 10^{10}$
^{129}I	10^5	10^2	1,3	$2 \cdot 10^5$	$1 \cdot 10^{-7}$	$9,2 \cdot 10^8$	$9,2 \cdot 10^8$	$9,2 \cdot 10^8$
^{151}Sm	10^8	10^4	1400	10^8	$2 \cdot 10^{-10}$	$7,2 \cdot 10^{12}$	$1,6 \cdot 10^{11}$	$3,8 \cdot 10^9$
^{126}Sn	—	—	30	$3 \cdot 10^6$	$6,7 \cdot 10^{-9}$	$5 \cdot 10^9$	$5 \cdot 10^9$	$5 \cdot 10^9$
^{107}Pd	—	—	3800	$3 \cdot 10^8$	$6,7 \cdot 10^{-11}$	$4,4 \cdot 10^8$	$4,4 \cdot 10^8$	$4,4 \cdot 10^8$
^{99}Tc	10^7	10^4	220	$3 \cdot 10^7$	$6,7 \cdot 10^{-10}$	$5,6 \cdot 10^{11}$	$5,6 \cdot 10^{11}$	$5,5 \cdot 10^{11}$
^{93}Zr	10^7	10^3	130	$7 \cdot 10^7$	$2,9 \cdot 10^{-10}$	$8,0 \cdot 10^{10}$	$8,0 \cdot 10^{10}$	$8,0 \cdot 10^{10}$
^{90}Sr	10^4	10^2	5	$6 \cdot 10^5$	$3,3 \cdot 10^{-8}$	$3,9 \cdot 10^{15}$	$2,1 \cdot 10^{10}$	$1,2 \cdot 10^5$

В табл. 3 сопоставлены различные нормативные величины, применяемые для оценки радиационной опасности радионуклидов. Наиболее обоснованным является предельно допустимое поступление для персонала через органы пищеварения, рекомендованное МКРЗ [7]. По нему рассчитаны дозовые коэффициенты $f = 0,02/\text{ПДП}$ (Зв/Бк) ($0,02$ Зв — предельно допустимая доза для персонала). Другие нормативные величины, однако, не пропорциональны предельно допустимому поступлению для персонала через органы пищеварения. Более того, имеется явное противоречие между значениями минимально значимой активности, минимально значимой удельной активности и уровнем вмешательства [4]: первые два для ^{129}I в 10 раз больше, чем для ^{137}Cs , уровень вмешательства, наоборот, больше у ^{137}Cs . Отметим также, что минимально значимая удельная активность природного урана в равновесии с продуктами распада составляет 1 Бк/г, среднее содержание урана в литосфере 4 г/т, т.е. примерно 0,05 Бк/г, есть породы и почвы, в которых содержание урана в 20 раз и более выше. Предельно допустимое поступление для персонала двух изотопов цезия с массовым числом 137 и 135 отличается лишь в 10 раз, минимально значимая удельная активность — в 1000 раз. Отсюда можно сделать вывод о недостаточной научной обоснованности значений минимально значимой удельной активности и уровня вмешательства.

Требования к матричным материалам. Основным требованием с точки зрения воздействия на окружающую среду является химическая устойчивость, определяемая как скорость выщелачивания w . Следует различать скорость выщелачивания радионуклидов из матрицы и скорость выщелачивания самих матричных элементов. Для последних используется также линейная скорость выщелачивания w/ρ (где ρ — плотность матричного материала). Фактически w/ρ показывает среднюю скорость коррозии матрицы, т.е. чем больше w/ρ , тем быстрее матричные монолитные блоки превратятся в порошок.

Есть разные способы определения скорости выщелачивания. Наиболее распространенным является тест МСС-1, согласно которому пластинка или кубик исследуемого материала погружается в раствор, содержащий индикатор коррозии.

дуемого материала с легко измеряемой поверхностью в несколько см² помещается на срок до 30 сут в термостатированный сосуд с выщелачивателем, причем последний меняется через определенные промежутки времени [8]. После окончания времени выщелачивания определяют концентрацию выщелоченных веществ и изучают поверхность образца. Аналогичный метод заложен в ГОСТ 29114-91 [9]. Тест применяется для определения скорости выщелачивания стекол, но он малоприменим для минералоподобных матриц, где скорость выщелачивания составляет 10⁻⁶ г/(см²·сут) и ниже. Поэтому разработаны и разрабатываются тесты с использованием измельченных образцов, поверхность которых примерно в 10 тыс. раз превышает поверхность образцов в МСС-1 [8]. В РХТУ им. Д.И. Менделеева скорость выщелачивания из минералоподобных матриц определяют в аппарате Сокслета, что сокращает время измерения до нескольких суток. С точки зрения модели выщелачивания такой тест позволяет определить максимальное количество радионуклидов, которое может поступить в окружающую среду за какое-то время, т.е. максимально возможный выброс при заливе водой хранилища с отходами. Например, максимально возможный годовой выброс можно рассчитать по уравнению

$$A = S \cdot 365 \sum w_i A_{уд_i},$$

где S — общая поверхность всех композитных блоков в хранилище; w_i , $A_{уд_i}$ — скорость выщелачивания, г/(см²·сут) и удельная активность i -го радионуклида, Бк/г. Однако в этом уравнении суммируется активность радионуклидов, представляющих разную опасность для биосферы. Реальная опасность может быть учтена с помощью значений минимально значимой активности, как это предложено в ОСПОРБ-99 [5] при определении класса работ с открытыми радионуклидными источниками:

$$A_{прив} = 365 \cdot 1000 S \sum w_i [A_{уд_i} / (МЗА)_i], \quad (3)$$

где $A_{прив}$ — активность, приведенная к активности группы А радиационной опасности; $(МЗА)_i$ — минимально значимая активность i -го радионуклида; 1000 — минимально значимая активность радионуклидов группы А радиационной опасности.

Минимально значимая активность, однако, усредняет радиационную опасность радионуклидов. Более точно она может быть выражена значениями предельно допустимого поступления для персонала, приведенными в Публикации № 61 МКРЗ [7], или рассчитанными по ним дозовыми коэффициентами $f = 0,02/\text{ПДП}$. При наличии нескольких значений предельно допустимого поступления в зависимости от растворимости химических соединений, поступающих через желудок, в табл. 3, 4 были использованы значения для наиболее растворимых соединений, так как при выщелачивании концентрация столь мала, что поступление в желудок происходит в ионном виде.

Из 24 радионуклидов, представленных в табл. 3, 4, для 11 минимально значимая активность равна 10⁴ Бк, т.е. они относятся к группе Б радиационной опасности. В то же время предельно допустимое поступление и, следовательно, дозовые коэффициенты этих радионуклидов отличаются более чем в 10 раз. Так, дозовый коэффициент ¹³⁷Cs равен 2·10⁻⁸ Зв/Бк (ПДП = 1·10⁶), тогда как ²⁴¹Am 6,7·10⁻⁷ Зв/Бк (ПДП = 3·10⁴). И невозможно понять, почему из четырех α-излучающих изотопов плутония для трех установлена минимально значимая активность 10⁴ Бк, а для

Т а б л и ц а 4. Минимально значимая активность, предельно допустимое поступление для персонала и дозовые коэффициенты долгоживущих радионуклидов

Радионуклид	Минимально значимая активность, Бк [4]	Предельно допустимое поступление, Бк [7]	f , Зв/Бк
^{226}Ra	10^4	$9 \cdot 10^4$	$2,2 \cdot 10^{-7}$
^{232}Th	10^3	$5 \cdot 10^4$	$4,0 \cdot 10^{-7}$
^{234}U	10^4	$7 \cdot 10^5$	$2,9 \cdot 10^{-8}$
^{235}U	10^4	$7 \cdot 10^5$	$2,9 \cdot 10^{-8}$
^{238}U	10^4	$8 \cdot 10^5$	$2,5 \cdot 10^{-8}$
^{237}Np	10^3	$3 \cdot 10^4$	$6,7 \cdot 10^{-7}$
^{238}Pu	10^4	$4 \cdot 10^4$	$5,0 \cdot 10^{-7}$
^{239}Pu	10^4	$4 \cdot 10^4$	$5,0 \cdot 10^{-7}$
^{240}Pu	10^3	$4 \cdot 10^4$	$5,0 \cdot 10^{-7}$
^{241}Pu	10^5	$2 \cdot 10^6$	$1,0 \cdot 10^{-8}$
^{242}Pu	10^4	$4 \cdot 10^4$	$5,0 \cdot 10^{-7}$
^{241}Am	10^4	$3 \cdot 10^4$	$6,7 \cdot 10^{-7}$
^{243}Am	10^3	$3 \cdot 10^4$	$6,7 \cdot 10^{-7}$
^{244}Cm	10^4	$6 \cdot 10^4$	$3,3 \cdot 10^{-7}$

одного ^{240}Pu 10^3 Бк. Все эти изотопы имеют период полураспада, превышающий среднюю продолжительность человеческой жизни, их химическое, а из-за больших периодов полураспада и биологическое поведение одинаково, энергия α -распада уменьшается в ряду ^{238}Pu (5,499 МэВ) > ^{240}Pu (5,168) > ^{239}Pu (5,156) > ^{242}Pu (4,903). При использовании современных полупроводниковых α -спектрометров вследствие близости энергии основных линий пики α -частиц ^{239}Pu и ^{240}Pu не разделяются и образуют один общий пик. Между тем отнесение этих изотопов к разным группам радиационной опасности требует их отдельного определения для установления, например, класса работ.

При использовании предельно допустимого поступления уравнение (3) принимает вид

$$A_{\text{экв}} = S \cdot 365 \sum w_i [A_{\text{уд}} / (\text{ПДП})_i], \quad (4)$$

где максимально возможная эквивалентная активность выражена в долях предельно допустимого поступления для персонала.

При использовании дозовых коэффициентов уравнение (3) переходит в уравнение для расчета максимально возможной коллективной эквивалентной дозы $H_{\text{кол}}$, которая будет сформирована, если все выщелоченные радионуклиды попадут с питьевой водой в организм человека:

$$H_{\text{кол}} = 365 S \sum w_i [A_{\text{уд}} f_i], \quad (5)$$

где f_i — дозовые коэффициенты, приведенные в табл. 3, 4.

Очевидно, что именно эти величины и следует использовать при расчете допустимой емкости хранилища, причем предпочтение следует отдавать уравнениям

(4), (5). При выборе матрицы одним из критериев должен быть минимум величины $\sum w_i[A_{уд}/(ПДП)_i]$ или $\sum w_i[A_{уд}f_i]$. Такой подход легко согласовать и с концепцией радиационно-эквивалентного замещения [10].

В уравнениях (4), (5) множители поддаются прямому определению или расчету, площадь поверхности начнет изменяться сразу же после начала выщелачивания вследствие коррозии матрицы. Тогда необходимо обеспечить такие условия, при которых рост площади поверхности, по крайней мере, компенсировался бы уменьшением $\sum w_i[A_{уд}/(ПДП)_i]$ или аналогичной суммы в уравнении (5). Однако предсказать изменение площади поверхности невозможно. Так, можно с высокой степенью вероятности предполагать, что площадь поверхности из-за коррозии увеличится не более чем в 10—20 раз, пока не произойдет распад монолита на фрагменты. Дальнейшее увеличение площади поверхности может произойти достаточно быстро из-за образования все новых и новых фрагментов. При диаметре монолита 10—20 см можно ожидать, что образование фрагментов не начнется, пока местная глубина коррозии не превысит 1 см, средняя глубина — 0,1 см.

При измельчении образцов обычными методами, т.е. без использования специальных дезинтеграторов поверхность увеличивается максимально в 10 тыс. раз. Это означает, что увеличение выброса радионуклидов из-за дефрагментации монолитных блоков и повышения удельной поверхности при заливе хранилища водой не будет представлять опасности для биосферы после уменьшения $\sum w_i[A_{уд}/(ПДП)_i]$ в 10 тыс. раз.

Данный подход может быть легко применен, когда скорость выщелачивания радионуклидов в отвержденных отходах примерно одинакова. Так, можно показать, что для иммобилизации ^{137}Cs и ^{90}Sr (активность уменьшается в 10 тыс. раз примерно через 400 лет, или $1,5 \cdot 10^5$ сут) подходят матрицы со скоростью коррозии менее 10^{-6} см/сут, или скоростью выщелачивания матричных элементов менее $2 \cdot 10^{-7}$ г/(см²·сут). Для актиноидной фракции необходимо использовать матрицы со скоростью выщелачивания матричных элементов меньше 10^{-8} г/(см²·сут). Это означает, что для иммобилизации актиноидной фракции высокоактивных отходов не подходят стекла, необходимо использовать минералоподобные матрицы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Глаголенко Ю.В., Дзекун Е.Г., Ровный С.И. и др. Переработка отработавшего ядерного топлива на комплексе РТ-1: история, проблемы, перспективы. — Вопросы радиационной безопасности, 1997, № 2, с. 3—12.
2. Le Bar S. Environmental safety of reprocessing plant at La Hague. — In: Health and Environmental Aspects of Nuclear Fuel Cycle Facilities. Vienna: IAEA, 1996, p. 105—112.
3. Кесслер Г. Ядерная энергетика. Пер. с англ. М.: Энергоатомиздат, 1986. 264 с.
4. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99). 2.6.1. Ионизирующее излучение, радиационная безопасность СП 2.6.1. 799-99. М., Минздрав России, 2000. 98 с.
5. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99). Гигиенические нормативы. М., Центр сан.-эпидем. нормирования, гигиенической сертификации и экспертизы Минздрава России, 1999. 116 с.
6. Karlsruhe Nuklidkarte. Aufl. 6, 1995.
7. Радиационная защита. Рекомендации МКРЗ 1990 г. Ч. 1. Пределы годового поступления радионуклидов в организм работающих, основанные на рекомендациях 1990 года. Публикации № 60 (ч. 1), № 61 МКРЗ. Пер. с англ. М.: Энергоатомиздат, 1994. 192 с.

8. **Chemical Durability and Related Properties of Solidified High-Level Waste Forms.** Final Report of Coordinated Research Programme on the Evaluation of Solidified High-Level Waste Forms. Vienna: IAEA, 1985.
9. **Отходы радиоактивные. Метод измерения химической устойчивости отвержденных радиоактивных отходов посредством длительного выщелачивания.** ГОСТ 29114-91. М., Комитет стандарт. и метрологии СССР, 1992. 10 с.
10. **Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др.** Обращение с высокоактивными отходами при развитии, работе и выводе из действия крупномасштабной ядерной энергетики России: Препринт НИКИЭТ ЕТ-97/35, 1997. 63 с.

Поступила в Редакцию 23.09.02

УДК 621.039.5

СОРБЦИЯ И ДЕСОРБЦИЯ РАДИОНУКЛИДОВ НА КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛАХ ЯЭУ ПРИМЕНИТЕЛЬНО К АЭС С РБМК В ПЕРИОД ОСТАНОВА

Лысенко А.А., Прозоров В.В. (Сосновоборский гос. проектно-изыскательский ин-т ВНИПИЭТ), Дошлыцын В.А. (СПб гос. технол. ин-т)

В настоящей работе изучены закономерности взаимодействия радионуклидов с поверхностью конструкционных материалов в стояночных режимах эксплуатации энергоблоков. В период останова блока изменяются характеристики теплоносителя (температура, гидродинамический режим). В этот период значительно возрастает содержание в теплоносителе активирующих коррозию ионов, кислорода и пероксида водорода, концентрация которого достигает 10 мг/кг. За счет окислительно-восстановительного потенциала водной среды происходит окисление двухвалентного железа до трехвалентного и его гидролиз. Следствием такого процесса является снижение адгезии наносных продуктов к поверхности и их постепенный переход в теплоноситель. Переход радиоактивных продуктов коррозии с наиболее загрязненных участков поверхности в теплоноситель и разнос по контуру приводят к значительному ухудшению радиационной обстановки энергетической установки в целом. Опыт эксплуатации показывает, что после промывок КМПЦ водой при 60—65 °С с содержанием кислорода 6—10 мг/кг — такая обработка проводилась на Ленинградской и Чернобыльской АЭС с коэффициентом дезактивации, равным 2, мощность γ -излучения оборудования на 7—10 сут после дезактивации превышала первоначальный уровень.

Нами было изучено влияние добавок активирующих коррозию ионов и окислителя на коррозию и десорбцию радионуклидов с поверхности различных конструкционных материалов. Предварительно образцы выдерживали в загрязняющем растворе, содержащем ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{144}Ce — ^{144}Pr и ^{51}Cr в равных количествах суммарной активностью $2 \cdot 10^8$ Бк/кг при 270 °С в течение 150 ч. Для создания рыхлых отложений на поверхности образцы из стали 08Х18Н10Т предварительно выдерживали на воздухе при 1050 °С в течение 10 мин. Радиометрические измерения проводили на радиометре БДБС-3-1еМ в комплекте с детектором СБТ10А с пересчетным прибором ПСО-2-4. γ -Спектрометрический анализ радиоактивных растворов и образцов выполняли с помощью анализатора импульсов АИ-4096-3М-В-100 и полупровод-