

В замкнутом ЯТЦ при рецикле собственных Np , Am , Cm и из ВВЭР-Б масса ^{241}Am в реакторе БРЕСТ выше, чем в ВВЭР-Б, в 35 раз, тогда как ^{243}Am примерно такая же. Масса других нуклидов выше в ВВЭР-Б: ^{237}Np — в 1,1, ^{244}Cm — в 1,5 раза. В замкнутом ЯТЦ в ВВЭР-Б с ториевым циклом делится вдвое меньшая, чем в БРЕСТ (в ЯЭ-2), масса ядер Np , Am , Cm , отношение делящейся массы к их массе в равновесном состоянии (в 20-м цикле) ниже в среднем на 70%. Последний показатель велик в ВВЭР-Б так же, как и в ВВЭР-А, для ^{242m}Am (15) и нечетных изотопов кюрия. В реакторе БРЕСТ он выше для $^{241,243}\text{Am}$ и четных изотопов кюрия (см. табл. 4, 5).

В ЯЭ-3 при удалении Np , Am , Cm в космос показатели реактора БРЕСТ в установившемся состоянии замкнутого цикла почти совпадают с показателями БН-А-800 в ЯЭ-1 (накопление с учетом деления 24—26 кг), так как изотопный состав плутония, разный в исходном состоянии, в равновесном режиме близок.

При одной и той же доле Np , Am , Cm и Pa в отходах их масса пропорциональна массе в топливе: 21—23 кг/т Np , Am , Cm для БН-А-800 и БРЕСТ при их сжигании в реакторе БЦМТ или удалении в космос, 69 кг в ториевом ВВЭР-Б при направлении Np , Am , Cm и протактиния в БРЕСТ или удалении в космос, 79 кг/т в реакторе БРЕСТ при рецикле собственных Np , Am , Cm и из ВВЭР-Б и 48 кг/т в U-Pu -ЯТЦ ВВЭР-А при сжигании Np , Am , Cm в БЦМТ.

В плане снижения наработки Np , Am , Cm ториевый цикл в ВВЭР имеет преимущество в открытом ЯТЦ, однако в нем накапливается значительная масса и активность таких опасных легких актиноидов, как $^{229,230}\text{Th}$, ^{231}Pa , ^{232}U . В равновесном состоянии замкнутого ЯТЦ в ториевом цикле накапливается почти такая же масса Np , Am , Cm , как и в U-Pu -ЯТЦ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bergelson B., Kulikov G., Shmelev A. Analysis multicycle of a minor actinides burn-up mode in fast reactor with MOX-fuel. — In: Second Intern. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, 3—7 June 1996, Kalmar, Sweden.
2. Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др. Модели развития крупномасштабной ядерной энергетики России с трансмутационным ЯТЦ и достижением радиационной эквивалентности высокоактивных отходов и природного урана. — Атомная энергия, 1997, т. 82, вып. 1, с. 3—10.
3. Лопаткин А.В., Точеный Л.В. Разработка и усовершенствование средств расчета и оптимизации нуклидного состава облученного топлива. Отчет НИКИЭТ, инв. № 050-179-4197, 1992.

Поступила в Редакцию 23.01.98

УДК 621.039.519

ПАРАМЕТРЫ ХРАНИЛИЩА ДЛЯ ОКОНЧАТЕЛЬНОГО ЗАХОРОНЕНИЯ ВЫСОКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ В ПЕРСПЕКТИВНОЙ ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКЕ РОССИИ

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

В длительно действующей крупномасштабной ядерной энергетике [1] с замкнутым ЯТЦ с рециклом урана и плутония в отходы для последующего захоронения поступает некоторая часть актиноидов, часть продуктов деления и конструкционных материалов. В современной маломасштабной энергетике в принципе возможна работа в открытом ЯТЦ с захоронением отработавшего ядерного топлива без переработки, поскольку резервов природного урана достаточно для ее сравнительно длительного действия. Однако активность отходов в этом случае велика в сравнении с активностью потребленного природного урана.

Представляет интерес сравнить параметры хранилищ высокоактивных отходов в открытом и замкнутом ЯТЦ. В открытом ЯТЦ широко рассматривается прямое захоронение отработавшего топлива, в замкнутом — захоронение остеклованных отходов в глубинные геологические формации [2]. Возможен и третий способ — с длительной контролируемой выдержкой высокоактивных отходов перед окончательным захоронением в геологические формации или отработавшие и рекультивированные урановые месторождения [3]. Последний вариант допустим в случае достижения радиационного баланса высокоактивных отходов и природного урана, использованного при их наработке. При длительном действии ядерной энергетики радиационно-миграционный баланс активности отходов и сырья достигается лишь с учетом соотношения скорости миграции урана и элементов отходов [4], и окончательное захоронение в глубинные хранилища становится единственно приемлемым.

Длительная контролируемая выдержка высокоактивных отходов перед их окончательным захоронением в начале действия крупномасштабной ядерной энергетики способствует достижению баланса эквивалентной активности отходов и использованного сырья. Последнее помогает достижению приемлемости ядерной энергетики для широкой общественности. При ее длительном функционировании роль контролируемой выдержки снижается, и отходы в некоторых случаях можно захоранивать без этой операции [5].

В статье рассмотрены относительный объем, активность и другие параметры хранилищ высокоактивных отходов в открытом и замкнутом ЯТЦ.

Объем хранилища в открытом ЯТЦ. В настоящее время в мире распространен способ длительного хранения с предполагающимся последующим окончательным захоронением отработавшего ядерного топлива без химической переработки как наиболее экономичный и имеющий меньшие дозовые нагрузки на персонал. Оценим объем хранилища и радиационные характеристики топлива для гипотетической ядерной энергетики мощностью 300 ГВт, состоящей из тепловых реакторов ВВЭР-1000 и РБМК-1000 (по 50%), с открытым ЯТЦ (до $T_{\text{яэ}} \sim 1000$ лет). Оценка нереальна для отдельной страны из-за недостатка топливных ресурсов, но отражает ситуацию в мире при большой энергосыработке (табл. 1). Рассмотрим два случая с временем накопления ($T_{\text{нак}}$) и хранения ($T_{\text{хр}}$) высокоактивных отходов 200 лет в первом и $T_{\text{хр}} = \infty$ во втором случае при времени накопления, равном времени действия ядерной энергетики $T_{\text{яэ}} = 1000$ лет. Первый случай отвечает хранилищу для предварительной контролируемой выдержки, если время выдержки выбрано равным 200 лет. Будем считать, что в предварительное хранилище сразу же поступает отработавшее топливо и после выдержки в нем в течение 200 лет удаляется в хранилище для окончательного захоронения. Такой процесс продолжается 1000 лет. В другом варианте хранилище загружается отработавшим топливом за все принятое время действия ядерной энергетики 1000 лет и хранится там бесконечно длительное время.

Т а б л и ц а 1. Объем хранилища

Реактор	Наработка продуктов деления, т/(ГВт·год)	Выгрузка тяжелых атомов, т/т продуктов деления	$\Sigma M_{\text{д}}, \text{ т}, V_{\text{хр}}, \text{ м}^3$ за $T_{\text{нак}} = 200$ лет ($T_{\text{нак}} = T_{\text{хр}}$)	Глубина выгорания, ГВт·сут/т тяж. ат.	$V_{\text{хр}}, \text{ м}^3$ при $T_{\text{яэ}} = 1000$ лет ($T_{\text{хр}} = \infty$)
ВВЭР-1000	1,159	25,3	$9,99 \cdot 10^5$	37,3	$4,99 \cdot 10^6$
РБМК-1000	1,237	46,1	$1,94 \cdot 10^6$	20,5	$9,75 \cdot 10^6$
Сумма	—	—	$2,94 \cdot 10^6$	—	$1,47 \cdot 10^7$

Масса выгружаемых тяжелых атомов $m_{\text{тяж.ат}} = W/B$ определяется мощностью реактора и средней глубиной выгорания, масса диоксида тяжелых атомов $m_d = m_{\text{тяж.ат}}/g_U$ (массовая доля тяжелых атомов $g_U = 0,88$), объем диоксида $v_d = m_d/\gamma_d$ (плотность диоксида $\gamma_d = 10 \text{ т/м}^3$).

Удельная наработка продуктов деления m_0 соответствует выработке электроэнергии 1 ГВт·год. Полная масса продуктов деления определяется энергоспроизработкой и равна $M_{\text{ПД}} = m_0 W_{\text{эл}} T_{\text{ЯЭ}}$. Полная масса диоксида, идущая в отходы, $M_d = m_d \Sigma M_{\text{ПД}}$, полный объем диоксида в отходах $V_d = v_d \Sigma M_{\text{ПД}}$. Переход от объема диоксида к объему хранилища осуществлен с помощью трех коэффициентов:

отношения объема ячейки размещения ТВС в хранилище к объему диоксида, принятого равным 2,5, как и в активной зоне реактора; операцию уплотнения ТВС, используемую иногда при хранении отработавшего ядерного топлива, не учитывали, так как при таком уплотнении нарушаются барьеры, предотвращающие выход радионуклидов в окружающую среду;

удвоения объема, в котором размещается отработавшее ядерное топливо, так как при временном хранении в хранилище должно быть пространство для загрузки и выгрузки ТВС, при окончательном захоронении должен быть увеличен шаг установки ТВС для размещения дополнительных барьеров (контейнеров, слоев бентонитовой глины и т.п.);

дополнительного удвоения объема для размещения отходов конструкционных материалов, а также различных вспомогательных систем и помещений; общий перечисленный технологический коэффициент составил $K_T = 10$ и объем хранилища $V_{\text{хр}} = K_T \Sigma V_d$.

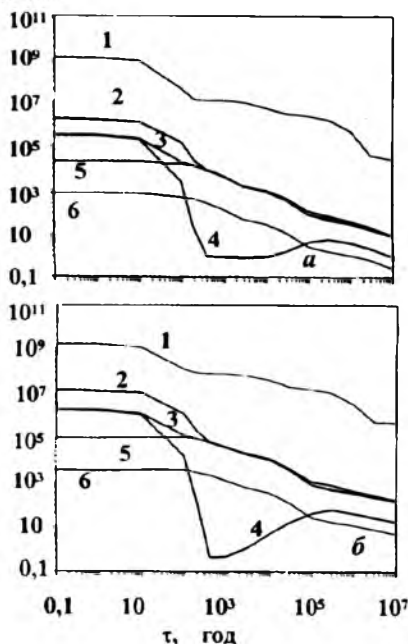
Если хранилище представить в виде куба, то его сторона будет равна 135 м (91/119 м для ВВЭР/РБМК) в случае хранения отходов в течение 200 лет и 231 м (156/204 м ВВЭР/РБМК) при действии ядерной энергетики мощностью 300 ГВт в течение 1000 лет. Параметры глубинного хранилища одни и те же в обоих случаях. Необходимость предварительной выдержки приводит в открытом цикле к созданию дополнительного временного хранилища.

Экономические затраты, связанные с хранилищами в открытом ЯТЦ, определяются не только объемом земляных и строительных работ, но и захоронением большой массы ценного ядерного топлива (урана и плутония) и степенью опасности захораниваемых радионуклидов с учетом времени снижения активности до приемлемого уровня, например, до состояния баланса эквивалентной активности отходов и потребленного природного урана. Временное хранилище становится необходимым для достижения отмеченного условия баланса. Достижение баланса реально при уровне потребления природного урана 200 т/т продуктов деления, что близко к уровню современной энергетики (табл. 2, рисунок).

Т а б л и ц а 2. Активность отходов в открытом ЯТЦ (КМ — конструкционные материалы)

Выдержка, год	$A_{\text{КМ}}, \text{Ки/т}$		$A_{\text{отх}}/V_d, \text{Ки/л}$		$A_{\text{ПД}}, \text{Ки/т,}$
	ВВЭР	РБМК	ВВЭР	РБМК	ВВЭР, РБМК
1	$1,54 \cdot 10^5$	$1,76 \cdot 10^5$	$5,36 \cdot 10^3$	$2,75 \cdot 10^3$	$1,22 \cdot 10^7$
100	$1,14 \cdot 10^3$	$3,17 \cdot 10^3$	484	258	$1,21 \cdot 10^6$
200	559	$1,8 \cdot 10^3$	84,3	41,2	$1,18 \cdot 10^5$
$1 \cdot 10^3$	213	832	14,7	7,73	490
$1 \cdot 10^4$	155	604	3,45	2,35	477
$1 \cdot 10^5$	18,9	59	0,436	0,223	368
$1 \cdot 10^6$	5,7	14,9	0,139	$8,19 \cdot 10^{-2}$	64,1
$1 \cdot 10^7$	0,1	0,25	$1,63 \cdot 10^{-2}$	$3,02 \cdot 10^{-2}$	1,7

А, Ки/т



Активность на 1 т продуктов деления отходов актиноидов ВВЭР-1000 (а) и РБМК-1000 (б) в открытом ЯТЦ: 1 — источник нейтронов, с⁻¹, 2 — суммарная активность высокоактивных отходов, Ки; 3 — суммарная $\alpha + \beta$ -активность актиноидов, Ки; 4 — β -активность, Ки; 5 — α -активность, Ки; 6 — энерговыделение, Вт

спада интенсивности источника нейтронов близок к спаду α -активности. Вклад спонтанного деления в источник нейтронов не превышает 50%.

Масса высокоактивных отходов в открытом и замкнутом ЯТЦ. Результаты расчета наработки высокоактивных отходов (кг/т продуктов деления) в открытом и замкнутом топливном цикле для реакторов перспективной ядерной энергетики приведены в табл. 3 с учетом 0,1% (кроме 1% ^{237}Np) элемента, идущего в отходы. Там же приведено отношение массы нуклидов в отходах открытого и замкнутого цикла.

В первом варианте (ЯЭ-1) в БН-А-800 и ВВЭР-А-1000 циклируют только основные элементы (U, Pu); Np, Am, Cm выделяют из топлива и передают для сжигания в специальный гомогенный реактор-сжигатель БЦМТ. В ЯЭ-2 Np, Am, Cm как собственные, так и из ВВЭР-Б, включая протактиний из последнего, циклируют в БРЕСТ-А. В ВВЭР-Б-1000 с ториевым ЯТЦ циклируют Th, U, Pu. В ЯЭ-3 с теми же реакторами циклируют основные топливные нуклиды, Np, Am, Cm из обоих реакторов и Pa из ВВЭР-Б удаляют в космос. Начальная загрузка реактора БРЕСТ в ЯЭ-2 и -3 состоит из обедненного урана и энергетического плутония ($^{238}\text{Pu}:^{239}\text{Pu}:^{240}\text{Pu}:^{241}\text{Pu}:^{242}\text{Pu} = 0,75:62:26,5:6,4,8\%$), тогда как в быстром реакторе БН и ВВЭР-А используется оружейный плутоний ($^{239}\text{Pu}:^{240}\text{Pu} = 95:5\%$).

Примечания к табл. 3:

повышенное содержание $^{241}, ^{243}\text{Am}$ в открытом ЯТЦ реактора БРЕСТ по сравнению с БН связано с использованием в первом энергетического плутония с большим содержанием ^{242}Pu , в замкнутом ЯТЦ разница массы отходов америция сглаживается, в ЯЭ-3 при удалении Np, Am, Cm в космос содержание америция и других элементов в топливе БРЕСТ и БН сближается и для некоторых нуклидов (^{243}Am) становится даже ниже;

Основной вклад в β -активность в начальном периоде выдержки вносит ^{241}Pu , доля продуктов распада ^{232}U более чем в 1000 раз ниже. Увеличение β -активности в конце выдержки связано с дочерними элементами ^{230}Th , ^{233}U и в меньшей степени ^{231}Pa . Содержание дочерних элементов ^{230}Th , ^{233}U и ^{231}Pa в процессе выдержки топлива непрерывно возрастает. Это связано с постепенным распадом по цепочкам $^{238}\text{U}(\alpha) \rightarrow ^{234}\text{Th}(\beta^-) \rightarrow ^{234}\text{Pa}(\beta^-) \rightarrow ^{234}\text{U}(\alpha) \rightarrow ^{230}\text{Th}$; $^{237}\text{Np}(\alpha) \rightarrow ^{233}\text{Pa}(\beta^-) \rightarrow ^{233}\text{U}$; $^{235}\text{U}(\alpha) \rightarrow ^{231}\text{Th}(\beta^-) \rightarrow ^{231}\text{Pa}$. Дальнейший распад полученных радионуклидов учитывали обобщенно, как полное число α - и β -распадов с периодом полураспада следующего за ^{230}Th , ^{233}U или ^{231}Pa долгоживущего радионуклида, так как все последующие за ним радионуклиды короткоживущие: $^{230}\text{Th}(5\alpha, 4\beta)$, $T_{1/2} = 1600$ лет (^{226}Ra); $^{233}\text{U}(5\alpha, 3\beta)$, $T_{1/2} = 7300$ т (^{229}Th); $^{231}\text{Pa}(4\alpha, 2\beta)$, $T_{1/2} = 21,8$ года (^{227}Ac). Распад ^{232}U учитывается как $^{232}\text{U}(5\alpha, 2\beta)$, $T_{1/2} = 1,91$ года (соответствует ^{228}Th).

Вклад β -излучения существен только в первые 100 лет выдержки. Далее активность актиноидов и энерговыделение почти полностью определяются α -активностью. Источник нейтронов во многом связан с реакцией (α, n) на кислороде, и характер

Т а б л и ц а 3. Соотношение массы нуклидов в отходах открытого и замкнутого ЯТЦ

Вариант, реактор	Откры-тый	Замкну-тый	Отноше-ние	Откры-тый	Замкну-тый	Отноше-ние	Откры-тый	Замкну-тый	Отноше-ние
²³⁷ Np			²⁴¹ Am			^{242m} Am			
ЯЭ-1:									
БН-А	3,76	0,0389	97	0,392	6,7·10 ⁻³	58	4,89·10 ⁻³	1,38·10 ⁻⁴	35
ВВЭР-А	9,59	0,0847	113	0,708	1,4·10 ⁻³	51	0,018	4,02·10 ⁻⁵	448
ЯЭ-2:									
БРЕСТ	2,82	0,0741	38	15	0,0344	436	0,32	1,42·10 ⁻³	225
ВВЭР-Б	0,0525	0,0807	0,65	4,06·10 ⁻⁷	9,84·10 ⁻⁴	4,7·10 ⁻⁴	7,36·10 ⁻⁹	3,13·10 ⁻⁵	2,4·10 ⁻⁴
ЯЭ-3:									
БРЕСТ	2,81	0,0315	89	15	0,0125	1,2·10 ³	0,32	2,5·10 ⁻⁴	1,28·10 ³
ВВЭР-Б	0,0525	0,0807	0,65	4,06·10 ⁻⁷	9,84·10 ⁻⁴	4,7·10 ⁻⁴	7,36·10 ⁻⁹	3,13·10 ⁻⁵	2,4·10 ⁻⁴
²⁴³ Am			²⁴² Cm			²⁴³ Cm			
ЯЭ-1:									
БН-А	0,0291	8,4·10 ⁻³	3,5	0,0281	7·10 ⁻⁴	40	1,01·10 ⁻³	4,14·10 ⁻⁵	24
ВВЭР-А	1,45	0,0209	69	0,297	8,16·10 ⁻⁴	364	0,01	4,61·10 ⁻⁵	217
Я-2:									
БРЕСТ	10	0,0201	498	0,777	1,98·10 ⁻³	392	0,0446	2,59·10 ⁻⁴	172
ВВЭР-Б	2,68·10 ⁻⁷	2,04·10 ⁻²	1,31·10 ⁻⁵	9,04·10 ⁻⁸	7,27·10 ⁻⁴	1,24·10 ⁻⁴	1,47·10 ⁻⁹	4,92·10 ⁻⁵	3,03·10 ⁻⁵
ЯЭ-3:									
БРЕСТ	10	5,61·10 ⁻³	1,78·10 ³	0,777	6,29·10 ⁻⁴	1,24·10 ³	0,0446	3,41·10 ⁻⁵	1,3·10 ³
ВВЭР-Б	2,68·10 ⁻⁷	0,0204	1,31·10 ⁻⁵	9,04·10 ⁻⁸	7,27·10 ⁻⁴	1,24·10 ⁻⁴	1,47·10 ⁻⁹	4,92·10 ⁻⁵	3,03·10 ⁻⁵
²⁴⁴ Cm			²²⁹ Th			²³⁰ Th			
ЯЭ-1:									
БН-А	2,16·10 ⁻³	1,43·10 ⁻³	1,5	2,4·10 ⁻¹¹	1,3·10 ⁻¹²	18	4,02·10 ⁻⁸	3,2·10 ⁻⁹	13
ВВЭР-А	0,421	0,0153	27	1,42·10 ⁻⁹	3,25·10 ⁻⁶	4,37·10 ⁻⁴	5,05·10 ⁻⁵	7,87·10 ⁻⁷	64
ЯЭ-2:									
БРЕСТ	1,54	9,76·10 ⁻³	158	2,5·10 ⁻¹⁰	1,7·10 ⁻¹¹	15	2,83·10 ⁻⁶	7,61·10 ⁻⁸	37
ВВЭР-Б	3,71·10 ⁻⁸	0,015	2,47·10 ⁻⁶	6,54·10 ⁻³	1,94·10 ⁻⁴	34	0,0365	8,36·10 ⁻⁴	44
ЯЭ-3:									
БРЕСТ	1,54	8,52·10 ⁻⁴	1,82·10 ³	2,5·10 ⁻¹⁰	3,9·10 ⁻¹²	64	2,83·10 ⁻⁶	1,69·10 ⁻⁸	167
ВВЭР-Б	3,71·10 ⁻⁸	0,015	2,47·10 ⁻⁶	6,54·10 ⁻³	1,94·10 ⁻⁴	34	0,0365	8,36·10 ⁻⁴	44
²³¹ Pa			²³² U			²³⁸ Pu			
ЯЭ-1:									
БН-А	3,7·10 ⁻⁸	5,2·10 ⁻¹²	7,16·10 ³	1,4·10 ⁻⁵	2,48·10 ⁻⁷	56	1,014	4,43·10 ⁻⁴	2,3·10 ³
ВВЭР-А	9,87·10 ⁻⁷	8,2·10 ⁻¹²	1,21·10 ⁵	1,36·10 ⁻⁵	4,53·10 ⁻⁵	0,3	2,47	6,55·10 ⁻⁴	3,77·10 ³
ЯЭ-2:									
БРЕСТ	9,03·10 ⁻⁸	1,6·10 ⁻¹¹	5,8·10 ³	6,98·10 ⁻⁵	6,14·10 ⁻⁷	114	9,62	2,78·10 ⁻³	3,46·10 ³
ВВЭР-Б	2,05	2,05·10 ⁻³	1·10 ³	0,672	2,95·10 ⁻³	228	6,93·10 ⁻³	6,54·10 ⁻⁴	10,6
ЯЭ-3:									
БРЕСТ	9,03·10 ⁻⁸	1,2·10 ⁻¹¹	7,3·10 ³	6,98·10 ⁻⁵	1,47·10 ⁻⁷	5	9,62	5,67·10 ⁻⁴	1,7·10 ⁴
ВВЭР-Б	2,05	2,05·10 ⁻³	1·10 ³	0,672	2,95·10 ⁻³	23	6,93·10 ⁻³	6,54·10 ⁻⁴	10,6

в U—Pu-открытом ЯТЦ (БН-А, ВВЭР-А, БРЕСТ-А) накопление Np, Am, Cm в ЯТЦ происходит достаточно эффективно и отношение к массе отходов в замкнутом ЯТЦ всегда > 1 (имеет порядок единиц, десятков или сотен), в то же время в Th—U-цикле их накопление в открытом ЯТЦ при однократном облучении мало и отношение к массе в замкнутом ЯТЦ < 1 , так как при циклировании масса тяжелых нуклидов возрастает во много раз;

в ториевом открытом ЯТЦ велико накопление опасных ^{229}Th , ^{230}Th , ^{231}Pa , ^{232}U против их накопления в U—Pu-открытом ЯТЦ, в ториевом открытом цикле в заметном количестве накапливаются и ^{238}Pu , и ^{237}Np , отношение массы легких нуклидов в открытом ЯТЦ к массе в замкнутом ЯТЦ в ториевом цикле всегда > 1 , что свидетельствует в пользу замкнутого ЯТЦ (табл. 4).

Т а б л и ц а 4. Полная масса нуклидов в отходах (см. табл. 3)

Реактор и вариант ядерной энергетики	Σm_i , кг/т		$\Sigma W_{эл}$, ГВт (брутто)	$\Sigma W_{эл} T_{ЯЭ}$, ГВт·год (за все этапы)	$\Sigma m_i M_{пд}$, 10^{-3} т		
	Цикл				Цикл		
	откры- тый	замкну- тый			откры- тый	замкну- тый	отноше- ние
БН-А	5,23	0,0568	201,3	$6,38 \cdot 10^5$	$3,15 \cdot 10^3$	34,2	92
ВВЭР-А	15	0,124	78,7	$2,49 \cdot 10^5$	$4,32 \cdot 10^3$	35,7	121
Итого в ЯЭ-1	—	—	280	$8,87 \cdot 10^5$	$7,47 \cdot 10^3$	69,9	107
БРЕСТ-А	40,1	0,145	224,2	$8,99 \cdot 10^5$	$3,18 \cdot 10^4$	115	277
ВВЭР-Б	2,82	0,125	55,8	$2,23 \cdot 10^5$	731	32,3	23
Итого в ЯЭ-2	—	—	280	$11,22 \cdot 10^5$	$3,25 \cdot 10^4$	147	221
БРЕСТ-А	40,1	0,0519	224,2	$3,04 \cdot 10^5$	$1,08 \cdot 10^4$	13,9	773
ВВЭР-Б	2,82	0,125	55,8	$7,57 \cdot 10^4$	249	11	23
Итого в ЯЭ-3	—	—	280	$3,8 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^4$	24,9	442

Суммарная масса отходов нуклидов, перечисленных в табл. 3, за время действия разных вариантов ядерной энергетики в замкнутом ЯТЦ невелика и равна 25—150 т, в открытом ЯТЦ она выше в 100—400 раз. Заметим, что принципиальная нежелательность работы в открытом ЯТЦ определяется не столько повышением массы отходов актиноидов, сколько их более высокой активностью и отсутствием топливных ресурсов для длительной работы крупномасштабной ядерной энергетики.

Представляет интерес полная масса в отходах основных актиноидов от тория до калифорния (табл. 5). Основную массу отходов актиноидов (96—99%) составляет уран в U—Pu- или торий в Th—U-цикле. Масса Np, Am, Cm в табл. 5 имеет тот же порядок величины, что и в табл. 4, различия связаны с набором нуклидов.

Т а б л и ц а 5. Полная масса в отходах актиноидов, накопленных в замкнутом ЯТЦ при развитии, работе и выводе из действия ядерной энергетики и доле в отходах, указанной в табл. 3

Реактор и вариант ядерной энергетики	Актиноиды, кг/т продуктов деления	Продукты деления, т	Актиноиды, т	$M_{\text{U(Th)+Pu}}$, т	$M_{\text{U(Th)}}$, т	$M_{\text{Np,Am,Cm+Pu+Pa}}$, т	$M_{\text{Np,Am,Cm}}$, т
БН-А	9,39	$6,02 \cdot 10^5$	$5,65 \cdot 10^3$	5613	5500	150	36,6
ВВЭР-А	19,5	$2,88 \cdot 10^5$	$5,61 \cdot 10^3$	5572	5560	50	38,1
Итого в ЯЭ-1	—	—	$1,126 \cdot 10^4$	—	—	—	74,7
БРЕСТ-А	9,49	$7,93 \cdot 10^5$	$7,53 \cdot 10^3$	7406	7260	270	124
ВВЭР-Б	19,6	$2,59 \cdot 10^5$	$5,08 \cdot 10^3$	5038	4880	200	42
Итого в ЯЭ-2	—	—	$1,261 \cdot 10^4$	—	—	—	166
БРЕСТ-А	9,5	$2,68 \cdot 10^5$	$2,55 \cdot 10^3$	2521	2470	80	29
ВВЭР-Б	19,6	$8,8 \cdot 10^4$	$1,72 \cdot 10^3$	1660	1660	60	60
БН-А	—	$7,92 \cdot 10^3$	74,4	73,9	72,3	2,1	0,5
Итого в ЯЭ-3	—	—	$4,34 \cdot 10^3$	—	—	—	89

Активность отходов и параметры хранилища. В табл. 6 приведена $\alpha + \beta$ -активность отходов актиноидов для реакторов в трех вариантах перспективной ядерной энергетики при нормировке на энерговыработку, равную 1 т продуктов деления, или на энерговыработку, соответствующую периодам развития, работы и вывода из действия ядерной энергетики. Доля в отходах составляет, %: Pu 0,01, U, Th, Pa, Am, Cm 0,1, Np 1, Bk, Cf 100 (100% для Th, Pa в урановом цикле). При размещении отходов в приповерхностном хранилище для длительной контролируемой выдержки активность исходных отходов рассматривалась при времени выдержки $\tau = 1$ год после переработки. Перед химической переработкой отработавшее ядерное топливо выдерживали 3 года.

Т а б л и ц а 6. Активность отходов актиноидов, поступающих в хранилище

Реактор, вариант	Актиноиды, Ки/т		Масса продуктов деления, т		Активность актиноидов		
					Ки/200 лет	Ки за все этапы	
	$\tau = 1$ год	$\tau = 200$ лет	все этапы	200 лет	$\tau = 1$ год	$\tau = 200$ лет	$\tau = 1$ год
БН-А	1134	104	$6,01 \cdot 10^5$	$3,8 \cdot 10^4$	$4,31 \cdot 10^7$	$6,24 \cdot 10^7$	$6,82 \cdot 10^8$
ВВЭР-А	1514	40,8	$2,91 \cdot 10^5$	$1,83 \cdot 10^4$	$2,77 \cdot 10^7$	$1,19 \cdot 10^7$	$4,4 \cdot 10^8$
БЦМТ	$1,42 \cdot 10^4$	679	$2,79 \cdot 10^4$	1765	$2,51 \cdot 10^7$	$1,9 \cdot 10^7$	$4,46 \cdot 10^8$
Итого в ЯЭ-1	—	—	$9,2 \cdot 10^5$	$5,81 \cdot 10^4$	$9,59 \cdot 10^7$	$9,33 \cdot 10^7$	$1,57 \cdot 10^9$
БРЕСТ-А	2093	217	$7,94 \cdot 10^5$	$3,95 \cdot 10^4$	$8,27 \cdot 10^7$	$1,72 \cdot 10^8$	$1,66 \cdot 10^9$
ВВЭР-Б	1454	36,4	$2,6 \cdot 10^5$	$1,31 \cdot 10^4$	$1,9 \cdot 10^7$	$9,48 \cdot 10^6$	$3,79 \cdot 10^8$
Итого в ЯЭ-2	—	—	$1,05 \cdot 10^6$	$5,25 \cdot 10^4$	$1,02 \cdot 10^8$	$1,81 \cdot 10^8$	$2,04 \cdot 10^9$
БРЕСТ-А	349	95	$2,68 \cdot 10^5$	$3,95 \cdot 10^4$	$1,38 \cdot 10^7$	$2,55 \cdot 10^7$	$9,37 \cdot 10^7$
ВВЭР-Б	1454	36,4	$8,83 \cdot 10^4$	$1,31 \cdot 10^4$	$1,9 \cdot 10^7$	$3,22 \cdot 10^6$	$1,29 \cdot 10^8$
БН-А	1134	104	$7,92 \cdot 10^3$	$7,92 \cdot 10^3$	$8,98 \cdot 10^6$	$8,22 \cdot 10^5$	$8,98 \cdot 10^6$
Итого в Я-3	—	—	$3,64 \cdot 10^5$	$6,05 \cdot 10^4$	$4,18 \cdot 10^7$	$2,95 \cdot 10^7$	$2,31 \cdot 10^8$

Объем глубинного геологического хранилища для окончательного захоронения высокоактивных отходов оценивали в двух вариантах:

отходы актиноидов и продуктов деления поступают в хранилище при времени выдержки 1 год, начальная удельная активность отходов 10^3 Ки/л;

отходы с временем выдержки 1 год поступают вначале в хранилище для длительной контролируемой выдержки, в котором находятся в течение 200 лет, затем переводятся в хранилище для окончательного захоронения, при этом активность отходов рассчитывается с учетом выдержки 200 лет при начальной удельной активности 10^3 Ки/л, достигаемой за счет повторной переработки отходов с компактированием.

В табл. 7 приведена активность продуктов деления и отходов, накапливаемая в рассматриваемых реакторах на этапах развития, работы и вывода из действия, для двух вариантов формирования хранилища для окончательного захоронения отходов — для времени выдержки 1 год или 200 лет с учетом выделения 99,9% Sr и 99% Cs для полезного использования и 99,9% I и 99% Tc для трансмутации. Объем отходов, включающих актиноиды и продукты деления, определяли как $V_{отх} = A_{отх}/A_{0,отх}$, где $V_{отх}$ — объем матрицы внутри контейнера отходов, л; $A_{0,отх} = 10^3$ Ки/л — технологически допустимая удельная активность отходов внутри оболочки контейнера. Для матрицы отходов допустимая удельная активность зависит от выбранной технологии их упаковки. Так, в случае длительного контролируемого хранения и размещения отходов в пористых керамических или металлических матрицах технологически до-

Т а б л и ц а 7. Активность высокоактивных отходов и параметры хранилища для длительной контролируемой выдержки (ДКВ) и окончательного захоронения отходов (ОЗО)

Вариант ядерной энергетики	$V_{\text{ДКВ}} = V_{\text{отх}} K_T$, м ³ ($\tau = 1$ год)	$A_{\text{отх}}$, Ки/все этапы ($\tau = 1$ год)	$V_{\text{ОЗО}}$, м ³ /все этапы ($\tau = 1$ год)	$V_{\text{ОЗО}} / M_{\text{ПД}}$, м ³ /т ($\tau = 1$ год)	$V_{\text{ОЗО}} = V_{\text{отх}} K_T$, м ³ ($\tau = 200$ лет)	$V_{\text{ОЗО}}(1 \text{ год}) / V_{\text{ОЗО}}$ (200 лет)
ЯЭ-1	$5,51 \cdot 10^4$	$1,43 \cdot 10^{11}$	$8,73 \cdot 10^5$	0,95	$1,12 \cdot 10^5$	7,8
ЯЭ-2	$5,5 \cdot 10^4$	$1,81 \cdot 10^{11}$	$1,1 \cdot 10^6$	1,04	$1,42 \cdot 10^5$	7,75
ЯЭ-3	$6,26 \cdot 10^4$	$5,96 \cdot 10^{10}$	$3,78 \cdot 10^5$	1,04	$4,89 \cdot 10^4$	7,73

пустимая удельная активность составляет 10^4 Ки/л, тогда как при остекловывании она снижается до 10^2 Ки/л или ниже. Для оценки объемов хранилищ принята промежуточная удельная активность 10^3 Ки/л. Используется также технологический коэффициент, равный отношению объема хранилища к объему активной части отходов $K_T = V_{\text{хр}} / V_{\text{отх}} \approx 6$. При длительном контролируемом хранении и воздушном охлаждении отходы в какой-либо химической форме можно размещать, например, в стальных трубах наружным диаметром 200, толщиной стенки 10 мм по треугольной решетке с шагом 220 мм, при этом объем ячейки в $K_1 = 1,5$ раза превышает объем высокоактивных отходов. Дополнительные коэффициенты учитывают возможность загрузки и выгрузки труб ($K_2 = 2$) и размещение вспомогательного оборудования и помещений ($K_3 = 2$). Такой же технологический коэффициент ($K_T = 6$) принят для хранилища окончательного захоронения отходов, причем основной вклад вносит существенно большее отношение объема ячейки к объему активной части высокоактивных отходов.

Выводы. В замкнутом ЯТЦ объем хранилища для окончательного захоронения отходов (в варианте с предварительной выдержкой отходов) в 300 раз меньше, чем в открытом ЯТЦ с захоронением отработавшего ядерного топлива без переработки. Использование хранилища для предварительной длительной контролируемой выдержки в течение 200 лет в 8 раз сокращает объем хранилища для окончательного захоронения отходов при сохранении удельной активности отходов при поступлении в это хранилище на том же уровне, что и при поступлении в хранилище для предварительной выдержки.

Помимо сокращения почти в 10 раз объема глубинного геологического хранилища введение в ЯТЦ хранилища для длительной контролируемой выдержки отходов позволяет решить экологическую задачу достижения баланса эквивалентной активности отходов и активности добытых из недр сырьевых материалов перед окончательным захоронением отходов. В хранилище поступают свежие высокоактивные отходы продуктов деления и актиноидов. Поэтому его объем лишь в 2 раза меньше объема хранилища для окончательного захоронения в вариантах ЯЭ-2 и -3 и в 1,3 раза превышает его в ЯЭ-3, где использован БН-800, введенный для сокращения добычи природного урана на этапе развития ядерной энергетики.

Таким образом, оптимальным решением для крупномасштабной ядерной энергетики является создание двух хранилищ высокоактивных отходов — приповерхностного для длительной контролируемой выдержки и глубинного для окончательного захоронения с соблюдением принципа радиационно-миграционного баланса эквивалентной активности отходов и потребленных сырьевых материалов.

При длительном действии ядерной энергетики, работающей в режиме самообеспечения делящимся материалом, необходимость в хранилище для контролируемой вы-

держки может отпасть ввиду длительного неконтролируемого хранения большой массы долгоживущих радионуклидов в глубинном хранилище и баланса активности отходов и сырья.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др. Минимизация высокоактивных отходов при функционировании крупномасштабной ядерной энергетики России. — Атомная энергия, 1997, т. 82, вып. 3, с. 209—218.
2. Энергетика для будущего мира. Реальность, возможность выбора и программа действий. М., Комиссия МИРЭС, 1995.
3. Adamov E.O., Ganey I.Kh., Orlov V.V. Attainment of radiation equivalency in nuclear power radioactive product management. — Nucl. Technol., 1993, v. 104, №2, p. 233—241.
4. Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др. Обращение с высокоактивными отходами при развитии, работе и выводе из действия крупномасштабной ЯЭ России: Препринт НИКИЭТ ЕТ-97/35, 1997.
5. Adamov E.O., Ganey I.Kh., Lopatkin A.V. et al. The raw material and waste activity balance in the projected nuclear power of Russia. — Nucl. Engng Design, 1997, v. 173, p. 277—291.

Поступила в Редакцию 24.04.98

УДК 546.110.23:541.128

ОЧИСТКА ВОДНЫХ ПОТОКОВ ОТ ТРИТИЯ МЕТОДОМ ХИМИЧЕСКОГО ИЗОТОПНОГО ОБМЕНА ВОДОРОДА С ВОДОЙ

*Сахаровский Ю.А., Розенкевич М.Б., Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П.,
Пак Ю.С., Никитин Д.М., Хайруллин И.З., Уборский В.В.*

(Российский химико-технологический университет им. Д.И.Менделеева)

Развитие ядерной энергетики связано с необходимостью решения экологических проблем, в частности, улавливания и переработки радиоактивных отходов, образующихся на предприятиях ядерной индустрии. Среди содержащихся в них радионуклидов тритий занимает заметное место [1]. Он образуется при эксплуатации ядерного реактора и может накапливаться как в теплоносителе, так и в технологических потоках на заводах по переработке отработавшего ядерного топлива. Например, для завода, перерабатывающего в год 1500 т топлива, выбросы трития могут составить около 1 МКи, что близко к количеству трития, образующегося на Земле за счет естественных источников [2]. Следует отметить, что содержание трития в технологических потоках составляет 0,001—10 Ки/л, оценки этих потоков дают значения от сотен до тысяч кубометров в год [3]. Поскольку DK_B для трития составляет $3,2 \cdot 10^{-6}$ Ки/л [2] (в соответствии с НРБ-96 допустимая для населения удельная активность воды еще в 4 раза меньше [4]), становится очевидной нецелесообразность простого разбавления. Кроме того, при наличии эффективной технологии переработки в некоторых случаях потоки могут служить сырьем для производства трития как товарного продукта.

Анализ показывает, что впервые тритий из водных потоков был локализован во Франции [5], затем в более крупном масштабе в Канаде [6] по технологии, основанной на предварительном переводе из воды в водород (с помощью каталитической реакции изотопного обмена водорода с парами воды) с последующей низкотемпературной ректификацией. Однако этот метод имеет существенные недостатки:

ректификация при 20 К требует сложного оборудования и дорогих конструкционных материалов;