

УДК 621.039.519

СТЕПЕНЬ ПРИБЛИЖЕНИЯ К РАДИАЦИОННОЙ ЭКВИВАЛЕНТНОСТИ ВЫСОКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ И ПРИРОДНОГО УРАНА В ТОПЛИВНОМ ЦИКЛЕ ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ РОССИИ

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

Имеющихся на складах запасов ~ 300 тыс.т обедненного и регенерированного урана было бы достаточно для обеспечения ~ 150-миллионного населения России электрической мощностью ~ 2 кВт/чел. в течение ~ 1000 лет в том случае, если бы уже функционировала крупномасштабная ядерная энергетика электрической мощностью ~ 300 ГВт. Подобная энергетика в России может быть развита за 90—120 лет при использовании запасов оружейного (~ 780 т), энергетического (~ 100 т) урана и плутония и природного урана (~ 600 тыс.т). Возможен и вариант развития без добычи природного урана. После окончания этапа развития ядерная энергетика сможет работать без добычи природного урана 3—4 тыс. лет либо ~ 1000 лет в варианте без природного урана на этапе развития.

Такое ресурсное обеспечение крупномасштабной ядерной энергетике, способной заместить в следующем веке до 30% всех видов сжигаемого органического топлива и приостановить рост потребления этого топлива, дополняется широко известными экологическими преимуществами, которые проявляются при безаварийной работе АЭС. Такого состояния можно достичь развитием двух направлений. Первое — создание реакторов, безопасность которых основана на законах природы, с детерминистическим исключением тяжелых аварий со значительным радиоактивным выбросом в окружающую среду (см., например, работы [1, 2]). Существенно повышается в настоящее время и безопасность имеющихся типов реакторов (ВВЭР, РБМК, быстрых и др.). Второе направление — совершенствование ядерного топливного цикла с постепенным переходом к перспективному трансмутационному, позволяющему значительно снизить активность окончательно захораниваемых долгоживущих отходов. При разработке трансмутационного топливного цикла может быть сделана попытка максимального сближения активности извлеченного из недр урана и радиационно эквивалентной по воздействию на человека активности отходов, т.е. попытка возвращать в недра примерно столько же активности, сколько было взято из них. Не исключается, что этот возврат окажется возможным осуществить в отработанные и рекультивированные урновые месторождения с восстановлением локального радиационного равновесия или изучаемые в настоящее время глубокие геологические хранилища, если это окажется более приемлемым.

Перечисленные и другие вопросы, касающиеся обращения с высокоактивными отходами в ядерной энергетике, авторы намерены рассмотреть в нескольких публикациях. В настоящей статье рассматривается радиационная эквивалентность высокоактивных отходов и природного урана, применяемого в современных реакторах в условиях открытого топливного цикла или топливного цикла с использованием урана и плутония [3].

Радиационная эквивалентность высокоактивных долгоживущих отходов и природного урана. Отнесем к таким отходам окончательно захораниваемые средне-

($T_{1/2} \sim 30\text{—}90$ лет) и долгоживущие топливные нуклиды-актиноиды, продукты деления и активированные в нейтронном поле конструкционные материалы.

Широко применяется такая мера токсичности отходов, как количество воды или воздуха, необходимое для разбавления 1 Ки нуклида до допустимой концентрации [4]. Данная оценка требует уточнения и совершенствования, однако в первом приближении будем ее применять в относительном, а не в абсолютном виде.

Пусть в некотором объеме воды допустима активность 1 Бк природного урана, в то время как для i -го нуклида в том же объеме допустимо $K_{\text{ради}}^i$ Бк. Если $K_{\text{ради}}^i > 1$, то распад нуклида менее опасен распаду урана и реальную активность нуклида нужно снизить в $K_{\text{ради}}^i$ раз, чтобы получить активность, радиационно эквивалентную активности урана. При $K_{\text{ради}}^i < 1$ распад нуклида опаснее распаду урана и его реальную активность следует увеличить в $1/K_{\text{ради}}^i$ раз для сравнения с реальной активностью урана.

Радиационные коэффициенты нуклидов, равные допустимому числу распадов i -го нуклида в объеме, где допустим 1 распад природного урана, определяли по данным [5] в виде $K_{\text{ради}}^i = DK_i/DK_U$, где DK_i , DK_U — допустимая концентрация i -го нуклида и природного урана (Ки/л воды) для населения группы Б, не подвергающейся профессиональному облучению. Выбор в качестве среды воды связан с ее основной ролью при миграции нуклидов из мест окончательного захоронения к биосфере.

Радиационно эквивалентную активность долгоживущих высокоактивных отходов ($A_{\text{р.экв.отх}}$) определяли в зависимости от времени выдержки τ по формуле

$$A_{\text{р.экв.отх}}(\tau) = \sum_i A_{\text{р.экв.}i}(\tau); A_{\text{р.экв.}i}(\tau) = A_i(\tau) \xi / K_{\text{ради}}^i,$$

где $A_i(\tau)$ — нарабатываемая в нейтронном поле реактора активность нуклида; ξ — доля нуклидов, идущая в отходы. Суммирование распространяется на все категории нуклидов (актиноиды, продукты деления, конструкционные материалы).

Активность отходов нормировали на энерговыработку, равную 1 т продуктов деления, что близко к 1 ГВт·год или около 7 ТВт·ч.

Для современной ядерной энергетики со средней глубиной выгорания $\sim 0,5\%$ потребление природного урана для выработки 1 т продуктов деления близко к $M_U \sim 200$ т. Активность 1 т природного урана, определенная с учетом первых четырех членов семейства ^{238}U и первых двух членов семейства ^{235}U , $A_{U,0} = 1,365$ Ки/т. Остальные члены радиоактивных семейств не учитывали, так как их материнскими ядрами становились долгоживущие ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{231}Pa , остающиеся в отвалах после извлечения урана.

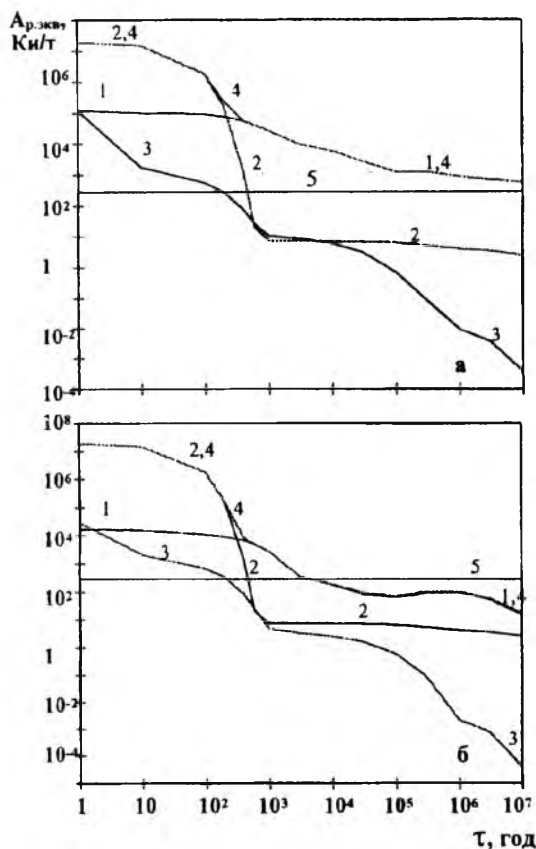
Радиационная эквивалентность при выдержке долгоживущих высокоактивных отходов достигается при постепенном спаде активности отходов до уровня использованного урана $A_U = A_{U,0} M_U$. Отношение этих активностей $S = 1$ при достижении равенства $A_{\text{р.экв.отх}}(\tau_{01}) = A_U$ при времени выдержки τ_{01} . С учетом меньшей примерно в 10 раз в среднем по элементам отходов скорости их миграции из мест окончательного захоронения к биосфере [6] допустимо рассматривать и время выдержки τ_{02} , соответствующее $S = 10$, когда активность захораниваемых отходов в 10 раз выше активности природного урана. При этом эквивалентность отходов и урана достигается по двум параметрам — радиационной эквивалентности и скорости миграции.

Радиационно эквивалентная активность долгоживущих высокоактивных отходов современных реакторов. Активность актиноидов определяли по программе [7] с учетом того, что в отходы поступает по 1,5% урана и плутония топлива ВВЭР-440 и БН-800, работающих с топливным циклом БН-600. Для РБМК-1000 и ВВЭР-1000 предполагалось, что в отходы поступают все актиноиды. В отходы направляются также продукты деления и активированные конструкционные материалы всех реакторов. Расчет активности последних проводился по программе [8] с константным обеспечением на основе [9] и оценок авторов. Спектр и плотность потока нейтронов определяли с использованием программ [10, 11 и др.].

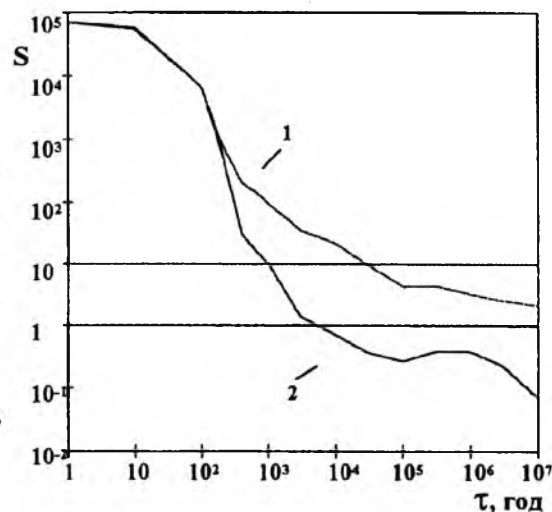
При расчете активности продуктов деления учитывали выгорание нуклидов при их облучении в активных зонах тепловых реакторов, что особенно важно для ^{151}Sm и ^{135}Cs (через ^{135}Xe), — снижение активности примерно в 40 и в 5 раз соответственно. В быстрых реакторах выгорание продуктов деления не учитывали. Уран ВВЭР-440 и БН-600 однократно используется в РБМК, плутоний хранится на складе и применяется в случае развития ядерной энергетики.

На рис. 1 приведена радиационно эквивалентная активность отходов в сумме и в виде отдельных компонентов, на рис. 2 — отношение активности отходов и природного урана. Пересечение кривых с $S = 1$ или $S = 10$ дает время выдержки до достижения радиационной (τ_{01}) или радиационной миграционной эквивалентности (τ_{02}). Аналогичные данные для РБМК-1000 приведены на рис. 3, для БН-800, работающего с топливным циклом БН-600 с загрузкой обогащенным ураном, — на рис. 4.

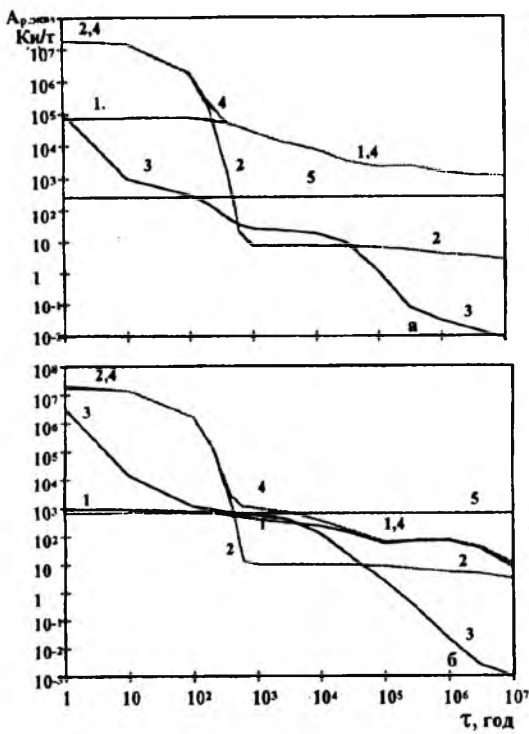
Усредненная активность отходов реакторов современного ЯТЦ. Рассмотрим ядерную энергетику, состоящую из ВВЭР, РБМК и быстрых (табл. 1). Усреднение активности отходов продуктов деления, актиноидов и конструкционных материалов приведено в табл. 2. Основной вклад в электрическую мощность вносят РБМК. Наиболее велико влияние этих реакторов в усредненных данных по отходам ядерной энергетики.



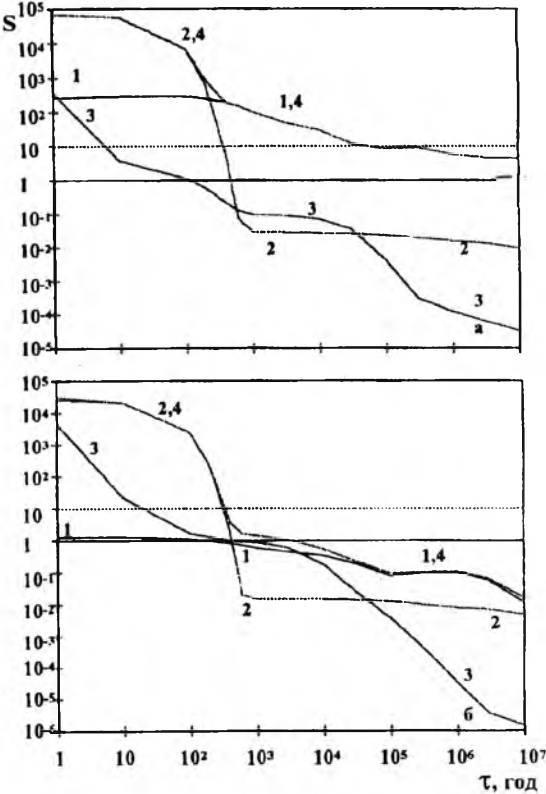
Р и с. 1. Радиационно эквивалентная активность высокоактивных отходов ВВЭР-1000 (а) и -440 (б): 1 — актиноиды; 2 — продукты деления; 3 — конструкционные материалы; 4 — сумма; 5 — активность природного урана, использованного для наработки 1 т продуктов деления



Р и с. 2. Отношение радиационно эквивалентной активности высокоактивных отходов ВВЭР-1000 (1) и -440 (2) и природного урана



Р и с. 3. Радиационно эквивалентная активность высокоактивных отходов РБМК-1000 (а) и быстрого реактора (б): 1 — актиноиды; 2 — продукты деления; 3 — конструкционные материалы; 4 — сумма; 5 — активность природного урана, использованного для наработки 1 т продуктов деления



Р и с. 4. Отношение радиационно эквивалентной активности высокоактивных отходов и природного урана для РБМК-1000 (а), быстрого реактора (б) и компонентов отходов: 1 — актиноиды; 2 — продукты деления; 3 — конструкционные материалы; 4 — сумма

Т а б л и ц а 1. Данные по реакторам ядерной энергетики России

Реактор	Число реакторов	$W_{эл}, ГВт$	$\sum W_{эл}$	Доля $W_{эл}$ ($\epsilon = W_{эл} / \sum W_{эл}$)	АЭС	Число блоков
ВВЭР-440	6	0,44	2,64	0,124	Кольская, Нововоронежская	4 2
ВВЭР-1000	7	1	7	0,33	Балаковская, Калининская, Нововоронежская	3 2 1
РБМК-1000	11	1	11	0,518	Кольская, Смоленская, Ленинградская	4 3 4
БН-600	1	0,6	0,6	0,0282	Белоярская	1
Сумма			21,24	1,0		

Т а б л и ц а 2. Зависимость радиационно эквивалентной активности высокоактивных отходов при нормировании на 1 т продуктов деления (Ки/т) от времени выдержки τ

τ , год	ВВЭР-400, $\epsilon=0,124$	ВВЭР-1000, $\epsilon=0,33$	РБМК-1000, $\epsilon=0,518$	БН-600, $\epsilon=0,028$	В среднем по реакторам
Продукты деления					
1	$1,88 \cdot 10^7$	$1,88 \cdot 10^7$	$1,88 \cdot 10^7$	$1,74 \cdot 10^7$	$1,876 \cdot 10^7$
200	$1,66 \cdot 10^5$	$1,66 \cdot 10^5$	$1,66 \cdot 10^5$	$1,53 \cdot 10^5$	$1,656 \cdot 10^5$
10^3	7,7	7,51	7,62	10,3	7,67
10^5	6,71	6,54	6,5	8,66	6,6
10^7	2,69	2,63	2,67	3,34	2,68
Актиноиды					
1	$1,7 \cdot 10^4$	$1,22 \cdot 10^5$	$6,91 \cdot 10^4$	936	$7,82 \cdot 10^4$
200	$9,18 \cdot 10^3$	$7,68 \cdot 10^4$	$6,46 \cdot 10^4$	686	$6,01 \cdot 10^4$
10^3	$2,72 \cdot 10^3$	$2,73 \cdot 10^4$	$2,77 \cdot 10^4$	410	$2,37 \cdot 10^4$
10^5	62,9	$1,23 \cdot 10^3$	$2,23 \cdot 10^3$	53,9	$1,56 \cdot 10^3$
10^7	15,6	592	$1,16 \cdot 10^3$	8	798
Конструкционные материалы					
1	$2,88 \cdot 10^4$	$1,21 \cdot 10^5$	$9,81 \cdot 10^4$	$3,19 \cdot 10^6$	$1,84 \cdot 10^5$
200	337	281	156	912	241
10^3	5,09	11	26,3	590	34,4
10^5	0,608	0,71	1,12	2,48	0,959
10^7	$3,8 \cdot 10^{-5}$	$3,6 \cdot 10^{-4}$	$8,7 \cdot 10^{-3}$	10^{-3}	$4,7 \cdot 10^{-3}$
Высокоактивные отходы — сумма					
1	$1,88 \cdot 10^7$	$1,9 \cdot 10^7$	$1,9 \cdot 10^7$	$2,06 \cdot 10^7$	$1,9 \cdot 10^7$
200	$1,76 \cdot 10^5$	$2,43 \cdot 10^5$	$2,31 \cdot 10^5$	$1,55 \cdot 10^5$	$2,26 \cdot 10^5$
10^3	$2,73 \cdot 10^3$	$2,73 \cdot 10^4$	$2,77 \cdot 10^4$	$1,01 \cdot 10^3$	$2,42 \cdot 10^4$
10^5	70,2	$1,23 \cdot 10^3$	$2,24 \cdot 10^3$	65	$1,57 \cdot 10^3$
10^7	18,3	595	$1,17 \cdot 10^3$	11,3	801

Активность продуктов деления быстрых реакторов в начале выдержки много ниже, в конце — немного выше, чем в других реакторах, но вклад быстрых реакторов мал из-за их малой доли. Активность актиноидов ВВЭР-1000 в начале выдержки примерно вдвое выше, в конце — вдвое ниже, чем в РБМК, что связано с составом актиноидов. В реакторах с химической переработкой топлива (ВВЭР-440 и быстрых), работающих в топливном цикле с использованием урана и плутония, активность актиноидов в отходах заметно ниже, особенно в быстрых. Активность конструкционных материалов в процессе выдержки снижается быстрее активности других компонентов отходов и вносит малозаметный вклад в общую активность. БН-600 имеют максимальную начальную активность конструкционных материалов и минимальную конечную.

Усреднение массы потребляемого природного урана для принятой структуры ядерной энергетики России дает цифру, мало отличающуюся от 200 т на 1 т продуктов деления:

	M_U , т/т продуктов деления	A_U , Ки/т
ВВЭР-440	193	263
-1000	202	276
РБМК-1000	195	266
БН-600	490	679
Среднее	204	280

Для реакторов с переработкой топлива и извлечением основной массы урана и плутония суммарная активность долгоживущих высокоактивных отходов при времени выдержки $\geq 10^3$ лет снижается заметно быстрее, чем в реакторах без переработки. Но даже и при 10^5 лет $A_{p.э.кв.отх} \gg A_U$ для реакторов без переработки топлива, и радиационная эквивалентность не достигается. Для реакторов с переработкой топлива $A_{p.э.кв.отх} \approx A_U$ при $\sim (3-4) 10^3$ лет.

Обсуждение результатов. Достижение радиационной эквивалентности можно рассматривать в интервале $S = 1-10$ ($S = A_{p.э.кв.отх} / A_U$). При $S = 1$ достигается равенство эквивалентной активности долгоживущих высокоактивных отходов в момент окончательного захоронения и активности использованного природного урана. В случае $S = 10$ учитывается разница в коэффициентах задержки элементов долгоживущих высокоактивных отходов и урана при вероятной миграции из мест захоронения к биосфере. Приближению к радиационной эквивалентности может способствовать длительная выдержка отходов перед окончательным захоронением. Для реально приемлемого времени длительной контролируемой выдержки отходов перед окончательным захоронением (~ 200 лет) достижение $S = 1$ невозможно без извлечения вместе с природным ураном тория (^{230}Th) и радия (^{226}Ra) с последующей их трансмутацией, без введения замкнутого топливного цикла с выделением из топлива при переработке некоторых элементов как топливных (U, Pu, Np, Am, Cm, возможно, Pa, Cf), так и из продуктов деления (Tc, I, Cs, Sr) для трансмутации и использования. Перечисленных операций в настоящее время почти нет, только извлекается уран и плутоний из отработавшего топлива ВВЭР-440 и быстрых. В первом приближении рассмотрено соотношение радиационно эквивалентных по воздействию на человека долгоживущих высокоактивных отходов и природного урана в современном ядерном топливном цикле. Показано, что для реакторов без переработки топлива радиационная эквивалентность не достигается даже при времени выдержки 10^5 лет.

Т а б л и ц а 3. Значения $S = A_{p.э.кв.отх} / A_U$ при $\tau = 200$ лет для реакторов с долей в $W_{эл}$ и активностью потребляемого урана, Ки/т продуктов деления

Вид отходов и время выдержки, год	ВВЭР-440 $\epsilon=0,124$, $A_U=263$	ВВЭР-1000 $\epsilon=0,33$, $A_U=276$	РБМК-1000 $\epsilon=0,518$, $A_U=266$	БН-600 $\epsilon=0,028$, $A_U=679$	В среднем по реакторам $A_U=280$
Продукты деления	631	601	624	225	606
Актиноиды	35	278	243	228	228
Конструкционные материалы	1,3	1	0,6	1,3	0,84
Сумма	667	880	868	454	829
τ_{01}	~ 4000	*	*	~ 3000	*
τ_{02}	~ 1000	$\sim 3 \cdot 10^4$	$\sim 3 \cdot 10^5$	~ 300	$\sim 5 \cdot 10^4$

*Не достигается, так как при $\tau = 10^7$ лет $S > 1$.

Из анализа табл. 3 следует, что при приемлемом времени длительной контролируемой выдержки ~ 200 лет радиационно эквивалентная активность долгоживущих высокоактивных отходов в 450—880 раз выше активности использованного природного урана. Наибольший вклад в активность вносят продукты деления, затем актиноиды. Время выдержки до достижения радиационной эквивалентности $\tau_{01} > 10^7$ лет. Даже с учетом меньшей средней скорости миграции элементов отходов по сравнению с ураном τ_{02} в среднем для ядерной энергетики составляет $\sim 5 \cdot 10^4$ лет.

Таким образом, без глубокой переработки топлива ВВЭР-1000 и РБМК радиационная эквивалентность не может быть достигнута. Отрабатывшее ядерное топливо ВВЭР и РБМК может перерабатываться в открытом цикле с использованием урана и плутония с передачей некоторых его компонентов в другие реакторы для трансмутации (Np, Am, Cm, Tc, I) или применения (U, Pu, Sr, Cs). Современный топливный цикл БН-600 бесперспективен с точки зрения общего назначения быстрых реакторов. Ядерный топливный цикл должен быть замкнутым с циклированием регенерированных урана и плутония и осуществлением других мероприятий. При этом, однако, снизится потребление природного урана и затруднится достижение радиационной эквивалентности, что потребует применения дополнительных мер.

Следует рассмотреть влияние операций трансмутационного ядерного топливного цикла на возможность приближения к состоянию радиационной эквивалентности высокоактивных отходов и природного урана в реакторах современной ядерной энергетики России. Достижение радиационной и миграционной эквивалентности явится серьезным аргументом в части усовершенствования техники обращения с высокоактивными долгоживущими радиоактивными отходами в пользу возврата к идее о широкомасштабном развитии ядерной энергетики.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Адамов Е.О., Орлов В.В., Смирнов В.С. и др. Концепция энергетических реакторов высокой безопасности с охлаждением жидким свинцом. Отчет НИКИЭТ, № 050-367-3272, 1989.
2. Adamov E., Tsikunov V., Filin A. e.a. Liquid lead cooled fast reactor concept. — In: Proc. Intern. Topical Meeting ARS'94, v. 1, p. 502, Pittsburgh, USA, 1994.
3. Степень приближения к радиационной эквивалентности в существующем топливном цикле ядерной энергетики России. Отчет НИКИЭТ, № 050-396-4793, 1995.
4. Землянухин В.И., Ильенко Е.И., Кондратьев А.Н. и др. Радиохимическая переработка ядерного топлива АЭС. М.: Энергоатомиздат, 1989.
5. Нормы радиационной безопасности НРБ-76/87. М.: Энергоатомиздат, 1988.
6. Umeci H., Sacuma H., Yshiguro K. e.a. Near-field geological environment as an effective barrier against radionuclide transport. — In: Intern. Conf. on Nuclear Waste Management, 1993, Praha, v. 1, p. 747.
7. Лопаткин А.В., Точеный Л.В. Разработка и усовершенствование средств расчета и оптимизации нуклидного состава облученного топлива. Отчет НИКИЭТ, № 050-179-4197, 1992.
8. Лопаткин А.В., Муратов В.Г. Программа UCDA. Отчет НИКИЭТ, № 5.918, 1995.
9. ENDF/B VI. IAEA-NDS-100, 1993.
10. MCNP-A General Monte-Karlo Code for Neutron, Photon and Electron Transport. LA 7396 M, 1991.
11. Марин С.В., Полиховская Н.Е. Программа расчета пространственно-энергетического распределения нейтронов в одномерной геометрии: Препринт ИАЭ-2832, 1977.

Поступила в Редакцию 17.06.96

УДК 621.039.519

ВЛИЯНИЕ ТРАНСМУТАЦИОННОГО ТОПЛИВНОГО ЦИКЛА НА ДОСТИЖЕНИЕ РАДИАЦИОННОЙ ЭКВИВАЛЕНТНОСТИ ВЫСОКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ И ПРИРОДНОГО УРАНА В ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКЕ РОССИИ

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

Повышение безопасности реакторов и снижение уровня радиоактивности отходов являются необходимыми условиями развития крупномасштабной ядерной энергетики России. В качестве асимптотической цели можно принять снижение радиационно эквивалентной активности долгоживущих высокоактивных отходов, образующихся в топливе при работе реактора, до уровня радиоактивности природного урана, добытого из руды и использованного при их наработке. Достижение этой цели или приближение