

УДК 621.039.7

**ОЛЬХОВИК Ю.А.**

*ГП «Институт геохимии окружающей среды НАН Украины», г.Киев*

## **СТЕПЕНЬ КОНДИЦИОНИРОВАНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ АЭС ДЛЯ ЗАХОРОНЕНИЯ В ПОВЕРХНОСТНЫХ ХРАНИЛИЩАХ**

*Рассмотрены требования к степени кондиционирования радиоактивных отходов (РАО) АЭС в зависимости от удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  исходя из нормативных условий освобождения радиоактивных отходов в хранилищах от регулирующего контроля. Показано, что оптимальной технологией кондиционирования солевых плагов АЭС с реакторами ВВЭР является остекловывание с применением индукционного плавителя «холодный тигель».*

При нормальной эксплуатации АЭС преимущественно образуются низкоактивные твердые радиоактивные отходы (ТРО), которые составляют свыше 90% от общего объема накопленных в хранилищах АЭС твердых отходов. В отличие от ТРО, хранящиеся на АЭС жидкие отходы вследствие многократного концентрирования, в основном, относятся к среднеактивным (кубовый остаток и солевой плав) [1].

Для переработки ТРО в настоящее время на Запорожской и Ривненской АЭС строятся комплексные линии, задачей которых является кондиционирование отходов до состояния, приемлемого для захоронения. Комплексы рассчитаны на переработку ТРО с мощностью экспозиционной дозы (МЭД) не более 300 мкГр/час, что соответствовало низкоактивным РАО по классификации ОСП–89. После ввода в 2005 году ОСПУ прежние низкоактивные ТРО частично относятся к среднеактивным, поскольку граница отнесения по значению МЭД составляет уже 100 мкГр/час [2].

Вследствие вариаций радиоизотопного состава, присущим ТРО, однозначно определить интервал значений удельной активности для ТРО, подлежащих переработке на установках комплексов, нельзя. По данным гамма–спектрометрии свежих эксплуатационных отходов верхняя граница активности кондиционированных ТРО не превысит  $1 \times 10^6$  Бк/кг с преимущественным содержанием короткоживущих радиоизотопов Fe, Co, Ni, Mn.

Согласно действующему национальному законодательству размещение ТРО в хранилищах поверхностного (приповерхностного) типа допускается лишь при выполнении ряда условий, оговоренных требованиями НРБУ–97/Д–2000, п.4.3.5 – 4.3.7 [3], а именно – на момент освобождения РАО в хранилищах от санитарного надзора со стороны органа Государственного регулирования не должны быть превышены уровни изъятия (по критерию удельной активности) для каждого из содержащихся в РАО нуклидов, которые регламентированы Гигиеническими нормативами «Уровни освобождения радиоактивных материалов от регулирующего контроля».

Помимо указанного требования, обязательным условием освобождения является:

– непревышение годовой эффективной дозы текущего облучения критической группы населения ( $0,01 \text{ мЗв} \times \text{час}^{-1}$ ) и коллективной годовой эффективной дозы текущего облучения  $I$  чел.–Зв;

– непревышение референтного уровня Б потенциального облучения ( $1 \text{ мЗв} \times \text{час}^{-1}$ ).

Исходя из оговоренных НРБУ–97/Д–2000 граничных условий, попытаемся рассчитать максимальное значение удельной активности при поверхностном захоронении ТРО АЭС. При этом приняты следующие консервативные допущения:

1. Инженерные барьеры поверхностного хранилища безоговорочно обеспечивают изоляцию захороненных ТРО в течение 300 лет. Хранилища комплекса «Вектор» (СОПХТРО, ТРО–1, ТРО–2) спроектированы исходя из этого положения. В этом

- случае поступления радионуклидов в окружающую среду нет и дозовые нагрузки вследствие текущего облучения отсутствуют.
2. Защитные свойства окружающей среды не рассматриваются и не принимаются во внимание.
  3. Единственным из дозообразующих в настоящее время радионуклидом, способным сохраниться в заметных количествах спустя 300 лет после захоронения, является  $^{137}\text{Cs}$  с периодом полураспада  $T_{1/2} = 30,2$  года.

Чтобы хранилище было безусловно освобождено от регулирующего контроля, то есть все его содержимое перестало рассматриваться как радиоактивный материал, удельная активность  $^{137}\text{Cs}$  через 300 лет не должна превышать установленного нормативным документом «Рівні звільнення радіоактивних матеріалів від регулюючого контролю» уровня 0,1 Бк/г или 100 Бк/кг. Исходя из длительности хранения, несложно рассчитать, что в таком случае при приеме на захоронение концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в кондиционированных ТРО не должна превышать  $10^5$  Бк/кг.

В НРБУ–97/Д–2000 предусмотрена возможность ограниченного освобождения РАО в хранилищах от контроля со стороны органа Государственного Регулирования – если уровни изъятия по критериям, установленным МОЗ, превышены, величина потенциального облучения оказывается в интервале между референтными уровнями Б и А ( $1-50 \text{ мЗв} \times \text{час}^{-1}$ ). Предполагая, что инженерные барьеры поверхностного хранилища утратят свои защитные свойства через 300 лет, использование значения референтного уровня  $50 \text{ мЗв} \times \text{час}^{-1}$  означает возможность приема на захоронение кондиционированных ТРО (в том числе жидких РАО, переведенных в приемлемое для захоронения твердое состояние) с удельной активностью  $^{137}\text{Cs}$  до  $5 \times 10^6$  Бк/кг. Однако в этом случае для снижения риска потенциального облучения, регулятор может выдвинуть специальные требования: ограничение доступа к месту расположения хранилища, засыпка пустот изолирующим материалом либо заливка цементным раствором, чтобы снизить вероятность критического события и т.д.

Основная часть хранящихся на АЭС радиоактивных отходов не превышает значение удельной активности  $^{137}\text{Cs}$   $5 \times 10^6$  Бк/кг, однако для некоторых видов ЖРО концентрация радиоцезия может достигать более высоких значений. К таким видам отходов относится прежде всего классифицируемый как среднеактивные ЖРО солевой плав, который представляет собой смесь кристаллогидратов, в основном нитратов и боратов натрия, с удельной активностью  $1\text{E}+7-1\text{E}+8$  Бк/кг, образующийся после глубокого упаривания кубового остатка. Хранят плав в 200-литровых бочках с ограниченным сроком безопасной эксплуатации не более 20 лет. Такой способ хранения представляет серьезную угрозу окружающей среде.

Общее количество накопленного на АЭС Украины солевого плава достигает 7000 куб. метров. Подобными значениями удельной активности обладают также извлеченные из баков хранилища жидких радиоактивных отходов (ХЖО) ЮУАЭС твердые кристаллические осадки, по своему составу близкие к солевому плаву.

Ввиду присущей этим отходам достаточно высокой удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  даже после 300 лет хранения уровни изъятия (по критерию удельной активности) несомненно будут превышены, равно как и дозовые ограничения, вследствие хорошей растворимости указанных отходов. В этом случае, согласно требованиям НРБУ–Д2000, захоронение должно осуществляться лишь в глубоких стабильных геологических формациях.

Для того, чтобы избежать захоронения таких больших объемов в геологическом хранилище, следует обеспечить при кондиционировании вышеупомянутых РАО безусловное выполнение условий по неперевышению референтного уровня потенциального облучения. Достичь этого можно лишь кондиционированием РАО, при котором обеспечивается надежная и долговременная изоляция радионуклидов в устойчивой к возможным внешним воздействиям матрице. Так, при содержании  $^{137}\text{Cs}$  в солевом плаве  $10^7$  Бк/кг для достижения

уровня снятия с регулирующего контроля 100 Бк/кг потребуются изоляция РАО свыше 500 лет, что явно проблематично при использовании матриц на основе портланд-цемента, содержащих значительные количества боратов.

Известно, что растворимые соединения бора, как и содержащиеся в солевых плавах в значительных концентрациях гидроксиды натрия и калия, оксалаты, комплексоны и поверхностно-активные вещества, отрицательно влияют на процессы твердения цементных матриц и существенно снижают прочность и устойчивость бетонов, находящихся под воздействием факторов окружающей среды (агрессивные подземные воды, колебания температур, микробиологическая активность и т.д.) [4]. При таких условиях возможно проявление процессов, приводящих к повышению фильтрационно-миграционных характеристик материалов РАО в хранилище и к деградации удерживающих (барьерных) свойств контейнеров с РАО и инженерных конструкций хранилища [5].

Логичным представляется для кондиционирования солевых плавов использовать технологию плавления, приводящую к формированию боросиликатного стекла, известного своей устойчивостью к температурным воздействиям и выщелачиванию [6]. При этом решается проблема возможного загрязнения окружающей среды основными химическими компонентами солевого плава (бораты и нитраты) после перехода радиоактивных отходов в промышленные отходы вследствие распада радионуклидов.

Эта технология может быть реализована в одну стадию с использованием плавителей типа «холодный тигель» и с применением в качестве флюсующей добавки недорогих природных материалов [7]. Эти преимущества технологии значительно перевешивают недостаток, связанный с энергоемкостью процессов плавления. Очевидно также, что одностадийный процесс формирует меньшие дозы персонала и снижает объемы конечного продукта по сравнению с исходным объемом солевого плава. При этом образование вторичных отходов минимально, поскольку не требует сложных процессов растворения солевого плава и многостадийной обработки растворов, которая при этом не гарантирует очистки конечного продукта (очищенные соли) до уровня 100 Бк/кг. В противном случае «очищенные» соли все равно должны быть классифицированы как радиоактивные отходы, требующие соответствующего обращения и затрат на хранение.

Стекло, как форма кондиционирования солевых плавов для захоронения, минимизирует вероятность реализации в ходе критических событий после закрытия хранилища референтных сценариев облучения, связанных с возможностью поступления радионуклидов с питьевой водой, поступления радионуклидов с продуктами питания и ингаляционным поступлением вследствие физико-химических свойств боросиликатных стекол – низкая скорость выщелачивания, высокая термическая стойкость.

Применение устойчивой на продолжительный период времени матрицы из боросиликатного стекла снизит риск потенциального облучения в долгосрочной перспективе (1000 и более лет) вследствие предполагаемого нахождения в отходах АЭС долгоживущих радионуклидов  $^{59}\text{Ni}$  ( $T_{1/2}=7,6\text{E}4$  лет),  $^{63}\text{Ni}$  ( $T_{1/2}= 100$  лет),  $^{97}\text{Zr}$  ( $T_{1/2}=1,5\text{E}6$  лет),  $^{99}\text{Tc}$  ( $T_{1/2}=2,1\text{E}5$  лет). Непосредственное измерение концентрации указанных радионуклидов в РАО сопряжено со значительными техническими и методологическими трудностями, вследствие чего их содержание в РАО рассчитывается консервативно, исходя из коэффициентов корреляции. Уровень содержания указанных долгоживущих радионуклидов в накопленных на площадках АЭС радиоактивных отходах крайне низок, однако в далекой перспективе именно они будут определять потенциальные дозы от захороненных в поверхностных хранилищах радиоактивных отходов АЭС.

Таким образом, можно констатировать, что степень и глубина кондиционирования РАО АЭС для целей поверхностного захоронения связана с удельной активностью  $^{137}\text{Cs}$  (содержание  $^{90}\text{Sr}$  в РАО ВВЭР намного меньше содержания  $^{137}\text{Cs}$ , периоды полураспада

стих радионуклідів близьки, а урівень освобождення по удельной активності  $^{90}\text{Sr}$  на порядок вище такого для  $^{137}\text{Cs}$ ).

Для низкоактивных РАО, вследствие устойчивости инженерных барьеров поверхностных хранилищ, на период активного радиационного контроля 300 лет не требуется создание дополнительной матрицы, выполняющей изолирующую функцию. Используемые методы кондиционирования (прессование и суперпрессование, сжигание, заливка пустот цементным раствором и т.д.) служат, в основном, для повышения технологичности процесса захоронения и снижения затрат на упаковку и транспортирование отходов.

Для среднеактивных отходов с удельной активностью  $^{137}\text{Cs}$  свыше  $5\text{Е}6$  Бк/кг требуется более глубокое кондиционирование с формированием устойчивой на протяжении 500 и более лет матрицы, предотвращающей потенциальное облучение свыше нормативных значений референтных уровней.

1. Поводження з радіоактивними відходами при експлуатації АЕС ДП НАЕК «Енергоатом» (станом на 31.12.2012). [Електронний ресурс]. –Режим доступу: [www.energoatom.kiev.ua/atachs/Report\\_RW\\_2012\\_ua.pdf](http://www.energoatom.kiev.ua/atachs/Report_RW_2012_ua.pdf)
2. Основні санітарні правила забезпечення радіаційної безпеки України. ДСП 6.177-2005-09-02. Київ, 2005.
3. «Нормы радиационной безопасности Украины, дополнение: Радиационная защита от источников потенциального облучения» (НРБУ-97/Д-2000)
4. Козлов П.В., Слюнчев О.М., Ровный С.И., Кирьянов К.В. Определение тепловыделения цементного компаунда в процессе твердения// Журнал радиационной безопасности. – 2009. – №3 – С. 17–26.
5. Москвин В.М., Иванов Ф.М., Алексеев С.Н., Гузеев Э.А. Коррозия бетона и железобетона. – Москва: Стройиздат, 1980. – 218 с.
6. Соболев И.А., Лифанов Ф.А., Мусатов Н.Д., Стефановский С.В. и др. Переработка радиоактивных отходов АЭС на пилотной установке с электрической–ванной печью// Атомная энергия. – 1990. – Т.69. – №4. – С. 233–236.
7. Лебедев В.В., Стефановский С.В. Применение технологии ИПХТ для переработки радиоактивных отходов: опыт МосНПО «Радон» // Журнал радиационной безопасности. – 2011. – №2. – С. 16–34.

#### **Ольховик Ю.О.**

#### **СТУПІНЬ КОНДИЦІОНУВАННЯ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ АЕС ДЛЯ ЗАХОРОНЕННЯ В ПОВЕРХНЕВИХ СХОВИЩАХ**

*Розглянуто вимоги до ступеня кондиціювання РАВ АЕС в залежності від питомої активності  $^{137}\text{Cs}$  врахуванням нормативних умов звільнення радіоактивних відходів усховищах від регулюючого контролю. Показано, що оптимальною технологією кондиціювання сольових плавів АЕС з реакторами ВВЕР є оскловування із застосуванням індукційного плавника «холодний тигель».*

#### **Olkhovyk Yu.A.**

#### **DEGREE OF NPP RADIOACTIVE WASTE CONDITIONING FOR SURFACE DISPOSAL**

*The requirements for the degree of radioactive waste conditioning, depending on the specific activity of  $^{137}\text{Cs}$  on the basis of standard conditions of release of radioactive waste in storage from regulatory control. It is shown that the optimal technology conditioning salt melts accumulated on NPP sites is the vitrification using induction melter «cold crucible».*