
ОБЗОР ПРОБЛЕМ ОБРАЩЕНИЯ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ И ОТРАБОТАВШИМ ЯДЕРНЫМ ТОПЛИВОМ

Андрюшин И.А.
Юдин Ю.А.

Саров

ПРЕДИСЛОВИЕ

Данная работа, выполненная по поручению научного руководителя РФЯЦ-ВНИИЭФ, академика РАН Р.И. Ильяева, содержит обзор деятельности, проектов и технологий, связанных с обращением с РАО.

Проблема РАО является одним из «проклятых» вопросов ядерной деятельности вообще и ядерной энергетики в частности. В поисках решения этой проблемы было выполнено колоссальное количество работ, создано множество различных технологий, которые в целом, конечно, невозможно не только рассмотреть, но и кратко обозначить в одной работе. Поэтому отбор материала, акцентирование тех или иных конкретных элементов и технологий в значительной степени субъективен и отражает частную точку зрения авторов. При этом мы руководствовались поставленной задачей: определить, хотя бы приблизительно, области обращения с РАО, которые могли бы представлять интерес для дальнейших исследований. Вместе с тем, мы не можем быть уверены, что все подобные области выяснены, а векторы определены правильно. Все это требует серьезной работы, которая может быть проведена в перспективе с участием специалистов различного профиля.

Работа состоит из двух частей. Первая часть «Способы обращения с РАО» включает в себя обзор текущего состояния (на конец 1990-х годов) с обращением РАО в ЯОК и в гражданской сфере, состояния, технологий, особенностей проблемы. В области технологий относительно подробно рассмотрены вопросы, связанные с технологиями остекловывания РАО. В соответствии с проведенным анализом представлен ряд направлений для исследования возможностей деятельности РФЯЦ-ВНИИЭФ в этих областях обращения с РАО.

Вторая часть «Хранение ОЯТ» включает в себя обзор состояния технологий с хранением ОЯТ. При этом в качестве возможной основной перспективы обращения с ОЯТ (в условиях резкого сокращения образования РАО) рассматривается технология долгосрочного промежуточного хранения ОЯТ без его радиохимической переработки.

СОДЕРЖАНИЕ

ПРЕДИСЛОВИЕ	2
СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ	6
ЧАСТЬ I. ОБРАЩЕНИЕ С РАО	9
Введение	9
1. Радиоактивные отходы США	14
1.1. ОЯТ гражданских ядерных реакторов	14
1.2. Ядерное топливо DOE	15
1.3. РАО DOE, находящиеся на хранении в емкостях	16
1.4. Выделенные из ВАО стронций и цезий	18
1.5. Трансурановые РАО	19
1.6. Низкоактивные отходы	20
1.7. Смешанные НАО	21
1.8. Рекультивация загрязненных объектов	21
1.9. Излишки оружейного плутония	22
2. Общие особенности обращения с РАО	23
3. Технологии обращения с ВАО	27
3.1. Особенности технологии хранения жидких ВАО в емкостях	27
3.2. Кальцинация	28
3.3. Технология остекловывания	28
3.4. Получение керамических и других материалов	30
4. Технологии обращения с НАО и САО	32
4.1. Технология уплотнения	32
4.2. Технология прокаливания	33
4.3. Цементирование	33
4.4. Совершенствование технологии цементирования радиоактивных отходов	34
4.5. Битумирование	37
4.6. Отверждаемые эпоксикариловые композиции	38
4.7. Кондиционированные РАО	39
4.8. Вывод АЭС из эксплуатации	40
4.9. Некоторые проблемы обращения с РАО в РФ	42
5. Технологии остекловывания	44
5.1. Виды технологий остекловывания	44
5.2. Особенности структуры стекла для остекловывания отходов	45
5.3. Нарушение стабильности остеклованных отходов	48

5.4. Основные факторы, влияющие на выщелачивание стекол.....	50
5.5. Радиолиз воды и стабильность стекла.....	52
6. Технологии создания расплава	54
6.1. Технологии использования электропечей	54
6.2. Технологии производства расплава «на месте»	56
6.3. Использование плазменной «дуги»	57
6.4. Индукционный нагрев	59
6.5. Нагрев СВЧ-излучением.....	60
6.6. Другие технологии	60
7. Остекловывание различных РАО. Подходы и прогнозы	61
7.1. РАО США и проблема остекловывания	61
7.2. РАО в Хэнфорде и остекловывание	62
7.3. Выщелачивание остеклованных отходов и моделирование на большие периоды времени	62
7.4. Коррозия стекол: оставшиеся проблемы	64
7.5. Остекловывание актиноидов.....	66
7.6. Радиационные эффекты в остекловыванных РАО.....	67
7.7. Работы по остекловыванию РАО в Бельгии	69
7.8. Работы по остекловыванию во Франции	69
7.9. Работы по остекловыванию в Японии.....	70
7.10. Работы по остекловыванию в Великобритании.	70
7.11. Работы по остекловыванию в России.....	71
ЧАСТЬ II. ТЕХНОЛОГИИ ХРАНЕНИЯ ОЯТ. ПРОБЛЕМЫ И РЕШЕНИЯ	72
8. Общие особенности технологий хранения ОЯТ	72
9. Хранение ОЯТ в приреакторных бассейнах	75
10. «Мокрое» хранение	77
11. «Сухое» хранение	79
11.1. V-хранилища (Vaults, камеры).....	80
11.2. Контейнеры (Casks).....	80
11.3. S-системы (Silos, ячейки железобетонного массива)	81
12. Существующий опыт с «сухим» хранением ОЯТ.....	83
12.1. V-хранилища.....	83
12.2. Контейнерные хранилища (С-хранилища)	85
12.3. S-хранилища.....	88
13. Контейнеры для хранения ОЯТ	91
13.1. Контейнеры системы CASTOR.....	91
13.2. Контейнеры CONSTOR	92
13.3. Модули NUHOMS	93
13.4. Контейнеры TN 24.....	94
14. Некоторые экономические характеристики	97

15. Перспективная задача: долгосрочное промежуточное хранение ОЯТ	99
ПРИЛОЖЕНИЕ 1. ОЦЕНКИ СКОРОСТИ РАСТВОРЕНИЯ СТЕКЛООБРАЗНЫХ КОМПОЗИЦИЙ	105
ПРИЛОЖЕНИЕ 2. ХАРАКТЕРИСТИКИ ИЗМЕНЕНИЯ АКТИВНОСТИ ОЯТ ПРИ РАЗЛИЧНЫХ СРОКАХ ЕГО ХРАНЕНИЯ.....	108
П2.1. Общие характеристики изменения активности ОЯТ	108
П2.2. Радиационные и радиологические характеристики различных классов активности ОЯТ и их изменение от времени хранения.....	110
СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ	117

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ

АК	Акриловая кислота
ВАО	Высокоактивные отходы
ГП	Горячее прессование
ДПД	Долгоживущие продукты деления
ЕРР	Единица работы деления
ИПХТ	Индукционный плавитель с «холодным» тиглем
ИЯР	Исследовательский ядерный реактор
МЗУА	Минимальное значение удельной активности
НАО	Низкоактивные отходы
НРБ	Нормы радиационной безопасности
ОТВС	Отработавшая тепловыделяющая сборка
ОЯТ	Отработавшее ядерное топливо
ПД	Продукты деления
ПГМГ	Полигексаметиленгуанидины
РАО	Радиоактивные отходы
РЗЭ	Редкоземельные элементы
РН	[plasma heating] плазменный нагрев
РХК	Радиохимический комбинат
САО	Среднеактивные отходы
СВС	Самораспространяющийся высокотемпературный синтез
СВЧ	Сверхвысокие частоты
СПОРО	Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами
ТВС	Тепловыделяющая сборка
ТК	Транспортный контейнер
ТМ	Тяжелый металл
ТУК	Транспортный упаковочный контейнер (комплект)
ТУЭ	Трансурановые элементы
УВ	Уровень вмешательства
УГУ	Установка глубокого упаривания
ХПС	Холодное прессование – спекание
ЭАК	Эпоксикариловые композиции
ЭП	Электрический плавитель (керамический плавитель прямого джоулева нагрева)
ЭС	Эпоксидная смола
ЯОК	Ядерно-оружейный комплекс

ЯТЦ	Ядерный топливный цикл
AGR	[advanced gas (cooled) graphite (moderated) reactor] усовершенствованный газографитовый реактор (работает на низкообогащенном оксидном урановом топливе с типичным содержанием U-235 около 2%)
AVM	[Atelier de Vitrification de Marcoule] предприятие по остекловыванию в Маркуле (Франция)
BSG	[borosilicate glass] боросиликатное стекло
BWR	[boiling light water (moderated and cooled) reactor] легководный “кипящий” ядерный реактор (работает на низкообогащенном оксидном урановом топливе с типичным содержанием U-235 от 2,5% до 3%)
DOE	[Department of Energy] Министерство энергетики США
EPA	[Environmental Protection Agency] Агентство по охране окружающей среды
ESV	[ex situ vitrification] остекловывание за пределами территории, где находятся отходы
FBR	[fast breeder reactor] ядерный реактор-размножитель на быстрых нейтронах
GCR	[gas (cooled) graphite (moderated) reactor] газографитовый реактор (работает на металлическом топливе из природного урана)
HLW	[high level waste] высокоактивные отходы
HTGR	[high temperature gas (cooled) graphite (moderated) reactor] высокотемпературный газографитовый реактор
ICPP	[Idaho Chemical Processing Plant] радиохимический завод в Айдахо
ILW	[intermediate-level waste] отходы промежуточной активности (среднеактивные отходы)
ISV	[in situ vitrification] остекловывание «на месте» нахождения отходов
ISVG	[in situ vitrification glass] стекло, полученное путем остекловывания «на месте»
JH	[joule heating] джоулев нагрев
JHES	[ex situ joule heating] джоулев нагрев «на месте» нахождения отходов
JHIS	[in situ joule heating] джоулев нагрев за пределами территории, где находятся отходы (на специальных установках)
LLNL	[Lawrence Livermore National Laboratory] Ливерморская национальная лаборатория им. Лоуренса

LLW	[low level waste] низкоактивные отходы
LWGR	[light-water (cooled) graphite (moderated) reactor] легководный графитовый реактор (работает на низкообогащенном оксидном урановом топливе с типичным содержанием U-235 от 1,8% до 2%)
LWR	[light-water reactor] легководный ядерный реактор
ORNL	[Oak Ridge National Laboratory] Окриджская национальная лаборатория
PACT	[plasma-arc centrifugal treatment] система обработки плазменной дугой и центрифугированием
PHWR	[pressurized heavy-water (moderated and cooled) reactor] тяжеловодный реактор под давлением (работает на оксидном топливе из природного урана)
PNNL	[Pacific Northwest National Laboratory] Тихоокеанская северо-западная национальная лаборатория
PWR	[pressurized light-water (moderated and cooled) reactor] легководный ядерный реактор под давлением (работает на низкообогащенном оксидном урановом топливе с типичным содержанием U-235 от 3,2% до 4,4%)
SLG	[soda-lime glass] известково-натриевое стекло
SRS	[Savannah River Site] Саванна-Ривер-Сайт
TRP	[Tokai Reprocessing Plant] завод по радиохимической переработке ОЯТ в Токай Мура (Япония)
TVF	[Tokai Vitrification Facility] предприятие по остекловыванию в Токай Мура (Япония)
WVDP	[West Valley Demonstration Project] Демонстрационный проект в Уэст-Вэлли

ЧАСТЬ I.

ОБРАЩЕНИЕ С РАО

Введение

РАО в основном образуются в рамках деятельности, связанной с работой ядерных энергетических, промышленных, исследовательских реакторов и реакторов ядерных силовых установок. В процессе их работы, с одной стороны, нарабатываются высокоактивные продукты деления и актиноиды, а с другой стороны, активируются различные конструкционные элементы. Первоначально подавляющая часть активности сосредоточена в отработавшем (облученном) ядерном топливе (ОЯТ), а также в активированной части конструкций ядерных установок.

В различных государствах проводится разная политика обращения с ОЯТ. В некоторых странах ОЯТ, после выгрузки из реактора, поступает на временное хранение, затем на промежуточное хранение и в перспективе на длительное хранение и захоронение. Эта политика соответствует открытому ядерному топливному циклу (ЯТЦ), и в ее рамках ОЯТ рассматривается, как РАО.

Другие государства рассматривают ОЯТ, как ценное сырье, которое следует перерабатывать и извлекать из него, прежде всего, плутоний и уран для производства нового ядерного топлива и его использования в ядерных реакторах (замкнутый ЯТЦ). В процессе переработки ОЯТ, помимо выделения полезной продукции (плутоний и уран, а также отдельные виды изотопов), неизбежно образуется значительное количество РАО, содержащих продукты деления, минорные актиноиды (полностью или частично), технологические «потери» выделения плутония и урана и некоторые компоненты загрязненных конструкционных элементов. Все эти РАО находятся в различных агрегатных состояниях (жидком, твердом и газообразном), и разделяются на три категории в зависимости от типа и удельного содержания в них той или иной активности: ВАО, САО и НАО.

Радиохимическая переработка ОЯТ является основным «производителем» РАО по количеству активности в рамках замкнутого ЯТЦ. В то же время дополнительными источниками РАО в этих условиях являются и другие производственные процессы: производства по фабрикациям МОКС-

топлива, предприятия и установки по переработке РАО, которые производят вторичные РАО из радионуклидов, содержащихся в ОЯТ.

Некоторые государства, имеющие открытый ЯТЦ атомной энергетики, тем не менее, имеют огромное количество РАО, характерных для замкнутого ЯТЦ. Это ядерные оружейные государства, которые создавали свое ядерное оружие с широким использованием оружейного плутония. К ним относятся все пять официальных ядерных государств, а также Индия и, как принято считать, Израиль.

В рамках военных программ оружейный плутоний нарабатывался в специальных промышленных реакторах в составе ядерного топлива на основе природного урана, после чего ОЯТ подвергалось радиохимической переработке с выделением плутония (и урана) и образованием первичных РАО. Особенностью этих программ является то, что оружейный плутоний производился при небольшой удельной энерговыработке ОЯТ, составляющей не более (0,5-1) ГВт·сут./тТМ, и уровень его производства составлял приблизительно 1 кг/ГВт·сут. Масштабы программ производства плутония (таких как в США и СССР) потребовали переработки большого количества ОЯТ «промышленных» реакторов (реакторов-наработчиков плутония) $\geq$ (100-200) тысяч тонн. Поскольку количество РАО при переработке примерно пропорционально массе перерабатываемого ОЯТ (а не его энерговыработке), то это и явилось причиной больших объемов произведенных РАО в ядерных оружейных странах. Так, в США при уровне производства оружейного плутония в ~ 100 тонн было произведено ~ 400 тысяч м³ жидких ВАО с активностью $\sim 0,9$ ГКи (на настоящее время) при переработке ~ 150 тысяч тонн ОЯТ. Отметим, что весь объем переработанного в мире гражданского ОЯТ существенно меньше этой величины, хотя количество активности, содержащейся в отходах его переработки, выше.

Отдельная группа вопросов связана с реакторами GCR, которые первоначально использовались (в Великобритании и Франции) для наработки оружейного плутония, а затем стали использоваться и для производства электроэнергии. Поскольку ОЯТ этих реакторов не может длительно храниться в виду технологических ограничений, то оно поступало на радиохимическую переработку, в ходе которой производились РАО. Так, Великобритания переработала ~ 30 тысяч тонн ОЯТ реакторов GCR и соответственно произвела ~ 75 тысяч тонн жидких ВАО (по оценке, опирающейся на соотношение для ЯОК США).

В гражданской сфере переработка ОЯТ ядерных энергетических реакторов получила интенсивное развитие в связи с планами развития атомной энергетики на основе реакторов на быстрых нейтронах (FBR) с воспроизводством материалов для фабрикации ядерного топлива. При этом плутоний, содержащийся в ОЯТ реакторов на тепловых нейтронах, рассматривался как необходимая компонента для запуска программы атомной энергетики на основе FBR. Основными участниками проектов по созданию FBR являлись США, СССР, Франция, Великобритания, Япония, Германия и Индия. Несмотря на создание ряда экспериментальных и опытно-промышленных FBR, никому не удалось создать эффективный, безопасный и коммерчески привлекательный проект FBR и связанного с ним энергетического комплекса. В настоящее время эксплуатация и разработка FBR осуществляется только в России, Франции, Японии и Индии.

С другой стороны, программы по созданию производств для радиохимической переработки ОЯТ (в первую очередь, ОЯТ реакторов на тепловых нейтронах различных типов) оказались технологически успешными (поскольку они опирались на достижения военных программ по получению оружейного плутония). В таких государствах, как СССР, Великобритания, Франция, Япония, Германия, Индия, было создано масштабное производство по переработке ОЯТ атомной энергетики. США и КНР также обладают необходимыми технологическими возможностями для этого, поскольку в этих странах были созданы соответствующие предприятия и технологии в рамках ядерных оружейных программ. Различные программы по радиохимической переработке ОЯТ развивались в разное время в ряде других государств, среди которых можно упомянуть Израиль, КНДР, Республику Корея, Аргентину, Бразилию, Италию. Следует еще раз отметить, что значительное накопление РАО связано с военными программами ядерных государств, в первую очередь, по производству оружейного плутония. По имеющимся открытым данным, его общее количество составляет ~ 260 тонн, причем из них ~ 245 тонн приходится на США и Россию.

В ходе переработки ОЯТ реакторов на тепловых нейтронах было выделено значительное количество «гражданского» плутония (~ 330-340 тонн), хотя его основная часть (~ 1600 тонн) продолжает находиться в составе ОЯТ. Накопление «гражданского» плутония, с одной стороны, и кризис программ FBR, с другой стороны, вызвали к жизни (в основном, начиная с 1980-х годов) программы использования этого плутония в качестве топлива для реакторов на тепловых нейтронах (в первую очередь – для легководных реакторов).

Соответствующие производства для фабрикации такого топлива (известного как смешанное уран-плутониевое оксидное топливо) были созданы в таких государствах, как Бельгия, Германия, Франция, Япония, Великобритания, а исследования в этих целях проводились в ряде других государств. По оценкам, для фабрикации МОКС-топлива было использовано ~ 90-100 тонн выделенного «гражданского» плутония, а ~ 240 тонн «гражданского» плутония находится в выделенном виде, и пока не использовано для фабрикации МОКС-топлива.

Работа РХК и заводов, производящих МОКС-топливо, связана, помимо производства продукции, с созданием большого количества радиоактивных отходов (РАО) различной активности, химического состава и физического состояния. Аналогичные отходы достались «в наследство» и от различных ядерных оружейных программ. Ниже в специальном разделе мы обсуждаем количество и категории РАО на примере США, в отношении которых имеется достаточно подробные открытые данные. Отсутствие коммерческой привлекательности замкнутого ЯТЦ и интересы нераспространения определили отказ США в 1977 году от радиохимической переработки «гражданского» ОЯТ.

Следует отметить существование серьезной проблемы, связанной с коммерциализацией выделения «гражданского» плутония и производства МОКС-топлива. Так, стоимость 1 тонны ТМ свежего ядерного топлива на основе урана при типовом уровне обогащения ~ 4,5% по изотопу U-235 (типичный уровень, используемый в PWR США) составляет ~ 1,5 млн. долларов (при стоимости 1 кг природного урана в 50 долларов, стоимости 1 ЕРР в 100 долларов, стоимости фабрикации 1 кг ядерного топлива в 250 долларов). Стоимость 1 тонны ТМ МОКС-топлива при содержании делящихся изотопов плутония ~ 4,5% составляет ~ 7-10,5 млн. долларов. Нижнее значение соответствует стоимости радиохимической переработки 1 кг ТМ ОЯТ LWR в 1000 долларов и стоимости фабрикации 1 кг МОКС-топлива в 1000 долларов, а верхнее значение – 1500 долларов и 1500 долларов соответственно. Высокая стоимость МОКС-топлива определяется, в первую очередь, крупными капитальными затратами на создание РХК и заводов, производящих МОКС-топливо. В отсутствии капитальных затрат, то есть при учете только эксплуатационных расходов стоимость 1 тонны ТМ МОКС-топлива может быть оценена на уровне ~ 4,8 млн. долларов. В этих оценках принято, что эксплуатационные расходы РХК Thorp в Великобритании составляют 560 млн. долларов в год при производительности комбината ~ 800 тТМ ОЯТ в год, а

эксплуатационные расходы завода SMP по фабрикации МОКС-топлива мощностью ~ 100 тТМ в год составляет ~ 56 млн. долларов в год.

Эти данные говорят сами за себя:

- развитие атомной энергетики на основе МОКС-топлива для реакторов на тепловых нейтронах, связанное с необходимостью создания РХК и заводов, производящих МОКС-топливо, экономически не эффективно;
- производство МОКС-топлива для реакторов на тепловых нейтронах на базе уже созданных (по тем или иным причинам, например, в рамках специальных государственных программ) РХК и заводов, производящих МОКС-топливо, может рассматриваться как важная компонента атомной энергетики в конкретных условиях.

При этом за «скобки» выносятся вопросы о технологиях и стоимости обращения с отходами в условиях открытого и замкнутого ЯТЦ.

Подчеркнем, что в масштабе мировой атомной энергетики переход на замкнутый ЯТЦ и радиохимическая переработка ОЯТ реакторов на тепловых нейтронах могут быть реализованы, по-видимому, только после практического создания эффективных FBR и переходу к их масштабному использованию.

1. Радиоактивные отходы США

В данном разделе мы рассмотрим состояние с РАО в США, поскольку для этой страны имеется достаточно подробная открытая информация [5].

1.1. ОЯТ гражданских ядерных реакторов

Типичное время облучения топлива в LWR США составляет от 3 до 5 лет (примерно 2/3 объема ОЯТ относится к PWR и 1/3 – к BWR). Основным элементом ядерного топлива является топливный элемент (ТВЭЛ), представляющий собой стержень, состоящий из топливных таблеток из диоксида урана, окруженный оболочкой из циркониевого сплава. ТВЭЛы объединены в квадратную решетку с помощью металлической платформы, сделанной, как правило, из циркониевого сплава, а в ряде случаев – из сплавов на основе никеля. Решетка ТВЭЛов образует ТВС, в рамках которой они с помощью стержней из циркониевого сплава прикреплены к металлическим крышкам, сделанным, как правило, из нержавеющей стали. ТВС BWR по всей длине закрыты стенками из циркониевого сплава, образуя топливный канал.

В таблице 1 приведены основные характеристики ядерного топлива LWR США, а в таблице 2 – характеристики накопления ОЯТ.

Таблица 1 – Характеристики ядерного топлива LWR США

Параметр	PWR	BWR
1. Топливная таблетка (Ø)	8,2 мм	10,6 мм
Топливный стержень (Ø)	9,5 мм	12,5 мм
ТВС (ширина)	21,4 см	13,9 см
2. Решетка ТВЭЛов: конфигурация	17×17	8×8
число ТВЭЛов	264	63
3. Длина топливной зоны в ТВЭЛе	3,66 м	3,76 м
Длина ТВЭЛа	3,85 м	4,06 м
Длина ТВС	4,06 м	4,47 м
4. Масса урана в ТВС	461 кг	183 кг
Масса двуоксида урана в ТВС	523 кг	208 кг
Масса конструктивных элементов в ТВС	135 кг	112 кг
Масса ТВС	658 кг	320 кг
5. Объем ТВС	0,186 м ³	0,086 м ³
6. Энергетическая нагрузка	37,5 МВт/т U	25,9 МВт/т U
7. Уровень обогащения по U-235 (%)	3,3-4,73	2,77-3,64
8. Содержание U в ОЯТ (кг/т ТМ)	955,4-922,2	962,5-937,1
Содержание U-235 в ОЯТ (%)	0,84-0,54	0,79-0,57
Содержание плутония в ОЯТ (кг/т ТМ)	9,47-14,38	8,26-12,3
Содержание Pu-239 и Pu-241 (%)	71-62	72-65
Содержание минорных актиноидов (кг/т ТМ)	0,71-1,8	0,59-1,5
Содержание продуктов деления (кг/т ТМ)	34,4-61,6	28,6-49,1
Энерговыработка ОЯТ (ГВт-сут./т ТМ)	33-60	27,5-46

В разделах 7 и 8 таблицы 1 диапазон данных относится: нижнее значение к характеристикам ядерного топлива в прошлом, верхнее значение – к характеристикам в будущем.

Таблица 2 – Характеристики накопления ОЯТ LWR США (т ТМ)

Год	PWR		BWR		Всего	
	dM/dt	Σ	dM/dt	Σ	dM/dt	Σ
1994	1207	19024	675	10788	1882	29812
2000	1300	27400	600	14900	1900	42300
2010	1400	39000	700	21400	2100	60400
2020	700	50200	400	26900	1100	77100

Данные на 2000-2020 гг. относятся к типовому прогнозу развития атомной энергетики США, относящемуся к середине 1990-х годов. Этот прогноз предполагал сокращение производства ядерной электроэнергии после 2010 года. Сейчас политика администрации США изменяется в сторону развития атомной энергетики, и поэтому данные таблицы 2 могут рассматриваться в качестве нижних оценок. Объем ОЯТ в 1994 году оценивался в 12750 м³.

Следует отметить, что по факту количество ОЯТ LWR достигло в 2000 году ~ 42,6 тысяч тонн, в том числе 27,3 тысяч тонн ОЯТ PWR и 15,3 тысяч тонн ОЯТ BWR, что хорошо согласуется с прогнозной оценкой таблицы 2. Реальная скорость выгрузки ОЯТ в 2000-2002 гг. составляла 2190 тонн ТМ в год, и количество ОЯТ в 2004 году оценивается в ~ 51,4 тысячу тонн ТМ. Это ОЯТ содержит ~ 550 тонн энергетического плутония, ~ 77 тонн минорных актиноидов. Активность содержащихся в этом ОЯТ продуктов деления оценивается в ~ 21 ГКи (при выдержке не менее 3 лет, то есть к 2007 году), а α -активность (плутоний и минорные актиноиды) ~ 0,45 ГКи.

1.2. Ядерное топливо DOE

ОЯТ DOE находится на ряде предприятий оборонного комплекса США, за которые DOE несет ответственность. Основными источниками этого ОЯТ являются:

- ядерные реакторы-наработчики плутония, такие как N-реактор в Хэнфорде, и не переработанное ОЯТ в Саванна-Ривер;
- ядерные силовые установки ВМФ;
- различные исследовательские, испытательные и демонстрационные реакторы.

ОЯТ DOE отличается большим разнообразием габаритов, форм и параметров. Классификация этого ОЯТ проводится по следующим характеристикам:

- обогащение урана: БОУ, НОУ, природный, обедненный;
- тип топлива: оксидное, гидридное, карбидное, сплав и т.д.;

- конструкционные материалы твэлов и ТВС: циркониевые сплавы, Zr, Al, нержавеющая сталь, графит и т.д.;
- актиноиды: плутоний, минорные актиноиды;
- другие материалы: Na, Ca, B, графит и т.д.;
- энерговыработка: высокая, средняя, низкая.

Инвентаризация и оценка состояния ОЯТ DOE усложнены из-за того, что оно хранится на различных производствах и площадках. Не известно, все ли материалы этого типа идентифицированы и учтены. Кроме того, доступная информация о таких видах ОЯТ DOE, как топливо реакторов ВМФ, топливо исследовательских реакторов, топливо, используемое при производстве трития, крайне ограничена. Объем ОЯТ DOE оценивается в $\sim 1200 \text{ м}^3$.

1.3. РАО DOE, находящиеся на хранении в емкостях

Азотнокислые РАО, полученные при радиохимическом выделении оружейного плутония, были связаны с использованием различных технологий, и находятся в различном состоянии. Большинство из этих отходов относятся к классу ВАО, хотя содержание трансурановых изотопов в них невелико. Основная часть их была подвергнута нейтрализации с помощью NaOH, в результате чего были получены различные химические соединения. Эти РАО были помещены в емкости, и в дальнейшем с ними проводились работы по сепарации и концентрации. Общий объем этих отходов оценивается в $\sim 400000 \text{ м}^3$ с активностью $\sim 0,9 \text{ ГКи}$, и они находятся в 332 емкостях в Саванна-Ривер-Сайт, Хэнфорде, на радиохимическом заводе в Айдахо, в Окриджской национальной лаборатории и на объекте Демонстрационный проект в Уэст-Вэлли.

К основным типам этих РАО относятся:

- жидкие РАО, включая щелочные и кислотные растворы;
- «кекс» — кристаллические смеси солей, которые были получены при нейтрализации первичных РАО;
- отстои, представляющие собой аморфную массу, полученную при нейтрализации, в состав которых входят, как правило, железо и алюминий;
- жидкости, содержащие суспензию твердых отходов в Хэнфорде;
- гранулы, полученные при выпаривании жидких отходов в Айдахо;
- цеолит-материал, использованный для сорбции и получения радиоактивного цезия из жидких отходов на объекте Демонстрационный проект в Уэст-Вэлли;
- радиоактивный цезий, полученный по специальной технологии из жидких отходов в Саванна-Ривер.

Характерный уровень активности этих отходов составляет $10^3\text{-}10^4 \text{ Ки/м}^3$, а уровень тепловыделения составляет $5\text{-}50 \text{ Вт/м}^3$.

Представляют интерес более подробные характеристики этих РАО, которые приведены в таблице 3.

Таблица 3 – Характеристики РАО DOE (емкости)

Параметр	Саванна-Ривер				Хэнфорд			
	жидкие	отстои	«кекс»	цезий	жидкие	отстои	«кекс»	суспензии
Объем (10^3 м ³)	59,3	14,3	53,1	0,2	25,1	46	93	94,7
Активность (10^6 Ки)	86,4	400,9	145	0,1	19,9	110,3	11,5	62,1
Содержание воды (%)	71	55	6,4	88,5	40,2	33,6	10,5	56,2
Плотность (г/см ³)	1,1	1,4	1,9	1,05	1,6	1,7	1,4	1,3
Удельная активность (мКи/г)	1,32	20	1,44	0,48	0,5	1,41	0,17	0,5
Параметр	WVDP				ICPP		ORNL	
	жидкие щелочные	отстои	жидкие кислотные	цеолит	жидкие	гранулы	жидкие	отстои
Объем (10^3 м ³)	1,39	0,05	0,05	0,06	7,7	3,5	0,98	0,41
Активность (10^6 Ки)	1,9	11,6	1,8	10,6	4,5	40,4	0,02	0,04
Содержание воды (%)	60,5		40		60-77	0	68,5	52,2
Плотность (г/см ³)					1,1-1,3	1,1-1,8	1,23	1,35
Удельная активность (мКи/г)					~ 0,5	~ 8	0,0166	0,072

Из таблицы 3 следует, что 92% всей активности ВАО DOE находится на объектах в Саванна-Ривер-Сайт и Хэнфорде, где работали промышленные производства оружейного плутония. При этом объем этих ВАО составляет ~ 96,5% от общего объема высокоактивных отходов DOE.

Любопытно, что можно произвести независимую оценку активности ВАО DOE, связанную с наработкой оружейного плутония США. Удельный уровень наработки плутония при типовых величинах энерговыработки ядерного топлива на основе природного урана (когда содержание изотопа Pu-239 составляет $\geq 95\%$) равен ~ 1 кг/ГВт·сут. Поскольку общее количество произведенного оружейного плутония в США составляет ~ 106 тонн (~ 94,2 тонн плутония оружейного качества и ~ 12 тонн плутония с более высоким содержанием Pu-240, в основном не более 18%), то этому количеству отвечает энерговыработка в $1,1 \cdot 10^5$ ГВт·сут. Характерное время выдержки ВАО с момента производства плутония составляет ~ 30 лет. В этих условиях удельная активность продуктов деления (в основном Sr-90 и Cs-137 и их дочерних

продуктов) составляет $\sim 8,25 \cdot 10^3$ Ки/ГВт·сут., а полная активность продуктов деления $\sim 9 \cdot 10^8$ Ки, что достаточно близко к приведенной в таблице 2 величине $8,36 \cdot 10^8$ Ки для ВАО в Саванна-Ривер-Сайт и Хэнфорде.

Количество переработанного ОЯТ промышленных реакторов-наработчиков оружейного плутония может быть оценено в пределах (110-220) тысяч тонн ТМ при характерном уровне энерговыработки в (0,5-1) ГВт·сут./тТМ. В процессе радиохимической переработки было выделено также $\sim$ (110-220) тысяч тонн урана с содержанием изотопа U-235 (0,61-0,66)%. Возможно, что этот уран использовался для обогащения и получения оружейного ВОУ. Принимая в качестве выделенного количества урана значение в 165 тысяч тонн, легко получить, что из него можно было произвести $\sim$ 645 тонн ВОУ с уровнем обогащения 90% или $\sim$ 725 тонн ВОУ с уровнем обогащения 80%. По открытым данным [29], общее производство оружейного урана в США было эквивалентно производству 750 тонн урана с уровнем обогащения в $\sim$ 80%. Эти данные показывают, что уран, полученный при выделении оружейного плутония, мог быть важной компонентой для производства оружейного ВОУ в США.

1.4. Выделенные из ВАО стронций и цезий

В 1960-1970-е годы содержание некоторых емкостей с ВАО в Хэнфорде было подвергнуто химической переработке для выделения радиоактивных цезия и стронция, после чего переработанные РАО были вновь возвращены в емкости для хранения. Эта работа была проведена для уменьшения тепловыделения и активности ВАО, находящихся в емкостях, и возможного уменьшения их объема в будущем. Радиоактивные цезий и стронций были отверждены и помещены в капсулы. В таблице 4 приведены характеристики этих капсул.

Таблица 4 – Характеристики капсул с Cs и Sr

Параметр	Цезий	Стронций
Количество капсул	1328	605
Длина капсул (см)	53	51
Диаметр капсул (см)	6,67	6,67
Состав	соль CsCl	порошок SrF ₂
Активность (Ки)	$3,85 \cdot 10^4$ ($4,18 \cdot 10^4$)	$4,01 \cdot 10^4$ ($3,8 \cdot 10^4$)
Тепловыделение (Вт)	200	255
Общий объем (м ³)	2,45	1,1
Общая активность (МКи)	55,5	23
Общее количество (кг)	$\sim$ 640 кг Cs-137	$\sim$ 165 кг Sr-90

Капсулы представляют собой двойные цилиндры, сделанные из стали с приваренными крышками. В таблице 4 приведены характерные значения активности в капсулах, в скобках приведены формальные средние значения. Активность определяется изотопами Cs-137 и Sr-90.

Известно, что за период эксплуатации 249 капсул с радиоактивным цезием и 35 капсул с радиоактивным стронцием были демонтированы, и их содержимое не было возвращено в Хэнфорд. Эти капсулы не учтены в таблице 4.

1.5. Трансурановые РАО

К трансурановым РАО в США относили отходы, содержащие трансурановые элементы с удельной α -активностью более 0,1 мкКи/г при периоде полураспада больше 20 лет. После 1984 года граница активности для определения трансурановых РАО была уменьшена до 0,01 мкКи/г. РАО DOE содержат и другие α -активные радионуклиды (например, такие как U-233 или Cm-244), а также Pu-241, которые не подпадают под это определение и учитываются соответствующим образом, хотя это не определяется законом. Трансурановые РАО производились как вторичные отходы при производстве (выделение, фабрикация и т.д.) специальных материалов (ядерное топливо, таблетки, рециклированный плутоний).

Трансурановые РАО представляют собой широкий спектр материалов:

- отсортированные твердые отходы, такие как защитная спецодежда, бумага, тряпки, стекло, инструменты и оборудование, которые находятся на хранении, избежав дальнейшего использования или переработки;
- жидкости, отстои и различные химические соединения;
- отходы (с уровнем активности выше 0,01 мкКи/г), которые были направлены на захоронение в наземные траншеи до 1970 года;
- грунт, загрязненный утечкой трансурановых отходов из контейнеров или использованный как барьер (ионно-обменная среда) для задержки миграции радионуклидов из потоков разбавленных жидких отходов.

Трансурановые РАО подразделяются на две категории: «контактного обращения» или «дистанционного обращения» в зависимости от величины интенсивности дозы на поверхности упаковки с отходами – меньше или больше 200 мР/час. Трансурановые РАО «дистанционного обращения» составляют ~ 3% общего объема. Высокий уровень радиации этой части отходов связан, как правило, с присутствием в них высокоактивных продуктов деления, например, Cs-137. Трансурановые РАО также подразделяются на дополнительную категорию «смешанных» отходов, если они содержат химически ядовитые компоненты, которые регулируются специальным законодательством. Около 55% трансурановых РАО относятся к категории «смешанных» отходов.

Общее количество трансурановых РАО «дистанционного обращения» оценивается в $2,5 \cdot 10^3 \text{ м}^3$, имеют удельную активность $\sim 10^3 \text{ Ки/м}^3$ и тепловыделение $\sim (1-2) \text{ Вт/м}^3$. Из уровня тепловыделения следует, что удельная α -активность составляет $\sim (30-60) \text{ Ки/м}^3$, а остальная часть активности определяется продуктами деления. Ежегодное производство этой категории отходов составляет $\sim 14 \text{ м}^3/\text{год}$, в

соответствии с чем их количество к 2004 году могло возрасти до $\sim 2,64 \cdot 10^3 \text{ м}^3$. Общая α -активность этих РАО может быть оценена в 0,12 МКи.

Общее количество трансурановых РАО «контактного обращения» оценивается в $\sim 7 \cdot 10^4 \text{ м}^3$, они имеют удельную активность $\sim (25-50) \text{ Ки/м}^3$ и тепловыделение $\sim (0,5-1,5) \text{ Вт/м}^3$. В соответствии с величиной тепловыделения удельная α -активность этой категории РАО составляет $\sim (15-45) \text{ Ки/м}^3$. Ежегодное производство трансурановых РАО «контактного обращения» составляет $\sim 1,5 \cdot 10^3 \text{ м}^3/\text{год}$, в соответствии с чем их количество к 2004 году могло возрасти до $\sim 8,5 \cdot 10^4 \text{ м}^3$. Общая α -активность этих РАО может быть оценена в $\sim 2,5 \text{ МКи}$.

1.6. Низкоактивные отходы

Низкоактивные отходы (НАО) определяются в США методом исключения ОЯТ, ВАО, трансурановых РАО или таких субпродуктов, как отвалы, полученные при добыче уранового или ториевого концентрата. Кроме того, они должны содержать менее 0,1 мКи/г трансурановых радионуклидов, и в их отношении действует ряд ограничений по продуктам деления или продуктам активности средне и долгоживущих радионуклидов.

НАО разделяются на три класса (А, В, С) по мере роста в них содержания радионуклидов и ужесточения требований обращения. Существуют «гражданские» НАО, которые имеют содержание радионуклидов, больше чем в классе С. НАО производится при утилизации объектов АЭС, при утилизации коммерческих производств, которые используют для выпуска своей продукции радиоактивные материалы, при утилизации медицинского оборудования, использующего радионуклиды, установок, использующих радионуклиды в целях НИОКР. Обращение с НАО DOE определяется правилами, действующими в DOE.

Коммерческие НАО отличаются большим разнообразием. К ним относятся:

- облученные компоненты, загрязненные материалы, жидкости для очистки и отстои атомных электростанций;
- загрязненные отходы элементов ядерного топливного цикла (например, при фабрикации ядерного топлива);
- промышленная активность (радиомедикаменты, производство источников);
- медицинские РАО;
- активность технологий, в основном, «трассеры» для биологических исследований или геологической разведки.

НАО DOE во многом совпадают с коммерческими НАО, но, кроме того, включают специфические отходы, связанные с производством ядерного оружия. Особенностью обращения с НАО в США является то, что, как правило, по мере их образования они подвергаются захоронению в грунте вблизи поверхности. Поэтому количество НАО, находящихся на хранении, невелико по сравнению с их

количеством, уже подвергшемуся захоронению. Одним исключением из этого правила является НАО, выходящее за пределы класса С.

Общее количество НАО, производимых DOE, составляет $\sim 3,8 \cdot 10^4$ м³/год, их удельная активность составляет $\sim (9-27)$ Ки/м³, а тепловыделение $\sim (0,01-0,05)$ Вт/м³.

Общее количество ежегодно производимых «коммерческих» НАО составляет $\sim 2,4 \cdot 10^4$ м³/год. При этом средний удельный уровень активности составляет для класса А $\sim 0,6$ Ки/м³, для класса В ~ 60 Ки/м³, для класса С – до $7 \cdot 10^3$ Ки/м³. Количество «коммерческих» НАО выше класса С составляет ~ 63 м³, а их ежегодное производство составляет ~ 20 м³/год.

1.7. Смешанные НАО

К смешанным НАО относятся НАО, содержащие также ядовитые химические вещества, регулируемые соответствующими правилами.

Коммерческие смешанные НАО представляют собой широкий спектр материалов различного происхождения. Объем их ежегодного производства достиг в 1990 году $\sim 3,5 \cdot 10^3$ м³/год, большую часть которых составляли жидкие сцинтилляторы. Другие материалы, отнесенные к этой категории, включали отходы нефтепереработки, хлорорганические соединения, тяжелые металлы (ртуть) и т.д. Основная часть этих НАО подвергалась захоронению по мере их образования, так что на хранении находилось только $\sim 2,1 \cdot 10^3$ м³ смешанных НАО «коммерческого» происхождения.

Смешанные НАО DOE также включают в себя широкий спектр материалов. На хранении находится $\sim 1,4 \cdot 10^5$ м³ материалов этого типа, из которых 68% составляют загрязненные неорганические твердые отходы, грунт и гравий. Предполагается, что рост объема этих отходов составляет $\sim 6 \cdot 10^3$ м³/год. Важным обстоятельством является то, что эти отходы хранятся на площадках DOE, причем скорость их переработки и захоронения меньше скорости образования новых отходов этой категории.

1.8. Рекультивация загрязненных объектов

DOE имеет сотни неиспользуемых площадок и производств, загрязненных радионуклидами или ядовитыми веществами либо и тем и другим. Существует долгосрочная программа рекультивации этих территорий и объектов. Радиоактивные отходы, связанные с этим загрязнением, не могут быть удовлетворительно определены:

- часто отсутствуют данные о природе материалов и скорости их загрязнения;
- процессы, которые будет использовать DOE для рекультивации, не определены, и невозможно оценить связанные с этим вторичные «потoki» загрязнения.

Основные виды загрязнения материалов на объектах, подлежащих рекультивации, разделяются на две категории: загрязненный грунт, включая осадки и отстой, и загрязненные фрагменты (металл, цемент, древесина, асфальт, кирпич, пластик, резина). Общий объем массы загрязненных материалов на объектах рекультивации оценивается в 80 млн. м³. Небольшая часть этих отходов ($1,7 \cdot 10^5$ м³) осталась от добычи высококонцентрированной урановой руды в годы Второй мировой войны и содержит высокие концентрации радия.

1.9. Излишки оружейного плутония

В середине 1990-х годов США определили свои излишки оружейного плутония в ~ 50 тонн и стали рассматривать варианты его утилизации. В основном рассматривали два проекта:

- иммобилизация плутония в стекловидной матрице в смеси с высокоактивными радионуклидами, источниками γ -излучения, в качестве радиационного барьера безопасности;
- создание на основе оружейного плутония МОКС-топлива и его использование в LWR.

Как известно, в конце концов, было принято решение об использовании оружейного плутония в составе МОКС-топлива, и в этих целях должен быть построен завод по фабрикации такого топлива. Стоимость проекта оценивается в 3 млрд. долларов с учетом утилизации плутония в течение 20 лет. Поскольку из 50 тонн оружейного плутония можно получить ~ 1000 тонн ТМ ядерного топлива, то цена топлива составит ~ 3 млн. долларов/тТМ, что существенно (приблизительно в два раза) превышает стоимость эквивалентного количества уранового топлива.

2. Общие особенности обращения с РАО

Характеристики, определяющие классификацию РАО в Российской Федерации, приведены в таблице 4.

Таблица 4 – Классификация РАО в Российской Федерации (СПОРО-2002)

Категория	Удельная активность (кБк/кг)		
	ТУЭ	α -активность	β -активность
НАО	< 10	$< 10^2$	$< 10^3$
САО	от 10 до 10^5	от 10^2 до 10^6	от 10^3 до 10^7
ВАО	более 10^5	более 10^6	более 10^7

Определение РАО регламентируется специальными правилами, принятыми в каждой стране. Эти правила время от времени пересматриваются. В России в настоящее время действуют «Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами», принятые в 2002 году (СПОРО-2002).

К жидким РАО относятся любые радиоактивные жидкости, если их удельная активность более чем в 10 раз превышает значения уровней вмешательства, регламентируемых НРБ-99. В таблице 5 для иллюстрации приведены такие нижние границы содержания некоторых радионуклидов в жидкостях, переводящие их в категорию радиоактивных отходов.

Таблица 5 – Минимальное содержание некоторых радионуклидов (Бк/кг) в жидких РАО (10 уровней вмешательства)

Нуклид	Тритий	Sr-90	Cs-137	Pu-239	Pu-238	U-235
Содержание	$7,7 \cdot 10^5$	$5 \cdot 10^2$	$1,1 \cdot 10^3$	56	60	$3 \cdot 10^2$

К твердым РАО относятся любые отходы, в которых удельная активность превышает значения минимальных значений удельной активности (МЗУА), регламентируемых НРБ-99. В таблице 6 для иллюстрации приведены такие нижние границы содержания некоторых радионуклидов в твердых веществах, переводящих их в категорию радиоактивных отходов.

Таблица 6 – Минимальное содержание некоторых радионуклидов (Бк/кг) в твердых РАО (МЗУА)

Нуклид	Sr-90	Cs-137	Ce-144	Pu-239	Pu-238	U-238
Содержание	10^5	10^4	10^5	10^3	10^3	10^4

При неизвестном радионуклидном составе твердые отходы считаются радиоактивными, если их удельная активность превышает:

- 10^5 Бк/кг для β -активных радионуклидов;
- 10^4 Бк/кг для α -активных радионуклидов;
- 10^3 Бк/кг для трансурановых актиноидов.

Основным источником жидких ВАО является первый цикл растворения ОЯТ и отделения из него основной части продуктов деления.

Таблица 7 – Объем РАО при переработке ОЯТ (на 1 т ТМ ОЯТ)

Тип	ВАО	САО	НАО
Объем (м ³)	4,5	150	2000

Рассмотрим для иллюстрации следующий пример.

Ядерная энергетика с электрической мощностью 30 ГВт на основе реакторов PWR ежегодно производит около 700 тонн ОЯТ, однако его активность (при временах выдержки в 30 лет, сопоставимых с оружейными программами) может быть оценена в 0,23 ГКи.

Таким образом, в рассматриваемом примере ядерной энергетики мощностью в 30 ГВт будет ежегодно производиться при переработке ОЯТ ≥ 3000 м³ ВАО.

Образующиеся ВАО могут храниться в виде азотнокислых растворов в емкостях («танках») из нержавеющей стали (например, емкости по ~ 600 м³, диаметром ~ 11 м и высотой ~ 6 м). Как правило, применяются системы двойной герметизации: или баки с двойными стенками просто устанавливаются в бетонных камерах, или баки с одинарными стенками устанавливаются в бетонных камерах, облицованных (герметично) нержавеющей сталью. Иногда используется тройная герметизация: баки с двойными стенками размещаются в герметичных (облицованных) бетонных камерах. Баки с ВАО снабжены теплоотводным оборудованием (охлаждаемыми змеевиками и кожухами). Система хранения включает резервные баки и средства перекачки раствора из любого рабочего бака в случае его разгерметизации в резервный бак. В ряде случаев используются средства принудительного перемешивания раствора в баках струей воздуха.

Хотя азотнокислые растворы ВАО могут храниться достаточно долго, в ряде случаев производится их нейтрализация щелочью (NaOH) с образованием целого спектра ВАО: водных растворов, отстоев, осадков и т.д. Существующая практика обращения с жидкими ВАО предусматривает через 20-30 лет их хранения отверждение отходов посредством кальцинации, остекловывания и т.д.

Жидкие САО образуются в промывных растворах при очистке отходящих газов при растворении ОЯТ, при выпаривании жидких НАО и при очистке экстрагента и его возвращении в рецикл, а также при дезактивации оборудования.

Твердые САО состоят из оболочек ТВЭЛОВ, деталей ТВС, защитных и очистительных органических материалов. В них может содержаться до $\sim 1\%$ переработавшихся урана и плутония.

Для уменьшения объема жидких НАО применяют технологию выпаривания. В процессе выпаривания достигается уменьшение объема в 20-30 раз. После некоторой обработки НАО могут сбрасываться в окружающую среду.

Твердые НАО состоят из материалов с наведенной активностью, деталей ТВС и активной зоны, деталей первого контура и контактных материалов (фильтров, пленок, спецодежды, отходов дезактивации и т.д.). Эти отходы, как правило, размещаются в приземных хранилищах (характерный объем хранилища может составлять $\sim 2,7 \cdot 10^3 \text{ м}^3$).

Материалы оболочек твэлов после растворения топлива могут оплавляться и храниться либо в цементных блоках, либо под водой.

Для концентрации жидких САО и НАО используют выпаривание, химическое осаждение, ионный обмен. При этом радионуклиды концентрируются в остаточном растворе, в осадках (пульпах), на ионообменном материале. Как правило, концентрированные отходы (кроме ВАО) цементируют в металлических бочках, включают в бетон, битум или полимеры. Промышленными методами является цементирование и битумирование. Отвержденные таким образом отходы хранят, обеспечивая отсутствие их контакта с водой. К местам таких захоронений, в частности, относятся бывшие рудники по добыче соли.

Для долгосрочных захоронений рассматриваются глубокие сухие выработки каменной соли, массивы гранитов, базальтов и сухих глин.

Жидкие НАО закачиваются через буровые скважины для захоронения в глубокие геологические формации.

Отдельную проблему представляет иммобилизация долгоживущих газообразных и летучих продуктов деления. К ним, прежде всего, относятся:

Kr-85; $T_{1/2} = 10,7$ лет; удельная наработка $3,2 \cdot 10^2$ Ки/ГВт·сут.

Тритий; $T_{1/2} = 12,3$ лет; удельная наработка 25 Ки/ГВт·сут.

I-129; $T_{1/2} = 1,6 \cdot 10^7$ лет; удельная наработка 1 мКи/ГВт·сут.

Для удаления и хранения Kr-85 рассматривались:

- криогенная дистилляция и хранение в стальных баллонах при высоком давлении или в цистернах при атмосферном давлении (наработка 1 г-моля соответствует энерговыработке в 100 ГВт·сут.);
- экстракция растворителем (фреоном);
- низкотемпературная сорбция на активированном угле.

Основная часть трития, накопленного в твэлах, содержится в самом топливе и частично в виде гидридов циркония, внедренных в оболочку твэла (наработка 1 г-моля соответствует энерговыработке ~ 1100 ГВт·сут.).

Как правило, задача удаления трития из ОЯТ должна решаться до его растворения, то есть на стадии механической разделки ТВС. Одним из методов, использующихся для этого, является окисление выходящего трития с образованием тритиевой воды и ее последующая адсорбция.

Удаление радиоактивного йода считается сложной задачей. Частично йод выделяется и поглощается на стадии разделки ТВС, затем удаляется из «ловушек», в которые он поступает на стадии растворения ОЯТ, и, наконец, часть йода должна удаляться из аппаратов, в которые он поступает на стадии экстракции, для чего используют специальные сорбенты с участием катализаторов.

Определенные проблемы связаны также с очисткой воздуха, выбрасываемого в атмосферу, от аэрозолей, которые содержат самые разные радионуклиды, начиная от частиц PuO_2 и кончая йодом.

3. Технологии обращения с ВАО

3.1. Особенности технологии хранения жидких ВАО в емкостях

После радиохимической переработки ОЯТ жидкие ВАО поступают на хранение в «танки» в виде азотнокислых растворов, содержащих до 250 г/л различных солей и приблизительно 7 молей HNO_3 . Интенсивная радиация ВАО определяет их тепловой нагрев и радиолиз воды и азотной кислоты. Радиолиз, однако, не приводит к выделению значительных количеств водорода. Раствор содержит также некоторое количество твердых нерастворимых компонентов, содержащих радионуклиды, которые могут образовывать при оседании зону повышенного тепловыделения.

Одной из основных проблем при хранении ВАО в «танках» является проблема коррозии. В США для ее решения рассматривались два подхода:

- нейтрализация растворов в «танках» из обычной стали;
- хранение азотнокислых растворов в «танках» из нержавеющей стали.

В результате опытно-промышленных работ было установлено, что требованиям безопасности отвечает только второй способ. Минимальная коррозия обеспечивается в «танках» из нержавеющей стали при использовании растворов с содержанием азотной кислоты от 2 до 4 молей на литр. При уровне содержания азотной кислоты менее 1 моля процесс коррозии усиливается благодаря процессам, связанным с действием ионов хлора (видимо, при нейтрализации раствора NaCl).

Нейтрализация азотной кислоты вызывает также другие проблемы. При этом образуются отстои, которые имеют тенденцию к осаждению, и при этом содержат в себе большую часть активности.

Несмотря на все принятые меры, требуется непрерывный мониторинг хранения жидких ВАО в «танках». Для предотвращения образования водяного пара при температурах выше 60°C используется система специального охлаждения.

Из-за важности проблем с охлаждением концентрация отходов в «танках» часто уменьшается, что приводит к использованию больших объемов и требует больших затрат на создание «танков».

Другие системы безопасности связаны с принудительным перемешиванием сжатым воздухом раствора в «танках» с тем, чтобы предотвратить возможность накопления отстоев.

3.2. Кальцинация

Одним из основных процессов отверждения ВАО является кальцинация. «Кальцинат» представляет собой продукт, полученный из жидких ВАО путем удалением из них летучих компонент, например, воды и нитратов. Процесс происходит при температурах в диапазоне от 400°C до 900°C. В результате образуется смесь оксидов продуктов деления, актиноидов и продуктов коррозии, образованных при хранении жидких ВАО в «танках». Полученный кальцинат не является химически устойчивым материалом из-за своей рыхлой структуры (удельная поверхность – 0,1-5 м²/г) и химической непрочности некоторых оксидов.

Для улучшения свойств кальцината используют различные технологии. В одной из них создается композит, включающий кальцинат и инертные связующие материалы, такие как карбид кремния или алюминий в составе металлической матрицы.

Другая возможность связана с так называемым «суперкальцинированием». Этот процесс по существу производит керамический компаунд, включающий ВАО и специальные химические компоненты, и происходит при температуре ~ 1200°C. Суперкальцинат требует размещения в специальной матрице, но не нуждается в добавках, поскольку он обладает достаточной химической устойчивостью. Кальцинат, как правило, является первичным продуктом для технологий промышленного остекловывания ВАО.

3.3. Технология остекловывания

В России для промышленного остекловывания жидких ВАО основное распространение получили керамические плавители прямого электрического (джоулевого) нагрева.

Одностадийный процесс реализуется в печи прямого электрического нагрева, осуществляемого за счет прохождения переменного тока между электродами, погруженными в стекло. Плавитель (печь) изготавливают из огнеупорных материалов.

В России реализован процесс остекловывания ВАО с одновременным получением алюмофосфатного стекла: фосфорная кислота (стеклообразователь) подается в плавитель вместе с упаренным раствором ВАО, чем достигается гомогенизация расплава.

Основой плавителя является электропечь, выложенная брусками из плавленной керамики и размещенная в металлическом водоохлаждаемом

корпусе. Печь имеет три зоны – варочную, переточную и накопительную. В поде печи каждой зоны вмонтированы на водоохлаждаемых токоподводах стержневые молибденовые электроды.

По мере наработки стекломасса периодически сливается в бидоны (канистры) и далее, после охлаждения и герметизации, бидоны комплектуются в пеналы (по три бидона), которые направляются во временное хранилище. Проектная производительность плавителя 450 ± 50 л/ч.

Созданная промышленная одностадийная установка отверждения ВАО вступила в эксплуатацию в 1987 году. За период эксплуатации было переработано более 20000 м^3 жидких ВАО с общей активностью более 0,45 ГКи и было получено более 4000 тонн стекломассы, которой заполнены около 8800 бидонов, поступивших на временное хранение.

В последние десятилетия в России и во Франции активно разрабатывается двухстадийный процесс отверждения жидких радиоактивных отходов, в котором на стадии плавления предусматривается использование индукционного плавителя с «холодным» тиглем (ИПХТ). Плавка в «холодном» тигле позволяет проводить синтез иммобилизованных форм радиоактивных отходов в интервале температур до 1800°C с получением материалов самого разнообразного состава – от остеклованных ВАО до различных минералоподобных и кристаллических материалов, включающих ВАО.

Наиболее перспективными материалами (см. п. 4.4) для отверждения жидких ВАО, для их последующего хранения и захоронения, представляются различные типы керамики и минералоподобные композиции – аналоги природных минералов, доказавших свою долговременную стабильность (структурную, термическую, радиационную и т.д.).

В последние годы большой интерес вызывает фракционирование отходов – переработка жидких ВАО с разделением отходов на фракции групп радионуклидов, близких по свойствам. В выделенных фракциях радионуклиды концентрируются в относительно небольших объемах, фракции практически не содержат балластных компонентов и могут быть иммобилизованы в индивидуальные, специфичные для данной фракции матрицы.

Достигнутый уровень разработки технологий фракционирования позволяет выделять из смеси жидких ВАО фракции щелочных и щелочноземельных металлов, редкоземельных элементов и актиноидов. Конечная цель обращения с фракционированными отходами – включение их в специфические твердые матрицы, пригодные для последующего захоронения в геологических формациях.

3.4. Получение керамических и других материалов

Получение керамических материалов в одностадийном процессе не приводит к положительным результатам, так как вследствие выделения газообразных продуктов во время кальцинации керамика получается пористой, с низким значением теплопроводности и высокой степенью выщелачивания. Поэтому в разрабатываемых процессах получения керамики предусматривается использование в качестве сырья кальцината, то есть проведение двухстадийного процесса.

Стремление получить материалы сходные по свойствам с природными минералами, которые были бы более стабильны при захоронении в геологических породах, чем стекла, привело к разработке ряда минералоподобных кристаллических продуктов на силикатной и других основах.

Более стабильные материалы по сравнению с фосфатной керамикой были получены при добавлении к отходам окислов кремния, кальция, алюминия и стронция с последующим прокаливанием кальцината. Такая обработка может позволить получить аналоги минералов, связывающих отдельные радионуклиды в прочные соединения, например, для цезия $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$.

Среди керамических материалов наибольшую известность приобрели керамики типа «Синрок» (SYNROCK). Главными компонентами различных вариантов таких керамик являются оксиды титана и циркония с добавлением оксидов кальция, бария и алюминия. Соединения получаются подобными существующим в природе минералам (циркониту, голландиту).

Как материал для фиксации радионуклидов, эти керамики обладают хорошими характеристиками, что объясняется прочным вхождением радионуклидов в кристаллические и минералоподобные матрицы. Недостатками технологии «Синрок» являются высокая стоимость исходного сырья и трудоемкость технологических операций.

Для повышения надежности захоронения радионуклидных источников исследуется введение металлических добавок, способных образовывать с матричным материалом твердые растворы с температурой плавления 250-300°C. Добавки, способные образовывать твердые растворы, позволяют устранить возникновение микротрещин и облегчить теплоотвод при хранении отвержденных радиоактивных отходов. Подобные металлические матрицы носят название витрометов. Металлическая фаза может быть представлена различными металлами и сплавами: Pb-Sb, Pb-Te, Zn-Al-Cu-Mg и другие.

Многие из изучаемых материалов, такие как минералоподобная керамика, «Синрок», витрометры и т.п., являются перспективными формами отверждения радиоактивных отходов, однако технология их получения и аппаратурное оформление процессов развиты значительно слабее, чем для остекловывания.

Таблица 8 – Синтез и исследования стекол и минералоподобных матриц, проводимых в организациях РФ

Матричная композиция	Тип отходов	Метод синтеза
Натрийалюмофосфатные стекла	BAO	ЭП, ИПХТ, СВЧ
Борофосфатные стекла	BAO	ЭП
Ультрафосфатные стекла	BAO	ЭП
Боросиликатные стекла	BAO	ЭП, ИПХТ, СВЧ
Боробазальтовые композиции	BAO	ЭП, ИПХТ
СИНРОК	BAO, ТУЭ, РЗЭ, Cs+Sr	ГП, ХПС, ИПХТ
NZP ($\text{NaZr}_2(\text{PO}_4)_3$)	BAO, ТУЭ, РЗЭ	ГП, ИПХТ
Пироксид ($\text{Ln}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$)	ТУЭ, РЗЭ	ХПС, СВЧ
Цирконолит ($\text{CaZrTi}_2\text{O}_7$)	ТУЭ, РЗЭ	ХПС, ИПХТ
Циркон (ZrSiO_4)	ТУЭ, РЗЭ	ХПС, ИПХТ
Перовскит (CaTiO_3)	BAO	ХПС, ИПХТ
Сфен (CaTiSiO_5)	BAO	ИПХТ
Гранат	ТУЭ, РЗЭ	ХПС, ИПХТ, СВЧ
Поллуцит ($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$)	Cs	ИПХТ
Диоксид циркония (ZrO_2)	ТУЭ	ИПХТ
Пироксен ($\text{NaFeSi}_2\text{O}_6$), $[\text{Ca}(\text{Mg,Fe})\text{Si}_2\text{O}_6]$	Cs, Sr	ИПХТ
Монацит (LnPO_4)	ТУЭ, РЗЭ	ХПС

Керамика и минералы – это те материалы, на основе которых можно синтезировать специфические матрицы. Так, для радионуклидов трансураниевых элементов, представляющих наибольшую опасность для биосферы, одним из эффективных путей иммобилизации является их включение в минералоподобные матрицы.

4. Технологии обращения с НАО и САО

Методы переработки жидких РАО включают следующие технологические операции:

- концентрирование радионуклидов методом упаривания, ионного обмена, сорбции и др.;
- отверждение концентратов методами упаривания до солей, битумирования, цементирования, включения в полимеры, стекло, керамику, стеклометаллические композиции, синтетические горные породы и др.;
- частичный возврат очищенных до санитарных норм воды, веществ и материалов, образующихся при переработке жидких РАО, для повторного использования в производстве.

Связующие, предполагаемые для отверждения концентратов среднеактивных и низкоактивных отходов можно разделить на три основных группы: термопластичные (битум и др.), неорганические (цемент, гипс) и термореактивные (полиэфирные и карбамидные смолы). Особняком стоят полимерно-композиционные материалы.

4.1. Технология уплотнения

Уплотнение – технология уменьшения объема, которая используется при переработке РАО, главным образом, при обращении с твердыми промышленными отходами низкого уровня активности (LLW). Некоторые страны (Германия, Великобритания и США) также используют эту технологию для уменьшения объема промышленных отходов промежуточного уровня активности. Диапазон установок для уплотнения может быть достаточно широк: от систем уплотнения с низкой силой давления (5 тонн или выше) до прессов с силой уплотнения более 1000 тонн, которые называют суперуплотнителями. Коэффициенты уменьшения объема обычно находятся между 3 и 10 в зависимости от вида обрабатываемых отходов.

Уплотнение с низкой силой давления осуществляется на гидравлических или пневматических прессах для сжатия отходов в подходящие для этого контейнеры, например, металлические бочки емкостью в 200 литров. Для достижения суперуплотнения большой гидравлический пресс сминает непосредственно металлическую бочку или другой резервуар, содержащий различные формы твердых отходов низкого или промежуточного уровня активности (LLW или ILW). Металлическая бочка или контейнер удерживается

в пресс-форме в течение уплотняющего хода суперуплотнителя, который до минимума уменьшает наружный размер бочки или контейнера. Сжатая металлическая бочка затем снимается с пресс-формы, и процесс повторяется. Две или больше смятых бочек, также называемые таблетками, затем герметизируются внутри контейнера для промежуточного хранения и/или окончательного захоронения.

Каждый год по всему миру уменьшается объем десятков тысяч металлических бочек, и они хранятся с отходами, объем которых уменьшен таким образом до 5 раз.

4.2. Технология прокаливания

Технология сжигания (прокаливания) в основном используется для уменьшения объема горючих отходов низкого уровня активности. Эта технология может использоваться для обработки как жидких, так и твердых отходов – древесины, бумаги, одежды, резины, а также органических отходов.

После отделения горючих отходов от негорючих составных частей отходы сжигают (прокаливают) в специально спроектированной печи для обжига и сушки при температуре до $\sim 1000^{\circ}\text{C}$. Любые газы, выделившиеся во время прокаливания, обрабатываются и отфильтровываются до их выпуска в атмосферу, и должны контролироваться для соответствия международным эталонам и национальным нормам выбросов в атмосферу.

После прокаливания остается зола, которая содержит радионуклиды, для нее может потребоваться дальнейшее кондиционирование вплоть до захоронения, например, посредством цементирования или битумизации. Для дальнейшего снижения объема зольных отходов может также использоваться технология уплотнения. В технологии прокаливания достигнуты коэффициенты снижения объема вплоть до 100 в зависимости от плотности сжигаемых отходов.

4.3. Цементирование

Включение в цемент – один из основных методов отверждения как гомогенных, так и гетерогенных отходов. Причина широкого распространения цементирования – негорючесть и отсутствие пластичности у отвержденного продукта, а также простота осуществления процесса смешивания концентрата отходов с цементом. Цементирование имеет ряд существенных недостатков:

- сравнительно невысокая степень включения отвержденных компонентов в цемент, что приводит к увеличению объема продукта;

- значительная вымываемость из цемента включенных в него компонентов;
- наличие большого количества воды в отвержденном продукте.

При большом количестве солей в цементе его прочность заметно снижается, что приводит к опасности раскалывания блоков при транспортировке.

Для увеличения степени наполнения стремятся цементировать практически сухие концентраты. Однако при этом уменьшается прочность отвержденного продукта и усложняется технология процесса.

Для уменьшения вымываемости радионуклидов из цементной матрицы их обычно переводят в нерастворимые соединения или сорбируют на специальных добавках, которыми часто служат различные глинистые материалы или сланцы. Другой путь сокращения вымываемости – уменьшение пористости цементного камня. Для этого добавляют специальные вещества (в основном полимеры) и проводят цементирование под вакуумом. Однако такие меры уменьшают вымываемость не более чем на порядок, но в то же время сильно усложняют технологию. Практическое применение нашли добавки к цементу силиката натрия. Эти добавки улучшают практически все основные показатели цементирования: прочность, степень наполнения, текучесть, совместимость с основными компонентами отходов.

Радиационная стойкость собственно цемента высока. Радиационному воздействию в цементированных отходах подвержены содержащаяся там вода, нитраты и другие радиационно-нестойкие компоненты.

Цементирование характеризуется таким качеством, как способностью сохранять неизменной форму цементных блоков.

Гипс, как и цемент, является строительным материалом, который можно использовать для отверждения радиоактивных отходов. Отмечаются такие специфические свойства гипса с добавкой силиката натрия, как отсутствие необходимости в перемешивании после его заполнения отходами непосредственно в емкости для захоронения, а также возможность включения в эту матрицу кислых отходов. Но, в целом, возможность использования гипса в качестве связующего материала мало изучена.

4.4. Совершенствование технологии цементирования радиоактивных отходов

Важным для кондиционирования жидких радиоактивных отходов является способность цемента связывать воду. Вместе с развитием промышленности, появлением все новых видов радиоактивных отходов,

увеличением их объема и одновременно усилением контроля безопасного обращения и хранения радиоактивных материалов процесс цементирования радиоактивных отходов должен совершенствоваться и отвечать современным требованиям.

Введена в эксплуатацию установка цементирования радиоактивных отходов с точным дозированием компонентов цементного раствора, которая позволяет приготавливать цементный компаунд, отвечающий всем требованиям ГОСТ Р 51883-2002 «Отходы радиоактивные цементированные». Выполнение требований этого документа обеспечивает безопасность при обращении с отходами при их хранении и захоронении в приповерхностных сооружениях в соответствии со временем распада радионуклидов, включенных в цементный компаунд, до безопасного уровня.

Создана новая установка цементирования, предназначенная для кондиционирования в стальных контейнерах зольного остатка от сжигания радиоактивных отходов, а также других видов твердых отходов, имеющих в насыпном объеме пустоты.

В работе установки реализуется новый метод цементирования – пропитка насыпного объема твердых радиоактивных отходов специальными многокомпонентными высокопроникающими цементными растворами на основе сверхтонкомолотого цемента. Цементирование пропиткой заключается в подаче через зонд высокопроникающего цементного раствора в придонную часть контейнера с предварительно размещенными в нем твердыми отходами и прокачивании цементного раствора сквозь насыпной объем отходов. Цементный раствор поднимается снизу вверх по контейнеру, равномерно заполняя мельчайшие пустоты и поры между частицами отходов. По окончании пропитки объем полученного цементного компаунда равен насыпному объему отходов, то есть объем конечного продукта по сравнению с первоначальным насыпным объемом отходов не увеличивается.

Предотвращение биоповреждения строительных материалов на основе цементов является весьма актуальной проблемой. Микробиологический фактор коррозии обусловлен поселением и развитием на поверхности бетонных сооружений бактерий и микроорганизмов, выделяющих в процессе жизнедеятельности метан, углекислоту, серный ангидрид, водород, летучие хлорсодержащие компоненты, серную кислоту и другие химические вещества, которые агрессивно воздействуют на строительные растворы, бетон и арматуру, что существенно снижает технические характеристики цементного камня.

Известно, что разрушение в бетонных сооружениях происходит, прежде всего, из-за растворения гидросиликатов в процессе взаимодействия кислоты с вяжущим материалом. Хотя щелочные гидраты нейтрализуют первоначально образовавшуюся кислоту, ферментация и сама метаболическая активность продолжаются, поскольку сохраняются питательная среда, бактерии и влажность, что приводит к потере бетоном прочностных характеристик.

Положение усугубляется сезонными колебаниями температуры, которые со временем способствуют увеличению пористости цементного компаунда, образованию в теле цементного монолита пустот и полостей, способствующих проникновению поверхностных и грунтовых вод вглубь компаунда.

В качестве перспективных средств для защиты цементной матрицы в технологиях цементирования радиоактивных отходов были выбраны биоцидные полимеры класса полигексаметиленгуанидинов (ПГМГ). Основные преимущества этих препаратов – высокая биоцидная активность, хорошая растворимость в воде, очень низкая токсичность, длительный срок хранения без потери функциональных свойств, наличие российского производителя. Биоцидные материалы класса ПГМГ разработаны в Институте эколого-технологических проблем.

Было установлено, что препараты ПГМГ не только не ухудшают свойства цементных композиций, как большинство биоцидных препаратов, но и способны значительно улучшать:

- прочность и устойчивость к агрессивным воздействиям цементных компаундов;
- реологические и пенетрационные свойства высокопроникающих цементных растворов при пропитке радиоактивных отходов;
- строительно-технические свойства цементно-песчаных смесей при изготовлении бетонных контейнеров.

Активно ведется разработка технологических процессов, оборудования и цементных композиций, которые могут найти применение при цементировании радиоактивных отходов атомных электростанций и различных радиохимических производств.

Разработан технологический процесс и эксплуатируется опытная технологическая линия по цементированию радиоактивных илистых отложений и грунтов. Процесс включает в себя стадию высокотемпературной обработки. Снижение объема конечного продукта по сравнению с первоначальным объемом илов составляет 3-6 раз.

Разработаны оборудование и технология цементирования жидких радиоактивных отходов, содержащих борную кислоту или большое количество органических соединений с использованием электромагнитной обработки в вихревом слое. Оптимизированы составы компаундов для совместного цементирования высокосолевых жидких радиоактивных отходов с солесодержанием до 1000 г/л и отработанных ионообменных смол.

4.5. Битумирование

Наиболее распространенное термопластичное связующее – битум – представляет собой продукт перегонки нефти и каменного угля.

Причина широкого распространения процесса битумирования радиоактивных отходов состоит в том, что битум характеризуется термопластичностью, позволяющей при нагревании успешно включать его в концентраты РАО с получением гомогенного продукта, а также гидростойкостью, обеспечивающей надежную изоляцию включенных компонентов.

При введении в битум отходов его свойства изменяются. Изменения вызываются взаимодействием битума и наполнителей. Битумные блоки наполняют сухими радиоактивными веществами на 40-60%. Битум обладает высокими гидроизолирующими свойствами, и обычно скорость вымывания солей из него характеризуется значением 10^{-4} - 10^{-5} г/см²·сут.

Включения в битумные смеси ионообменных смол и кристаллогидратов приводит к увеличению объема наполнителя и разбуханию смеси. Присутствие синтетических моющих средств (сульфанол) пластифицирует битум, но в то же время нарушает его целостность и частично переводит его в коллоидный раствор. Оба эти явления уменьшают водостойчивость конечного продукта. Для уменьшения вымываемости радионуклидов их стремятся перевести в нерастворимую форму или закрепить на каком-либо носителе – селективном сорбенте. Так, при введении в битумную смесь ферроцианида никеля для связывания цезия, вымываемость данного радионуклида заметно уменьшается.

Скорость выщелачивания радионуклидов зависит от свойств используемых битумов. При облучении битумов скорость выщелачивания радионуклидов изменяется незначительно.

Битумные блоки устойчивы лишь до температуры 350°C. Увеличение содержания солей в битумной смеси может вызывать ее расслаивание в разогретом состоянии при транспортировке или в начальном периоде хранения. Битумная смесь также может являться пищей для бактерий, живущих в почве в

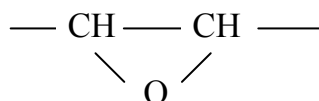
районе хранения. Это может привести к разрушению битумных блоков и высвобождению хранящихся в них радионуклидов.

4.6. Отверждаемые эпоксиакриловые композиции

Отверждаемые композиции на основе эпоксидных смол (ЭС) обладают рядом ценных свойств:

- высокой химической устойчивостью и механической прочностью;
- повышенной радиационной и теплостойкостью;
- хорошей адгезией к различным материалам (металлам, стеклу, керамике, бетону).

К эпоксидным соединениям относят широкий класс веществ, содержащих в своей цепи эпоксидную группу, называемую также альфа-оксидным циклом:



Самым важным свойством ЭС является их способность при введении отверждающих агентов переходить в неплавкое и нерастворимое состояние с трехмерной сетчатой структурой. В качестве таких агентов могут выступать диамины и полиамины, полиамидные смолы, ангидриды кислот и пр. Отверждение может проводиться как при нагревании, так и при комнатной температуре. Использование в качестве добавки акриловой кислоты (АК) позволило создать композицию на основе эпоксидного соединения, отверждаемую на воздухе и при комнатной температуре с использованием для отверждения радиационного воздействия РАО с не слишком высокими дозами.

Эпоксиакриловые композиции (ЭАК) готовят смешением эпоксидных смол с акриловой кислотой и длительным выдерживанием в течение нескольких месяцев. Структура и свойства наполненных композитов определяются в основном двумя факторами: свойствами наполнителя, размером и формой его частиц, его содержанием в системе, а также изменениями в полимерной матрице за счет взаимодействия полимер-наполнитель.

Отвержденные ЭАК могут включать в себя до 50% различных добавок, в том числе и радионуклидов. При этом скорость выщелачивания достаточно низка (менее 10^{-6} г/см²·сут.). Радиационная стойкость ЭАК оценивается в 10^8 Гр.

Эти свойства отвержденных ЭАК позволяют использовать эти композиции для связывания радиоактивных отходов среднего и низкого уровня активности в количестве до 50% по массе без затрат на дополнительную гидроизоляцию при хранении. Однако оценки показывают, что при активности САО до 1 Ки/л и дозах отверждения 10-50 кГр радиационное структурирование ЭАК будет протекать в течение многих месяцев или даже лет. С целью снижения дозы полного отверждения в ЭАК в качестве сенсibiliзирующей добавки вводят небольшие количества отвердителя. Отвердители, вступающие в химические реакции с функциональными группами эпоксидных смол, соединяют молекулы между собой, удлиняя цепи и создавая поперечные связи между ними.

4.7. Кондиционированные РАО

Перевод РАО в форму, пригодную для транспортировки, хранения и захоронения, предполагает кондиционирование отходов, т.е. их переработку и создание упаковки, соответствующей необходимым требованиям для этих целей. Кондиционированные РАО должны находиться в твердом состоянии и обладать требуемой устойчивостью к радиационным, химическим, механическим тепловым воздействиям. В таблице 9 приведены характеристики требований действующего ГОСТ Р50926-96, определяющие параметры отверждения ВАО.

Размещение переработанных РАО в контейнер с его герметизацией является последним этапом кондиционирования отходов. Контейнер предназначен:

- для временного хранения РАО в наземном инженерном сооружении;
- для транспортировки РАО;
- для длительного хранения в инженерных сооружениях или захоронения РАО.

Срок эксплуатации контейнера при хранении в наземных сооружениях определяется продолжительностью времени до окончательного захоронения РАО в геологической формации и составляет не менее 50 лет.

Для твердых НАО и САО в РФ разработан и серийно выпускается невозвратный железобетонный защитный контейнер НЗК-150-1,5П, рассчитанный не только на хранение, но и на захоронение РАО, а также для перевозки отходов к местам окончательной изоляции. Срок службы контейнера в условиях временного хранения на площадках АЭС составляет не менее 50 лет. При захоронении в приповерхностных или подземных могильниках

контейнер обеспечивает изоляцию отходов в течение 300 лет. Оболочка контейнера использует цементный состав, предотвращающий миграцию нуклидов в окружающую среду. Габаритные размеры контейнера: $1,65 \times 1,65 \times 1,375$ м, его емкость: $1,5 \text{ м}^3$.

Таблица 9 – Параметры, характеризующие качество высокоактивных отвержденных отходов

	Наименование параметра	Значение
1.	Химическая устойчивость (скорость выщелачивания): Cs-137 (г/см ² ·сут.) не более Sr-90 (г/см ² ·сут.) не более Pu (г/см ² ·сут.) не более	$1 \cdot 10^{-6}$ $1 \cdot 10^{-6}$ $1 \cdot 10^{-7}$
2.	Однородность в объеме стеклоблока: структура равномерность химического состава по основным макрокомпонентам, %	Однородная ± 10
3.	Температурная устойчивость (отсутствие изменений структуры и химического состава) при температуре, °С, не менее	550
4.	Массовая доля оксидов продуктов деления для блока отвержденного материала диаметром 100 мм, %, не менее	7
5.	Радиационная устойчивость (неизменность показателей по пп. 1, 2) к: β и γ -излучению, Гр α -излучению, расп./г	$1 \cdot 10^8$ $1 \cdot 10^{18} - 1 \cdot 10^{19}$
6.	Механическая прочность: на сжатие, кН/см ² , не менее на изгиб, кН/см ² , не менее модуль упругости, кН/см ² , не менее	0,9 4,1 $5,4 \cdot 10^3$
7.	Теплофизические константы: коэффициент линейного расширения, К ⁻¹ , не более теплопроводность в интервале температур от 20 до 500°С, Вт/(м·К)	$9 \cdot 10^{-8}$ 1-2
8.	Газовыделение	Недопустимо
9.	Массовая доля суммы делящихся веществ, %, не более	2

4.8. Вывод АЭС из эксплуатации

В соответствии с действующими в РФ правилами вывод энергоблоков АЭС из эксплуатации предполагает после удаления ядерного топлива обеспечение мер, исключающих использование блока в качестве источника энергии и гарантирующих безопасность персонала, населения и окружающей среды.

На стадии подготовки энергоблока к выводу эксплуатации производится ряд мероприятий, включая:

- удаление ядерного топлива из активной зоны реактора и помещений энергоблока АЭС;

- удаление радиоактивных рабочих сред из оборудования и технологических систем;
- удаление или переработку эксплуатационных радиоактивных отходов;
- штатную дезактивацию оборудования, систем и строительных конструкций энергоблока.

В РФ остановлены четыре энергоблока (водографитовые реакторы № 1 и 2 Белоярской АЭС и легководные реакторы № 1 и 2 Нововоронежской АЭС), и на них проводятся работы по подготовке к выводу из эксплуатации.

Особенности процедуры вывода энергоблоков АЭС из эксплуатации в РФ определяются:

- отсутствием в РФ национальных и региональных могильников и хранилищ для захоронения РАО;
- наличием на площадке АЭС работающих энергоблоков, для которых должна быть обеспечена безопасность эксплуатации;
- закреплением за эксплуатирующей организацией площадок АЭС в вечное пользование.

Важным фактором является необходимость выделения крупных финансовых средств на демонтаж энергоблока.

Вывод энергоблока из эксплуатации состоит из трех фаз:

- подготовка энергоблока к сохранению под наблюдением (5-6 лет);
- сохранение энергоблока под наблюдением (30-100 лет);
- ликвидация энергоблока как радиационно-опасного объекта (5-6 лет).

На первой стадии производятся:

- локализация высокоактивного оборудования в помещении реакторного отдельного блока;
- консервация оборудования, систем и конструкций блока;
- демонтаж и удаление чистого и низкоактивированного оборудования и систем с их утилизацией или переработкой и хранением в хранилище на площадке АЭС.

На второй стадии производятся:

- эксплуатация зданий и оборудования, обеспечивающая режим сохранения под наблюдением;
- радиационный контроль и мониторинг.

На третьей стадии производятся:

- полный демонтаж локализованного оборудования;

- переработка и вывоз всего РАО на захоронение;
- рекультивация территории.

В связи с крупными затратами, необходимыми для демонтажа АЭС, и возможностью при этом частичного рассеивания радионуклидов в окружающую среду, высказываются мнения о нецелесообразности полного демонтажа сооружений АЭС. При этом считается, что эти сооружения сами по себе являются необходимым барьером безопасности, препятствующими выходу радиоактивности в окружающую среду в течение требуемого времени.

Оценка стоимости демонтажа энергоблока составляет (300-500) млн. долларов.

4.9. Некоторые проблемы обращения с РАО в РФ

В ходе эксплуатации АЭС образуются твердые, жидкие и газообразные отходы, относящиеся к категориям САО и НАО. Все накопленные и производимые отходы должны быть подвергнуты кондиционированию. После кондиционирования они должны находиться в контролируемых хранилищах АЭС до создания региональных могильников.

К концу 1990-х годов кондиционирование с использованием технологии битумирования осуществлялось на трех АЭС. Процессы битумирования осуществлялись при температуре 130-150°C с образованием битумного компаунда, содержащего до 40% РАО (в сухом виде).

На остальных АЭС жидкие РАО хранятся в специальных емкостях. В их отношении (для уменьшения объемов) производилось концентрирование на установках глубокого упаривания (УГУ).

Твердые РАО АЭС хранятся в приповерхностных бетонированных хранилищах.

Газообразные РАО АЭС подвергаются фильтрации, обеспечивающей допустимый выброс активности в окружающую среду.

Подчеркивалась необходимость оснащения всех АЭС РФ системами для кондиционирования РАО.

РАО, полученные при эксплуатации ядерных исследовательских реакторов в различных организациях РФ, а также РАО, образующиеся при использовании для различных целей изотопной продукции, поступают для захоронения на специализированные предприятия. Могильники представляют собой приповерхностные бетонные гидроизолированные сооружения траншейного типа и предназначены для захоронения кондиционированных НАО.

К первоочередным задачам в области обращения с РАО для предприятий ЯОК отнесены:

- оснащение всех предприятий установками для отверждения всех видов жидких РАО, для исключения длительного хранения жидких ВАО в емкостях («танках») и сброса САО и НАО в водоемы-хранилища;
- поэтапная консервация и рекультивация открытых водоемов-хранилищ.

Для предприятий ядерно-энергетического сектора необходимо:

- оснащение всех АЭС системой установок по кондиционированию жидких и твердых РАО;
- создание хранилищ для долговременного хранения ОЯТ РБМК;
- создание хранилищ для долговременного хранения отвержденных РАО;
- создание современных контейнеров и средств их перевозки;
- создание технологий утилизации и рекультивации для вывода АЭС и исследовательских реакторов из эксплуатации.

5. Технологии остекловывания

5.1. Виды технологий остекловывания

Остекловывание, как процесс конвертации вещества в стекловидную матрицу, часто рассматривается при обращении с различными видами отходов. Остекловывание, в принципе, привлекательно из-за потенциальной устойчивости полученного продукта и гибкости процесса в отношении его использования для различных видов отходов. Эта особенность определила особую роль остекловывания в качестве метода иммобилизации РАО в различных государствах.

Остекловывание может производиться «на месте» нахождения отходов (ISV – in situ vitrification) или за пределами территории, где находятся отходы (ESV – ex situ vitrification). Как ISV, так и ESV имеют свои достоинства и недостатки.

Преимуществом метода ISV является то, что в этом случае отсутствуют вопросы, связанные с транспортировкой отходов на завод. В случае высокой активности отходов или высокой токсичности и летучести это может быть важным преимуществом. После остекловывания «на месте» продукт переработки остается под землей на площадке, что ограничивает ответственность за безопасность территорией площадки первоначального местонахождения отходов.

Метод ESV требует извлечения отходов и их транспортировки, что увеличивает число процедур обращения с отходами до остекловывания, но позволяет использовать для остекловывания более разнообразные технологии. Это повышает возможность контроля качества материала, который является продуктом остекловывания. Такой контроль позволяет более эффективно управлять процедурой смешивания и условиями, при которых происходит создание расплава. Вместе с тем, ISV позволяет использовать более высокие температуры (обычно 1600-2000°C) по сравнению с ESV (обычно 1000-1600°C).

Стекло представляет собой твердый, аморфный (некристаллический) материал с относительно низкой пористостью. Оно образуется такими компонентами, как окислы кремния, бора, алюминия, щелочных и щелочноземельных металлов. К важным видам стекол также относятся фосфатные, сульфидные и оксинитридные стекла, хотя для иммобилизации отходов используются в основном боросиликатные, натрийсиликатные и алюмосиликатные стекла. Остекловывание, как правило, является термическим процессом. Как «стабилизационный» процесс, остекловывание может иммобилизовать неорганические отходы, включая их в структуру стекла или капсулируя их внутри стекла. Органические отходы в процессе остекловывания также подвергаются термическому разложению.

Часто отходы (загрязненные материалы) содержат требуемое количество необходимых ингредиентов для образования стекла. При нагреве таких отходов ингредиенты сплавляются и образуют стекло, в котором иммобилизовано

загрязнение. Однако не все отходы обладают такими качествами, и в этом случае процесс остекловывания предполагает добавление недостающих ингредиентов или специальных добавок, регулирующих характеристики получаемого стекла.

Остекловывание имеет четыре важных преимущества по сравнению с другими технологиями обращения с отходами. Первым преимуществом является стабильность (прочность) иммобилизации отходов в стекле. Существенно, что стекло исключительно устойчиво к выщелачиванию. Второе преимущество связано с возможностями иммобилизации в стекле самых различных материалов, причем внедрение в структуру стекла иммобилизуемых материалов может производиться без нарушения его качества. Третьим преимуществом является то, что остекловывание применимо как для неорганических, так и для органических материалов. Четвертым преимуществом является то, что при остекловывании может уменьшаться объем отходов.

Технология остекловывания предполагает, однако, выполнение ряда условий или ограничений. Первое условие предполагает значительные энергозатраты на проведение работ, в том числе в виде электроэнергии. Второе ограничение может быть связано с летучестью отдельных видов загрязнителей, что имеет значение как для метода ISV, так и для ESV. Для ISV летучие соединения или элементы могут мигрировать в грунт, окружающий расплав. Это ограничение может потребовать модификации параметров технологии и обращения с полученным расплавом.

Считается, что остекловывание является основным видом для обращения с ВАО. Агентство по охране окружающей среды США определило остекловывание как наилучшую продемонстрированную технологию для обращения с ВАО.

5.2. Особенности структуры стекла для остекловывания отходов

Стекла, производимые термическим образом, образуются в процессе плавления кристаллических и/или аморфных материалов при температурах, переводящих базовые материалы в жидкое состояние. Затем эти жидкости охлаждаются и отвердевают без процесса кристаллизации. Однако большинство термически сформированных стекол для иммобилизации отходов имеют также и кристаллическую фазу. Так, например, продукт остекловывания «на месте» представляет собой смесь стекла и микрокристаллов. Основной компонентой стекла является двуокись кремния (SiO_2).

Силикатные стекла состоят не из отдельных молекул, а представляют собой трехмерные структуры. Базовой ячейкой этой структуры является тетраэдр, образуемый связями кремний-кислород, в котором атом кремния окружен четырьмя атомами кислорода. При этом в идеале каждый атом кислорода входит одновременно в состав другого тетраэдра. Такие атомы кислорода называют мостиковыми (соединяющими) атомами. В чисто силикатном стекле отношение числа атомов кремния к числу атомов кислорода составляет 1:2, и все атомы кислорода являются

мостиковыми. Когда в состав стекла входят другие атомы, например, натрий, они образуют ионную связь с атомами кислорода, нарушают связи тетраэдра и непрерывность трехмерной решетки тетраэдров. Атомы кислорода, связанные ионным образом с другими атомами, называются немостиковыми.

В силикатные стекла могут быть включены существенные количества большинства неорганических отходов. Элементы, которые могут заменить кремний, называются структурообразователями. Заменяя кремний в решетке стекла, некоторые элементы (например, ряд металлов в середине таблицы Менделеева) могут быть включены в структуру стекла. Большинство одновалентных и двухвалентных катионов (такие как натрий, кальций, другие металлы и металлоиды, расположенные по краям периодической таблицы) не входят в прежнюю решетку, а образуют ионную связь с немостиковыми атомами кислорода, и приводят к созданию измененной решетки. В этом случае можно говорить об элементах-модификаторах структуры. Изменение решетки и структуры стекла проявляются в изменениях таких его свойств, как температура размягчения и химическая прочность (выщелачиваемость, растворимость).

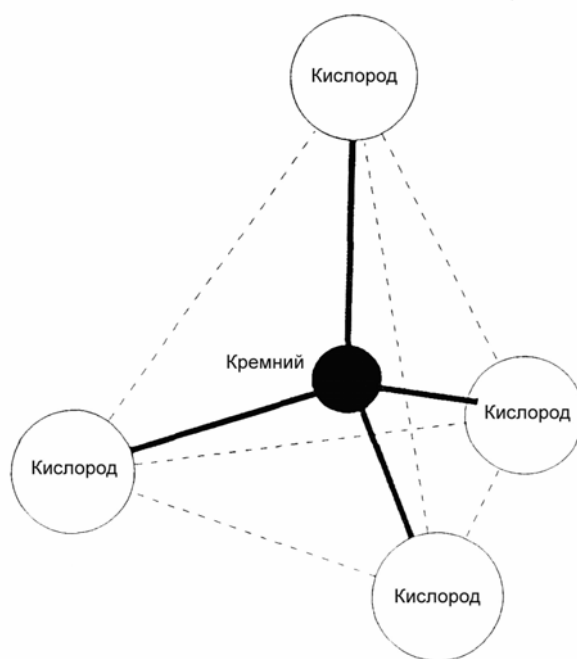


Рисунок 1. Тетраэдр, образуемый связями кремний-кислород

Роль некоторых элементов может изменяться в различных условиях. Так, алюминий может выступать в одних случаях, как структурообразователь, а в других случаях как модификатор структуры.

Из-за сетчатой структуры стекла его композиция не описывается химической формулой. Общим способом описания стекол является «список» относительных

количеств различных оксидов базовых элементов, использованных при создании стекла, даже если эти оксиды не существуют непосредственно в решетке стекла.

Простейшее стекло может быть получено нагревом SiO_2 выше температуры плавления и быстрым его охлаждением при затвердевании. Для того чтобы, например, уменьшить его вязкость и снизить температуру плавления, необходимо в его состав добавить модификаторы структуры, образующие немостиковые атомы кислорода. К таким модификаторам относятся щелочные металлы, например, натрий.

С другой стороны, щелочные металлы могут внедряться в стекло в виде карбонатов или других солей, что будет приводить к повышению температуры, необходимой для образования силикатной жидкости.

Уменьшение температуры плавления приводит к уменьшению необходимых энергетических затрат. Нежелательным фактором является то, что добавление щелочных металлов в стекло приводит к уменьшению его химической прочности по сравнению с идеальным силикатным стеклом. При высоком содержании щелочных металлов стекло становится растворимым в воде (основа для индустрии силикатных растворов). Для того чтобы уменьшить растворимость щелочных стекол, но сохранить низкую температуру плавления, используют добавки щелочноземельных соединений, например, окись кальция или окись магния. Однако значительные количества кальция могут приводить при охлаждении к процессу кристаллизации.

Добавки щелочных металлов при производстве стекол обычно производятся в виде бикарбоната соды (Na_2CO_3), а добавки щелочноземельных металлов – в виде извести (CaO). Поэтому данная категория промышленных стекол называется известково-натриевыми стеклами. В таблице 10 приведены типичные составы известково-натриевого стекла (SLG), используемого для изготовления оконных стекол, стеклянных емкостей и двух типов стекол для иммобилизации отходов: боросиликатного стекла (BSG) и примера стекла ISV (ISVG), полученного при работе с грунтом в Национальной лаборатории в Айдахо.

Таблица 10 – Состав некоторых типов стекол

Оксид	Содержание (% вес.)			Оксид	Содержание (% вес.)		
	SLG	BSG	ISVG		SLG	BSG	ISVG
SiO_2	65-75	48,95	71,2	Li_2O	–	4,28	-
Na_2O	12-16	16,71	1,55	MnO	–	1,34	0,11
CaO	6-12	1,13	3,58	TiO_2	–	0,71	0,76
Al_2O_3	1-2	3,67	13,5	NiO	–	0,61	0,12
K_2O	0,1-3	0,04	2,47	ZrO_2	–	0,41	0,07
MgO	0,1-5	1,66	1,87	La_2O_3	–	0,41	-
B_2O_3	–	11,12	–	SrO	–	-	0,2
Fe_2O_3	–	8,08	4,63	BaO	–	-	0,1
FeO	–	0,89	–				

Хотя известково-натриевые стекла могут использоваться для иммобилизации отходов, к специальным видам стекол, предназначенных для этих целей, относятся боросиликатные стекла. Специальные стекла для иммобилизации, как правило, содержат меньше SiO_2 и больше железа и алюминия, чем SLG. Большинство характерных видов грунта и, соответственно, ISVG также содержат больше алюминия и железа и меньше SiO_2 и щелочных металлов, чем SLG. Поэтому алюмосодержащие стекла являются наиболее типичным видом стекол, используемых для иммобилизации отходов.

Интересно отметить, что многие металлы, представляющие угрозу с точки зрения охраны окружающей среды, легко внедряются в структуры стекла, и они зачастую используются в целях придания стеклам определенного цвета.

Отходы могут быть иммобилизованы остекловыванием с помощью двух процессов: химической связи и капсулирования.

Иммобилизация за счет химической связи разделяется на две группы. Первая группа предполагает ковалентную связь с атомами кислорода силикатной решетки, в результате которой иммобилизованные атомы становятся частью решетки. Вторая группа предполагает ионную связь с атомами кислорода, что приводит к модификации структуры.

При отсутствии химического взаимодействия с решеткой иммобилизованные материалы окружены стеклом, которое, с одной стороны, препятствует их выходу из материала стекла, а, с другой стороны, препятствует проникновению в капсулу внешних химических агентов.

5.3. Нарушение стабильности остеклованных отходов

В отношении остеклованных материалов, как правило, используют термин «инертные», характеризуя их взаимодействие с окружающей средой. Хотя это является их важнейшей особенностью, однако все остеклованные материалы до некоторой степени способны подвергаться воздействию и разрушению. К таким взаимодействиям относятся, прежде всего, «растворение матрицы» и «взаимная диффузия».

Растворение матрицы определяется щелочным взаимодействием. Оно начинается гидрированием силикатной решетки и может приводить к растворению остеклованного материала. В идеальной силикатной решетке процесс растворения материала описывается уравнением: $2\text{NaOH} + \text{SiO}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{SiO}_3$.

Силикат натрия (в данном примере Na_2SiO_3) растворим в воде, а поскольку силикатная структура подверглась деструкции и растворена, то вслед за этим разрушению подвергаются и включенные в решетку иммобилизованные материалы. Скорость щелочной коррозии постоянна, а количество разрушенного (растворенного) материала линейно растет со временем. Однако скорость процесса может изменяться, если растворимые материалы насыщают раствор, или если нерастворимые продукты

реакции накапливаются на поверхности, блокируя реакцию. Щелочная коррозия в сильной степени зависит от величины pH. Так, скорость реакции увеличивается в 2-3 раза при увеличении pH на каждую единицу. Соответственно и увеличение температуры на каждые 10°C приводит к увеличению скорости щелочной коррозии в 2-2,5 раза.

Взаимная диффузия является типичной кислотной коррозией остеклованного материала. В то время как щелочная коррозия приводит к поверхностному растворению остеклованного материала, взаимная диффузия является ионно-обменным процессом, который преимущественно экстрагирует элементы, являющиеся модификаторами структуры, оставляя силикатную структуру практически неизменной. В общем виде взаимная диффузия включает обмен ионов водорода в растворе на элементы, связанные ионным образом со стеклообразующей решеткой. Хотя «взаимную диффузию» часто называют также выщелачиванием, однако это более точный термин. Термин «выщелачивание» обычно используется для определения потерь элементов материала без указания механизма. В данном случае «взаимная диффузия» представляет собой вполне определенный механизм.

Скорость «взаимной диффузии» возрастает в 1,5-2 раза при увеличении температуры на каждые 10°C. В зависимости от композиции остеклованного материала pH выщелачиваемого раствора влияет на скорость кислотной коррозии. Однако в целом эта зависимость не такая сильная, как для щелочной коррозии. Скорость кислотной коррозии стекла также пропорциональна $\sqrt{t}$.

Выщелачивание примесных компонентов трудно предсказать, но можно предположить, что в дополнение к щелочным и щелочноземельным элементам этому процессу подвержены такие модификаторы структуры, как: Ba, Be, Co, Cu, Pb, Mg, Mn, Ni, Ag, Sr, Zn, Cs.

Вода разрушает остеклованные материалы, но существенно слабее, чем щелочь или кислоты. С водой может быть связан как щелочной, так и кислотный механизм разрушения, так как она содержит и ионы водорода, и ионы гидроксила. Однако в статических условиях водная коррозия быстро переходит в щелочную коррозию, так как щелочные элементы, присутствующие в стекле, экстрагируются водой и затем участвуют в реакции.

Другие химические соединения (растворы) также могут приводить к коррозии. К ним относятся растворы солей, растворы органических соединений, фосфаты и ацетаты щелочей. Особо опасна плавиковая кислота, поскольку она может растворять силикатную основу, образуя растворимый фтористый кремний.

В соответствии с вышеизложенным, была сформулирована трехстадийная модель коррозии стекол в статических условиях. На первой стадии доминирует процесс взаимной диффузии, приводящий к выходу в раствор или воду модификаторов силикатной сети, в первую очередь, щелочных металлов. Это приводит к росту pH, после чего доминирует процесс щелочной коррозии, который

определяется уровнем pH, композицией стекла и температурой. Третья стадия определяется формированием поверхностного слоя, который образуется при осаждении и адсорбции нерастворимых продуктов на поверхности стекла. К таким веществам могут относиться гидроксиды железа и магния. После того как поверхностный слой сформирован, он начинает препятствовать выщелачиванию элементов из слоев стекла, расположенных под ним. Следует отметить, что в динамических условиях водообмена положение может быть иным.

5.4. Основные факторы, влияющие на выщелачивание стекол

Использование технологии остекловывания для иммобилизации ВАО требует знаний о структуре и технологии производства специальных стекол, включая особенности их композиции, объема иммобилизуемых отходов, условия хранения, в том числе температуру, время и pH.

Композиция играет важную роль для устойчивости иммобилизации. В принципе, по мере уменьшения отношения числа атомов кислорода к числу структурообразователей (таким, как кремний) увеличивается число мостиковых атомов кислорода, что приводит к увеличению стабильности стеклообразующего продукта. Введение модификаторов структуры (таких, как оксиды щелочных и щелочноземельных металлов) приводит, как правило, к уменьшению стабильности. При этом увеличивается отношение числа атомов кислорода к числу структурообразователей, что нарушает структуру стекла.

Поскольку ВАО содержат много различных элементов, то их введение в стекло также изменяет его параметры и влияет на его стабильность. В таблице 11 приведены тенденции влияния на стабильность различных оксидов. Использование стекол специального состава часто является результатом компромисса между целью процесса, ограничениями процесса и структурой отходов.

Увеличение удельного количества в стекле иммобилизуемых отходов не обязательно приводит к росту выщелачиваемости. Исследования, проводимые с боросиликатными стенками, показали уменьшение выщелачиваемости по мере роста ВАО от 0 до 35%(вес.) с небольшим уменьшением выщелачиваемости в диапазоне содержания ВАО от 35% до 50%. Таким образом, количество ВАО, иммобилизуемое в боросиликатном стекле, не ограничивает стабильность материала. Причиной положительного эффекта стабильности с ростом ВАО считается формирование поверхностных слоев, препятствующих выщелачиванию.

Следует отметить, что в динамических условиях ситуация, связанная с работой защитных слоев, может измениться.

Выщелачиваемость растет с увеличением температуры. Механизмы коррозии при этом могут быть различны. При обычных температурах ведущая роль в коррозии стекла принадлежит эффектам диффузии, однако при температурах около 100°C и выше определяющим становится растворение решетки. Значения температуры, при

которых происходит смена доминантных процессов, определяются условиями испытаний и композицией стекла.

Существует значительное количество характеристик выщелачивания на ранних стадиях. Считается, что при увеличении времени процесса скорость выщелачивания в статических и квазистатических условиях уменьшается, что определяется, с одной стороны, насыщением раствора, а с другой – формированием защитных поверхностных слоев из нерастворимых соединений. Однако в динамических условиях положение может быть иным.

Таблица 11 – Влияние оксидов на свойства остеклованного материала

Компоненты	Влияние на процесс	Свойства продукта
SiO ₂	Значительное увеличение вязкости; Уменьшение растворимости отходов	Увеличение стабильности
B ₂ O ₃	Уменьшение вязкости; Увеличение растворимости отходов	Увеличение стабильности при небольших добавках; Уменьшение стабильности при значительных добавках
Na ₂ O	Уменьшение вязкости; Увеличение растворимости отходов	Уменьшение стабильности
Li ₂ O	Аналогично Na ₂ O, но эффект больше; Увеличивает тенденцию к кристаллизации	Уменьшает стабильность, но слабее, чем Na ₂ O
K ₂ O	Аналогично Na ₂ O; Уменьшает тенденцию к кристаллизации	Уменьшает стабильность, но сильнее, чем Na ₂ O
CaO	Сначала увеличивает, а затем уменьшает вязкость и растворимость отходов	Сначала увеличивает, а затем уменьшает стабильность
MgO	Аналогично CaO	Аналогично CaO, но более сильно уменьшает стабильность
TiO ₂	Слабо уменьшает вязкость; Увеличивает, а затем уменьшает растворимость отходов; Увеличивает тенденцию к кристаллизации	Увеличивает стабильность
ZrO ₂ La ₂ O ₃	Уменьшает растворимость отходов	Существенно увеличивает стабильность
Al ₂ O ₃	Увеличивает вязкость и тенденцию к кристаллизации	Увеличивает стабильность
Fe ₃ O ₃	Уменьшает вязкость; труднорастворим	Увеличивает стабильность
U ₃ O ₈	Уменьшает тенденцию к кристаллизации	Уменьшает стабильность
NiO	Труднорастворим; увеличивает тенденцию к кристаллизации	Уменьшает стабильность
MnO	Труднорастворим	Увеличивает стабильность
Цеолит	Медленно растворим; Образует пену	Увеличивает стабильность
Сульфаты	Антивспениватели; Увеличивают коррозию оборудования	Существуют случаи образования пены и образования вторичных растворимых фаз

В зависимости от композиции стекла в диапазоне значений pH от 3 до 9 выщелачивание может как существенно зависеть от величины pH, так и быть практически неизменным. При значениях pH выше 9 выщелачивание увеличивают два механизма: увеличение растворимости SiO_2 и растворение матрицы. При низких значениях pH для многих силикатных стекол доминирует эффект взаимной диффузии. Для этих стекол масштаб выщелачивания пропорционален $\sqrt{t}$, и влияние небольших значений pH может быть мало. Однако для боросиликатных стекол при небольших значениях pH доминирующим процессом является растворение матрицы, величина коррозии изменяется линейно со временем, и эффект кислотного действия может быть достаточно мощным. Таким образом, величина pH может быть важным параметром для места захоронения или площадки размещения отходов в контексте выбора композиции стекла для иммобилизации отходов.

5.5. Радиолитиз воды и стабильность стекла

На процесс растворения стекла в воде и выщелачивание радионуклидов может влиять процесс радиолитиза воды, приводящий к образованию азотной и угольной кислот и других активных продуктов процесса диссоциации. По ряду данных, скорость растворения стекла при наличии радиолитиза воды может возрастать от 3 до 5 раз по сравнению с аналогичными условиями в отсутствии радиолитиза.

При этом в ряде случаев присутствие продуктов радиолитиза может уменьшать скорость коррозии. Так, например, бикарбонатные подземные воды могут служить барьером для уменьшения pH (повышения кислотности) и роста скорости коррозии. Однако при больших значениях отношения поверхности стекла к его объему (S/V) бикарбонатный буфер может быть неэффективен для нейтрализации радиолитических кислот, находящихся в тонком слое вблизи контактной границы стекло/вода. При высоких значениях S/V радиолитиз может приводить к увеличению скорости коррозии от 10 до 15 раз.

Ионизирующее излучение приводит к разложению молекул воды и растворенных в ней газов на радикалы и новые молекулы. Эффективность радиации в создании радикалов и новых молекул характеризуется G -числами, которые представляют собой средние числа создаваемых радиолитических примесей (положительные G) или разложения молекул (отрицательные G) при поглощении энергии радиации в 100 эВ. В таблице 12 приведены G -числа для радиолитиза воды γ -излучением и α -частицами ($E_\alpha = 5 \text{ МэВ}$).

Таблица 12 – G -числа для радиолитиза воды

	H_2O	H^+	e^-	H	OH	H_2O_2	H_2	HO_2
γ -излучение	-4,14	2,7	2,7	0,61	2,86	0,61	0,43	0,03
α -частицы	-3,3	0,3	0,3	0,3	0,5	1,3	1,4	0,1

Гамма-излучение относительно эффективно создает концентрации e^- , H^+ , OH и H , в то время как α -излучение относительно эффективно создает молекулы H_2 и H_2O_2 . Поскольку пробег α -частиц в воде на несколько порядков меньше пробега γ -квантов, то при равном энергетическом выходе концентрация новых радикалов и молекул в условиях воздействия α -частиц будет существенно выше.

Азот и двуокись углерода, растворимые в воде, также подвержены радиолизу и рекомбинируют с продуктами диссоциации O_2 , воды и другими продуктами радиолиза, образуя азотную и угольную кислоту. Из-за низкой растворимости азота в воде $G(NO_3^-)$ мало (в диапазоне 0-0,2), в то время как аналогичное G -число для влажного воздуха или двухфазной системы воздух/вода составляет ~ 2 .

Образующийся при радиолизе воды водород инертен при низких температурах (менее $100^\circ C$), и поскольку он имеет высокую диффузионную мобильность по сравнению с другими продуктами, то может выделяться из водной среды, изменяя ее свойства.

6. Технологии создания расплава

Существует большое количество различных технологий создания расплава стекол и размещения в расплаве иммобилизуемых отходов. Все процессы делятся на две основные группы: процессы электрического нагрева и процессы термального нагрева с использованием органического топлива.

Основные технологии связаны с использованием электроэнергии. Они включают термоэлектрический процесс (JH), который используется как на специальных производствах (JHES), так и «на месте» нахождения отходов (JHIS). Примером первой технологии является создание керамических расплавов, а примером второго процесса – остекловывание «на месте». Важным видом электротехнологий является плазменный нагрев (PH), который производится в специальных плазменных печах. Развита технология СВЧ-нагрева (MWH), в которых используются СВЧ-печи (MWM). К электрическим технологиям относится также индукционный нагрев (IH) и нагрев с помощью электрической дуги (EАН).

Прямые термические технологии связаны с использованием различных видов вращаемых печей и ископаемого топлива.

6.1. Технологии использования электропечей

Одним из основных видов технологий является технология JHES, основанная на законе Джоуля, согласно которому мощность тепловыделения P определяется силой тока (I) и сопротивлением (R) среды: $P = I^2 R$ или в соответствии с законом Ома: $P = V^2 / R$, где V – напряжение. Последнее соотношение показывает, почему при относительно небольшом напряжении в среде может быть большое тепловыделение, если сопротивление среды невелико. Однако грунты с материалами для остекловывания имеют высокое сопротивление и требуют использования значительных напряжений. Стекла в твердом состоянии являются плохими проводниками электричества, однако при сильном нагреве и при переходе в жидкое состояние они становятся эффективными проводниками, и поэтому могут непосредственно нагреваться электрическим током.

Технологии остекловывания JHES в значительной степени основаны на развитой индустрии производства стекла (бутылки, окна и т.д.). В таких печах материалы отходов и компоненты композиции стекла загружают на поверхность расплава. Важным вопросом является процесс улавливания и очистки образующихся в этой технологии газообразующих отходов. Технология предполагает осуществление предварительного нагрева материала для перевода его в проводимое состояние, после чего осуществляется джоулев нагрев.

Характерный уровень используемых температур составляет 1000-1600°C, который лимитируется термостойкостью оборудования и коррозией электродов. В

процессе плавления также образуются тугоплавкие шлаки, в том числе из компонент иммобилизуемых отходов, которые необходимо удалять.

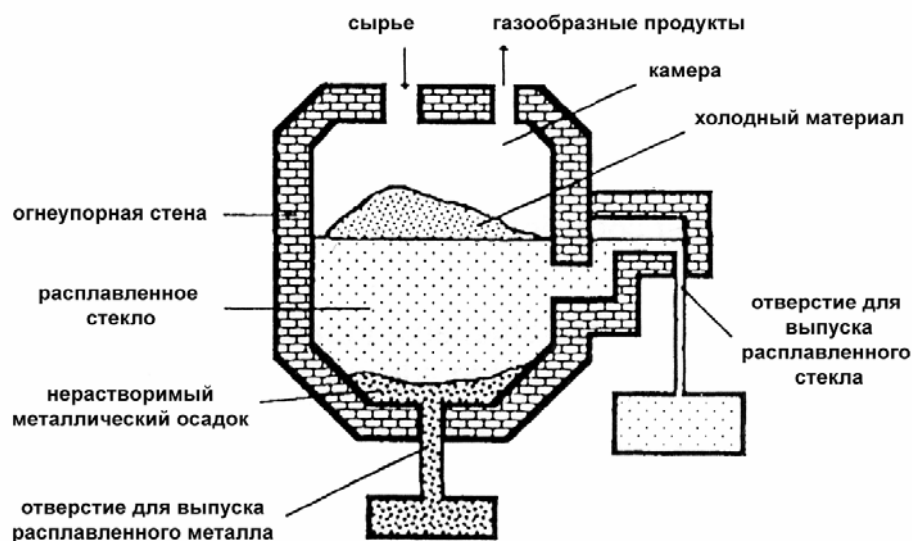


Рисунок 2. Обобщенная схема остекловывания джоулевым нагревом

Величина электрического сопротивления расплава зависит от температуры и композиции стекла. Ее значение составляет для обычных промышленных стекол от 10 до 5 Ом·см при $T = 1000-1200^{\circ}\text{C}$, в то время как для боросиликатных стекол оно равно $\sim (45-55)$ Ом·см при $T = 1300^{\circ}\text{C}$ и $\sim (35-45)$ Ом·см при $T \sim 1400^{\circ}\text{C}$.

Создание расплавов стекла в электропечах может быть связано с рядом проблем:

- вспенивание может приводить к нестабильности процесса и колебаниям давления, а полученный в таких условиях материал при хранении может подвергаться более сильной коррозии;
- возникновение зон высокого давления может приводить к неконтролируемому выходу расплава из печи;
- высокая электропроводность расплава может определять величину электрического тока, требуемую для нагрева, превышающую допустимый уровень, определяемый электродами;
- низкая электропроводность расплава может требовать высокого напряжения, создавая проблемы для огнеупорных материалов печи и требуя высокой электрической мощности;
- высокая вязкость может создавать проблемы для однородного перемешивания отходов и стекла;
- низкая вязкость может приводить к увеличению коррозии продукта.

Жидкие ВАО перед остекловыванием отверждают с помощью процессов предварительной кальцинации. Однако существует технология и прямого остекловывания жидких ВАО без стадии кальцинации.

Отметим, что в России действует технология остекловывания ВАО в электропечах после их предварительной кальцинации.

6.2. Технологии производства расплава «на месте»

Технология производства расплава «на месте» и иммобилизации в нем РАО была разработана Тихоокеанской северо-западной национальной лабораторией (PNNL). Этот процесс получил значительное развитие и был продемонстрирован в масштабных по объему испытаниях. Иммобилизованные отходы включали РАО, химические и смешанные отходы. Остекловывание «на месте» конвертирует загрязненный грунт и другие субстраты в стабильное стекло и кристаллические продукты. Для работы выбирается квадратная площадка, в которую внедряется система из четырех графитовых электродов. Специальная система позволяет электродам опускаться по мере увеличения объема расплава. Процесс продолжается до тех пор, пока не достигнуты требуемые глубина погружения электродов и величина массы расплавленного грунта.

Поскольку электропроводность грунта очень низка, то проводится предварительная подготовка поверхностного слоя, и в грунте между каждой парой электродов размещают хлопья графита и осколки стекла. Электрическое напряжение должно быть достаточным для того, чтобы в таком «подготовленном» слое грунта пошел электрический ток. Мощность тепловыделения в грунте позволяет нагревать его до 2000°C, в то время как температура его плавления обычно составляет 1100-1400°C. По мере роста объема расплава он включает в себя находящиеся в грунте или погруженные в него РАО и нелетучие ядовитые вещества, такие как тяжелые металлы; при этом производится также разложение органических отходов (пиролиз). Продукты пиролиза мигрируют на поверхность «бассейна» расплава, где они окисляются в присутствии кислорода.

На начальной стадии ISV процесс требует достаточно высокого напряжения, чтобы преодолеть сопротивление грунта (~4 кВ). На этой стадии сила тока относительно невелика (~400 А). По мере образования расплава и уменьшения сопротивления напряжение уменьшается (до ~400 В на конечной стадии процесса), а сила тока возрастает (до ~4 кА на конечной стадии процесса). Процесс продолжается до тех пор, пока потери тепла из расплава не сравнятся с тепловыделением или пока электроды не отключат. Нормальная производительность крупномасштабного процесса ISV составляет ~ (3-5) т/час. Максимальная глубина бассейна расплава в экспериментах составляла (5-5,8) м. Средняя продолжительность процесса составляла (150-200) часов в зависимости от глубины расплава и размера электродов.

В PNNL развиты методы численного моделирования процессов ISV, позволяющие инженерам и исследователям рассматривать применимость технологии для различных площадок. Методика, адаптированная для ПЭВМ, рассчитывает время остекловывания, глубину и ширину зоны расплава, электрические характеристики. Расчеты основаны на данных о конфигурации электродов, параметрах грунта и характеристиках стекловидного расплава. Предложенная модель используется для оперативного планирования, оценок стоимости и определения мест создания расплава.

К наиболее громоздким элементам системы ISV относятся устройства, связанные со сбором и обработкой газов, выделяющихся в процессе плавления, в частности, крышка, закрывающая бассейн расплава, с системой каналов для вывода газообразных продуктов.

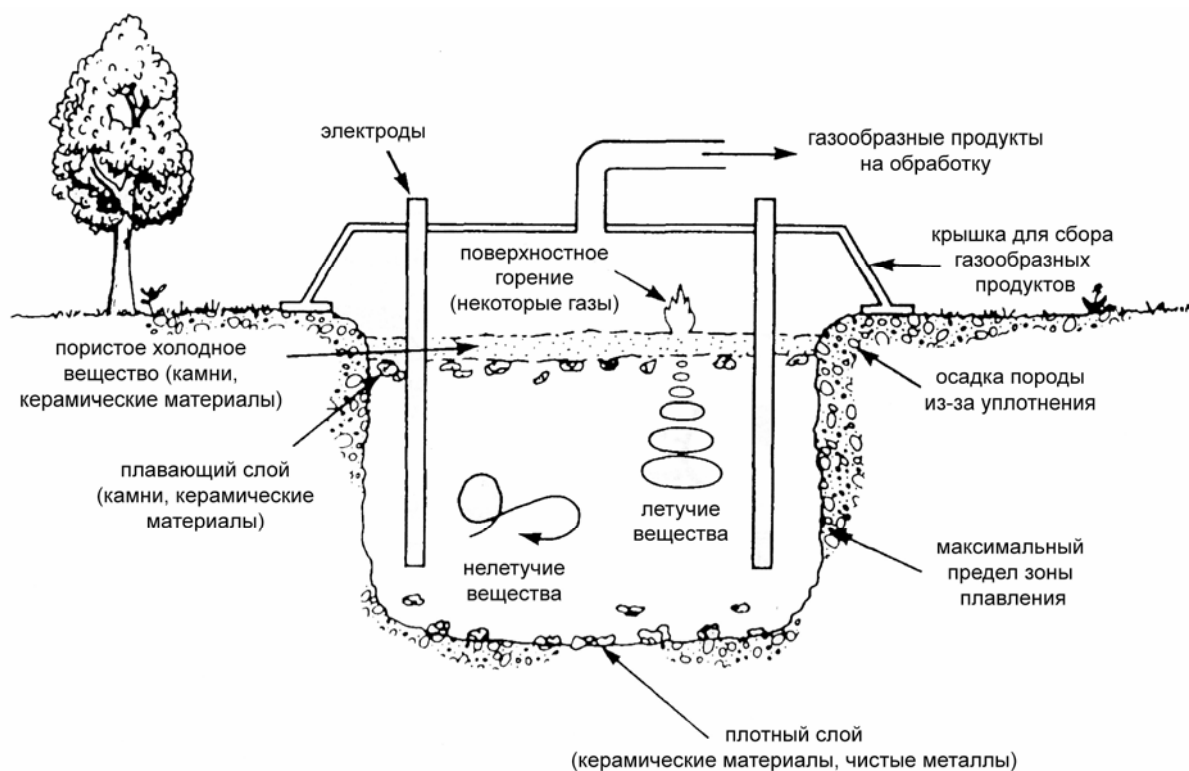


Рисунок 3. Схема процесса остекловывания «на месте»

6.3. Использование плазменной «дуги»

Плазменный нагрев для создания расплава использует энергию электрического разряда. При этом для обеспечения равномерного перемешивания расплава и отходов используется технология центрифугирования.

Установка представляет собой цилиндрическую емкость из двух половин: верхней, неподвижной, в которую вмонтирована плазменная «пушка», и нижней, вращающейся, в которой находятся расплав и отходы, и которая подвергается нагреву импульсами плазмы (система РАСТ). Эта система была впервые продемонстрирована в 1985 году и с тех пор получила определенное распространение как для лабораторных работ, так и для промышленного использования. Объектом остекловывания системы РАСТ являются НАО, а также всевозможные химические отходы, в том числе тяжелые металлы. Система удовлетворяет необходимым требованиям Агентства по охране окружающей среды США.

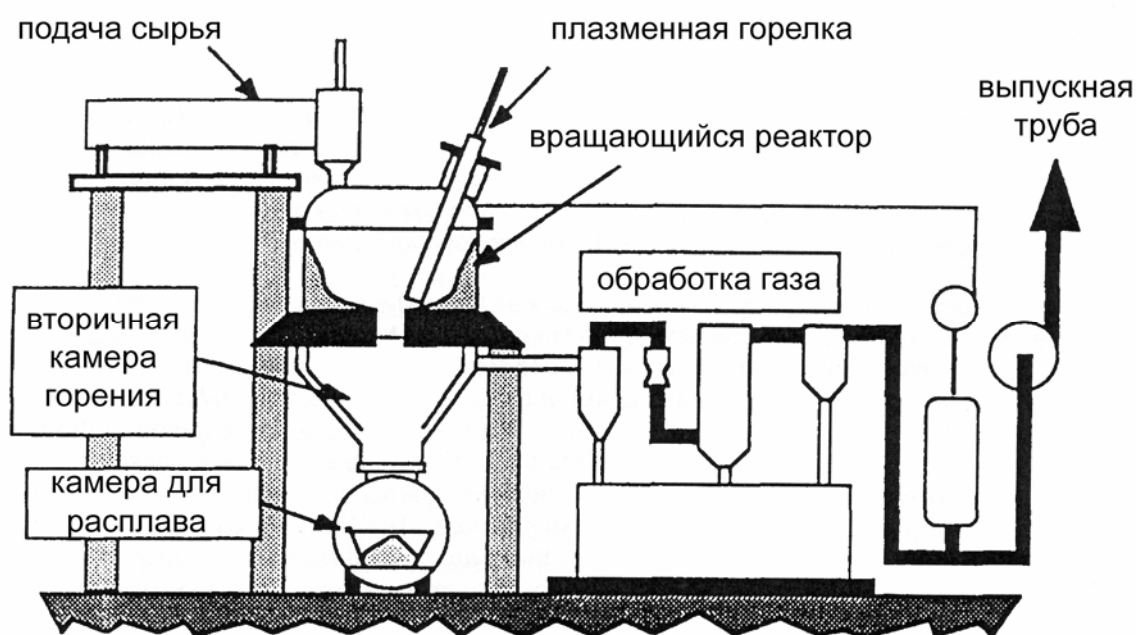


Рисунок 4. Схема промышленной плазменно-центрифужной установки для остекловывания

Иммобилизуемые отходы подаются во вращающуюся часть емкости (скорость $\sim 10-40$ оборотов в минуту) и расплавляются плазменной дугой, формируя стеклообразный расплав металлов и оксидов. Температура $\sim 6000^{\circ}\text{C}$, создаваемая плазменной дугой, и центрифужное действие позволяют работать с широким спектром отходов с различными температурами плавления. Уменьшение объема отходов при использовании системы РАСТ составляет от 7:1 для металлических отходов до 270:1 для первичных органических отходов. Центрифужное действие РАСТ повышает стабильность производимого материала. В качестве механизма воздействия используется «передаваемая» дуга, в которой одним из электродов является сам рабочий материал. Небольшое количество газа инжектируется внутрь полости плазменной «пушки», разогревается электрическим разрядом и направляется

через сопло на плавящийся материал. РАСТ использует как твердые, так и жидкие отходы.

Характерные уровни производительности установки РАСТ-8 (1999 год) составляют для жидких отходов $\sim 0,45$ т/час при электрической мощности ~ 750 кВт, для твердых отходов ~ 1 т/час при электрической мощности $\sim 1,2$ МВт. Количество импульсов плазмы составляет $\sim 15-50$ 1/мин. Номинальный внутренний диаметр центрифуги установки РАСТ-8 составляет $\sim 2,4$ м.

6.4. Индукционный нагрев

Технология индукционного нагрева для иммобилизации ВАО в стекле была разработана на предприятии AVM во Франции. Эта технология используется также при промышленном производстве стекла.

Индукционный нагрев создается электрическим током, индуцированным в материале, который он должен нагревать. В этих целях может использоваться соленоид для создания переменного магнитного поля внутри «катушки» и вокруг нее. Если в этом переменном магнитном поле помещается электропроводное тело, то изменение магнитного поля создает в этом теле ток ЭДС, что приводит к выделению в теле джоулева тепла. Системы индукционного нагрева используют различные конфигурации индукторов.

Перед процессом индукционного нагрева проводится предварительная стадия подготовки материала в виде процесса кальцинации. На этой стадии обеспечивается обезвоживание сырья, производится перевод гидроксидов в оксиды. После кальцинации смесь отходов и стеклоформирующих материалов поступает в печь индукционного нагрева, где и проводится вторая стадия процесса – остекловывание отходов.

Такая система начала действовать на предприятии AVM в 1978 году, и до 1988 года с ее помощью было остекловано 1225 м^3 концентрированных ВАО. Результатом работы стало производство 540 тонн стеклообразного материала, размещенного в 1547 металлических контейнерах.

В последние годы в качестве перспективной стала отрабатываться технология индукционного плавления с «холодным» тиглем (ИПХТ). При этом применяемой промышленной технологией является использование керамических плавителей-электропечей «прямого нагрева». Особенностью схемы ИПХТ является индукционная система подачи энергии через зазоры трубчатой водоохлаждаемой стенки тигля плавителя с застывшим пристенным слоем расплава. К достоинствам этой технологии относят получение в плавителе более высоких температур и возможность создания при этом более устойчивых стеклообразующих (минералоподобных) материалов. Предполагается, что освоение этой технологии позволит утилизировать ферроцианидные, гидрооксидные и сульфидные шлаки,

оставшиеся от первых этапов развития атомной промышленности, когда использовалась технология осаждения.

6.5. Нагрев СВЧ-излучением

Для остекловывания опасных отходов было предложено (по-видимому, в Японии) использовать СВЧ-излучение в диапазоне частот от 3 до 30 ГГц. Система включает в себя СВЧ-генератор, волновод, аппликатор, системы мониторинга, управления и безопасности. С помощью волновода СВЧ-излучение подается непосредственно к конвертируемому в стекло материалу, режим воздействия на который определяется типом аппликатора. К достоинствам СВЧ-нагрева можно отнести то, что тепловыделение производится непосредственно и исключительно в массе материала, который должен быть нагрет, а также высокую плотность энергии. К недостаткам технологии можно отнести высокие энергетические затраты и стоимость.

6.6. Другие технологии

Некоторые виды технологий использовались для остекловывания, но не очень эффективно. Применительно к остекловыванию ВАО в Великобритании и во Франции разрабатывалась технология использования в этих целях «печей сопротивления», в которых джоулево тепло выделялось при прохождении электрического тока через специальное сопротивление. Эта технология является масштабным увеличением технологии производства стекла в тиглях. Технология оказалась неудачной из-за низкой скорости образования расплава вследствие небольшой теплопередачи, а также неудовлетворительной гомогенности продукта вследствие температурных неоднородностей.

Прямые термические процессы предполагают сжигание отходов (и специальных добавок) во вращающихся печах, например, при подаче в них метана и кислорода (воздуха). Эти технологии получили заметное развитие, но применимы в основном для химических отходов и НАО.

7. Остекловывание различных РАО. Подходы и прогнозы

7.1. РАО США и проблема остекловывания

В соответствии с классификацией РАО в США, рассмотренной в разделе 1, специалистами ORNL рассматривался вопрос о целесообразности использования технологии остекловывания для обращения с ними. Отходы урановых рудников и комбинатов по обогащению урановой руды не рассматривались в связи с низким уровнем их радиоактивности и большими объемами. Технологически все виды РАО, рассмотренные в разделе 1, могут быть остеклованы, однако важными с практической точки зрения являются такие факторы, как наличие прецедентов, текущая федеральная политика, позиция штатов. С учетом различных как технических, так и политических факторов были сделаны следующие выводы.

Остекловывание ОЯТ представляется маловероятным до тех пор, пока не будут выработаны требования к их геологическому хранилищу, и соответственно не будут сформулированы требования к остеклованному материалу.

Остекловывание ОЯТ DOE представляется вероятным для топлива с алюминиевыми конструкционными элементами и возможным для других видов топлива.

Остекловывание ВАО DOE, находящегося в «танках» различного типа, представляется высоковероятным в особенности для ВАО, подвергнутых в процессе хранения переработке.

Остекловывание капсул с радиоактивными цезием и стронцием представляется вероятным в случае возникновения проблем с коррозией контейнеров.

Остекловывание трансурановых РАО считается вероятным для небольшой части этой категории отходов.

Остекловывание НАО считается вероятным для той части отходов, которая образована при переработке ВАО, находящихся в «танках». Остекловывание других видов НАО маловероятно.

Остекловывание смешанных НАО вероятно для отдельных видов, однако объем таких отходов для переработки трудно предсказуем.

В отношении излишков оружейного плутония принято решение о его утилизации в составе МОКС-топлива. Возврат к его иммобилизации остекловыванием вместе с ВАО маловероятен.

Остекловывание материалов при рекультивации объектов DOE вероятно для высокотоксичных отходов с использованием технологии остекловывания «на месте» (ISV). Остекловывание крупногабаритных объектов или больших объемов маловероятно.

7.2. РАО в Хэнфорде и остекловывание

РАО в Хэнфорде (BAO и HAO) представляет собой широкий спектр композиций. Остекловывание этих отходов требует специальных стекол, которые обладают химической устойчивостью, технологичностью получения расплава и позволяют существенно минимизировать объем отходов.

Это предполагает исследования производства требуемых стекол на основе как традиционных (Na_2O , Al_2O_3 , ZrO_2 , Fe_2O_3), так и нетрадиционных (P_2O_5 , CeO_2 , Cr_2O_3 , NiO) композиций с их высоким содержанием, что не типично для коммерческих боросиликатных стекол. Получение минимального объема тесно связано с достижением высокой емкости расплава для иммобилизации отходов. Отмечается, что емкость стекол для иммобилизации BAO в Хэнфорде может достигать $\sim 80\%$ (масса отходов составляет 80%), в то время как емкость стекол для иммобилизации HAO может составлять не более $\sim 35\%$.

7.3. Выщелачивание остеклованных отходов и моделирование на большие периоды времени

Основные процессы, которые определяют коррозию стекла, были идентифицированы и внедрены в модели, которые используются для предсказания скоростей растворения стекла. Модели гидратации, поверхностного растворения, ионного обмена и дополнительной минерализации удовлетворительны для оценок скоростей растворения стекла в лабораторном масштабе времени. Можно надеяться, что, используя эти модели, можно получить консервативные оценки для коррозии стекол в течение длительных периодов времени. Однако совершенствование этих моделей и увеличение точности долговременных прогнозов требует дополнительных работ по ряду направлений.

Существует недостаток в ясном понимании долговременной реакции скоростей коррозии стекол, находящихся в условиях, близких к насыщению растворов, характерных для долгосрочных периодов. Существующие модели отражают это, используя параметры, которые фиксируют долгосрочные скорости растворения на основе произвольных или экспериментально определенных (для лабораторных условий) значений. В рамках такого подхода

единственная правдоподобная консервативная оценка состоит в пролонгации кратковременных (лабораторных) скоростей коррозии на длительные времена. Для типичных боросиликатных стекол такие скорости несколько превышают 1 часть из 10^5 частей за год.

Ряд экспериментов был направлен на решение этой проблемы. Однако типовые эксперименты по определению стабильности стекол слишком кратковременны, комплексны и трудны для интерпретации в терминах анализа скоростей коррозии в условиях многокомпонентных процессов. Ряд экспериментов указывает, что скорость коррозии не является простой функцией силикатного насыщения раствора. Существуют и другие факторы. Имеется небольшое количество эмпирических данных по влиянию содержания в растворе примесей металлов на растворение кремния. Известно, что такие металлы, как магний и свинец, могут повышать стабильность стекла, в то время как железо и алюминий приводят к его деградации. Чистый оксид кремния растворяется в 1 молярном растворе NaCl в 4 раза быстрее, чем в 0,01 молярном растворе. Недавние данные по образованию поверхностных слоев говорят о том, что они частично могут выполнять защитную функцию, в то время как в большинстве моделей предполагается, что они не увеличивают и не замедляют скорость коррозии. Многие подобные эффекты второго порядка должны быть выделены и вычислены, прежде чем существующий набор экспериментальных данных можно будет считать вполне понятным.

Для того чтобы осознать большой объем экспериментальных данных по скоростям коррозии стекол и делать прогнозы на долгосрочный период, необходимо проведение дополнительных экспериментов. Во-первых, в наборе тестов для упрощенных композиций стекол необходимо выделить контроль за влиянием на коррозию отдельных параметров: насыщение, pH, ионного обмена, эффекта поверхностной адсорбции растворенных элементов. Необходимо, чтобы из этих тестов можно было извлечь влияние на скорость коррозии каждого из этих процессов (параметров) в отдельности и при этом определить для них функциональную зависимость от таких факторов, как температура, композиция стекла, а в случае адсорбируемых элементов – от концентрации этих элементов в растворе. Моделирование должно учитывать всю совокупность этих процессов и их зависимости, чтобы делать предсказания в долговременном масштабе.

Экспериментальные работы и моделирование должны быть дополнены исследованиями, с тем, чтобы добиться понимания процессов коррозии стекол на молекулярном уровне. Такие работы необходимо провести для простейшей

системы из окиси кремния с использованием методов молекулярной динамики для структуры минерал/раствор. Необходимы новые экспериментальные данные и по детальной молекулярной структуре стекол. Кроме того, необходимо составление детальной базы термодинамических характеристик радионуклидов и стабильных элементов, которые входят в состав стекла.

7.4. Коррозия стекол: оставшиеся проблемы

В течение 1980-1990-х годов для изучения коррозии стекол были предприняты крупные усилия, и взаимодействие стекло/вода стало наиболее изученным примером для системы твердое тело/вода. Существенным результатом этих работ явилось осознание того, что сопротивляемость стекла коррозии не является только присущим ему внутренним свойством, но зависит от условий хранения. Основопологающим является вопрос: знаем ли мы достаточно, чтобы предсказать долговременное поведение стекол в условиях реального хранения? Ответ: нет. Точное предсказание невозможно. Любое природное гидрогеологическое месторасположение всегда представляет собой сложный невозмущенный комплекс и введение в него различных инженерных материалов (в том числе барьеров безопасности) умножает потенциал синэргических эффектов и связано с непредвиденными сценариями. Ответ может быть иным, если действовать в рамках некоторого согласованного диапазона неопределенности. Согласованный диапазон для любых систем зависит от способов оценки ситуации. В большинстве текущих оценок долговременного хранения влияние стекла, как барьера безопасности, скрывается геологическими барьерами или другими инженерными барьерами.

Особенности способов и скоростей поведения стекла в водной среде хранилища так же, как и соответствующая химия радионуклидов, управляются совокупностями термодинамических и химических факторов. Сейчас известно, вероятно, большинство твердых вторичных продуктов коррозии стекла, таких как образующиеся гели, глины, цеолиты или гидроокиси металлов. Их образование и состав так же, как геохимическая эволюция ионного состава контактирующей подземной воды, могут быть предсказаны достаточно реалистично, используя геохимические модели для солевой среды, так же как и для воды в гранитах, туфах и т.д. Геохимическая эволюция в зонах, связанная с взаимодействием с инженерными барьерами, также может быть предсказана достаточно убедительно, включая вторичные продукты взаимодействия с материалами контейнеров (например, магнетит Fe_3O_4 в случае стали). Однако для определения синэргических эффектов необходимы только прямые

эксперименты и их моделирование. Так, например, невозможно включить радиолиз в общую геохимическую модель растворения стекла в условиях вблизи захоронения.

Растворение окиси кремния играет ключевую роль в определении долгосрочной коррозии, но другие элементы, такие как алюминий, железо и т.д., также оказывают существенное влияние. «Процесс насыщения» является важнейшей характеристикой безопасности стекол, поскольку он может уменьшать скорость коррозии в будущем на несколько порядков. Сорбция оксидом кремния материалов из зоны захоронения (глины или продуктов коррозии железа) может происходить таким образом, что насыщение будет достаточно длительным процессом. Немного известно об изменении параметров, определяющих этот период. После насыщения скорость коррозии уменьшается, ограничивая процесс водной диффузии в «силикат» формированием вторичных фаз на поверхности стекол или сорбцией нерастворимых веществ из зоны захоронения. В случае водной диффузии полное растворение стекла может потребовать $\sim 10^7$ лет. С другой стороны, в ряде случаев формирование вторичных фаз может приводить к новому ускорению коррозии. Даже если в эксперименте не обнаружено ускорение коррозии за счет влияния вторичных фаз, невозможно гарантировать того, что это не произошло бы на следующий день после окончания эксперимента. Поэтому трудно экстраполировать скорость коррозии стекла в соответствии с законом $\sqrt{t}$.

Как верифицировать скорости коррозии и модели и как обеспечить уверенность в их применимости? Как уменьшить неопределенность (в частности, связанную с альтернативами в экспериментальных данных), и как определить, какие неопределенности являются ключевыми? Ответа нет, так же как исследования долговременных природных аналогов не позволяют надежно определить скорости аналогичных процессов для природных площадок.

К ключевым вопросам относится связь между характеристиками растворения стекла и мобильностью содержащихся в нем радионуклидов. В качестве консервативной оценки иногда рассматривается подобное растворение всех радионуклидов, внедренных в стеклянную матрицу. Такой подход применим для растворимых нуклидов (таких, как технеций в условиях окисления) или тех элементов (например, селен), о геохимическом поведении которых мало известно.

В большинстве случаев растворение стекла и радионуклидов не подобны, и такие процессы, как образование относительно растворимых фаз или явления

сорбции часто влияют на высвобождение радионуклидов, которые определяют долговременную активность (в частности, плутоний и америций). Это, в частности, справедливо для актиноидов (нептуний, плутоний, уран) в четырехвалентном состоянии. Высвобождение радионуклидов наблюдается, если эти элементы находятся в пента-(нептуний, плутоний), гекса-(плутоний, уран) или гепта-(технеций) валентном состоянии. Степени окисления в сильной степени зависят от типа нуклида, геологической формации хранилища, радиолиза и присутствия материалов, связанных с инженерными барьерами. В этом плане необходимы исследования, связанные с такими вопросами, как:

- существенное отсутствие знаний по радиохимии нуклидов в условиях природных типов воды (например, слабое знание термодинамики тетравалентных актиноидов и тетравалентного технеция);
- температурная зависимость химических процессов актиноидов;
- слабое знание состояния актиноидов (например, плутоний и нептуний) в процессе растворения стекла;
- конкуренция эффектов коррозии контейнерных материалов и растворения горных пород в условиях окисления при радиолизе;
- образование растворимых соединений радионуклидов во вторичных продуктах коррозии.

7.5. Остекловывание актиноидов

На объекте Саванна-Ривер-Сайт (SRS) проводится активное изучение остекловывания актиноидов, значительное количество которых было произведено во второй половине XX века в рамках оборонных и исследовательских программ. В 1990-е годы ряд этих материалов, в частности, часть «военного» плутония были квалифицированы как излишки. К другим материалам, рассматривавшимся для захоронения, относились америций и кюрий, и в рамках этой проблемы в SRS планировалось производство стекол с иммобилизованными актиноидами.

В Саванна-Ривер-Сайт располагают значительным количеством (несколько килограммов) редких изотопов америция и кюрия, которые находятся в азотнокислых растворах. Эти материалы должны быть стабилизированы для отправки в ORNL, где они были получены в рамках программы производства изотопов. В связи с этим был проведен выбор наиболее устойчивого стекла для решения этой задачи (1000X), которое может включать до 40% компонент растворов, содержащих америций и кюрий (в основном редкоземельные продукты деления и актиноиды). Стекло может быть

получено на основе установки, адаптированной из гражданской промышленности производства стекол, и в этом плане реализован пилотный проект. Аналогичные работы проводятся и для исследования остекловывания нептуния.

Национальная программа под руководством LLNL рассматривает различные способы обращения с делящимися материалами, которые более не представляют интереса для задач обороны. Саванна-Ривер-Сайт, в частности, рассматривает технологические производства, химические и физические свойства стекол, предназначенных для иммобилизации плутония, включая боросиликатные и фосфатные стекла. Получены боросиликатные стекла, содержащие ~ 10% плутония, и фосфатные стекла, содержащие 20% плутония (по массе). Эти стекла весьма устойчивы по отношению к химической коррозии.

7.6. Радиационные эффекты в остекловыванных РАО

Ключевой задачей для долговременной иммобилизации ВАО, отходов, содержащих плутоний, и излишков оружейного плутония в стеклах является развитие эффективного моделирования, основанного на научном понимании различных процессов. Радиационные эффекты, определяемые β и α -распадом нуклидов, могут в долговременном масштабе разрушать структуру стекла через воздействие α -частиц, β -частиц, ядер отдачи и γ -излучения на атомы структуры стекла. Эти воздействия разделяются на две категории: передача энергии электронам (процесс ионизации) и передача энергии ядрам (в основном в процессе ядерных столкновений). Эффекты радиационных процессов в стеклах сложны, и существенные недостатки фундаментального понимания этих процессов от атомного до макроскопического уровня ограничивают предсказуемость поведения этих структур. В частности, по этим причинам существующие данные не могут быть экстраполированы на большие дозы, различные температурные режимы или различную композицию стекла.

7.6.1. Изменение объема. Радиационные эффекты в исследуемых стеклах, содержащих ВАО, могут приводить как к расширению, так и к компактификации структуры стекла. Для большинства стекол, содержащих актиноиды, изменение объема составляет не более $\pm 1,2\%$ при дозе облучения, соответствующей $2 \cdot 10^{18}$ α -распадов/г ($1,65 \cdot 10^2$ Град). При содержании в стекле ~ 10% актиноидов такая доза набирается при α -распаде 10^{-2} от их общего количества (1 промилле). Исследования, проведенные в Японии, показали также, что процесс распухания стекол хорошо коррелирует с образованием,

размерами и концентрацией образующихся в результате радиационного воздействия пузырей. Эти процессы связаны как с процессом α -распада, так и с электронными воздействиями на структуру.

7.6.2. Взаимодействие радиации со стеклами может приводить к накоплению скрытой энергии, связанной с образованием дефектов. Исследования «актиноидных» стекол показали, что α -распад может приводить к быстрому росту накопленной энергии, которое достигает уровня насыщения ≤ 150 Дж/г (0,03 эВ/атом) при дозе $2 \cdot 10^{17}$ α -распадов/г ($1,65 \cdot 10^{10}$ рад = $1,65 \cdot 10^5$ Дж/г). Из этих данных видно, что уровень насыщения скрытой энергией существенно меньше поглощенной дозы.

7.6.3. Изменение микроструктуры. Образующиеся при радиационном облучении в структуре стекла пузыри содержат O_2 , что впервые наблюдалось в 1976 году в исследуемых стеклах с ВАО при радиационном воздействии электронов с высокими дозами. С тех пор образование пузырей, индуцированных электронами, наблюдалось в широком классе стекол, причем были обнаружены сильные зависимости этого процесса от температуры и композиции стекол. Присутствие газовой фазы в пузырях было подтверждено рядом исследований. Образование пузырей в стекле при облучении ионами и γ -излучением также отмечалось в ряде работ, однако результаты для γ -излучения были противоречивы.

7.6.4. Влияние на стабильность. Радиация влияет на скорость выхода радионуклидов из стекол, увеличивая поверхность контакта и изменение скорости коррозии стекол. Скорость растворения стекла может быть связана с влиянием дефектов, индуцированных радиацией, сепарацией фаз, изменениями в химическом взаимодействии, микроструктуре и границах решетки. Оценки, основанные на ограниченных данных, показывают, что увеличение скорости выщелачивания за счет радиационных эффектов не превышает 10 раз без учета таких процессов, как разделение фаз и образование пузырей, индуцированных радиацией. Также установлено увеличение коррозии вдоль траекторий, определяемых α -распадом, что может приводить к повышенному выходу из стекла дочерних продуктов α -распада.

7.6.5. Необходимы обстоятельные научные исследования, которые включают:

- достижение понимания радиационных эффектов (как ионизационных, так и столкновительных) в стеклах на атомном, микроскопическом и макроскопическом уровнях;

- определение относительного действия ионизационных и столкновительных процессов на создание повреждений в стеклах;
- изучение сепарации фаз и превращений в стеклах, индуцированных радиацией, в зависимости от дозовой нагрузки и температур;
- изучение образования пузырей в процессе радиолиза;
- исследование радиационного усиления процессов диффузии при наличии температурных градиентов, градиентов электрического поля и градиентов напряжений в стекле;
- необходимость создания техники для ускоренного изучения радиационных эффектов, в том числе эффектов, связанных с влиянием интенсивности дозы;
- изучение образования, миграции и выхода гелия в «актиноидных» стеклах;
- создание адекватных теоретических и математических моделей.

7.7. Работы по остекловыванию РАО в Бельгии

В 1981-1984 гг. на площадке Belgoprocess был построен завод по остекловыванию РАО «Pamela». После года испытаний с жидкими ВАО промышленные работы были начаты в октябре 1985 года, и к сентябрю 1991 года было переработано 900 м³ жидких ВАО в 500 тонн остеклованного продукта. Жидкие отходы и компоненты для производства стекла непосредственно поступали в «печь», формируя в верхней части бассейна зону, где происходил процесс выпаривания, кальцинации и плавления. Всего было остекловано $\sim 4 \cdot 10^4$ Ки α -активных материалов и $\sim 2 \cdot 10^7$ Ки β -активных материалов в 2,2 тысячах контейнеров. Удельный коэффициент преобразования жидких ВАО в стекломассу составил $\sim 1,8$ м³/т, а удельное содержание активности в стекломассе составило $\sim 3,5 \cdot 10^{-2}$ Ки/г.

После шести лет работы в конце 1991 года «керамическая печь» и три других элемента завода были демонтированы и утилизированы с помощью цементной матрицы. В 34,8 тоннах твердых отходов содержится ~ 40 Ки α -активных нуклидов и $\sim 1,1 \cdot 10^4$ Ки β -активных нуклидов.

7.8. Работы по остекловыванию во Франции

Первое пилотное промышленное производство по остекловыванию (PIVER) было создано во Франции в 1969 году. До своего закрытия в 1972 году на этом производстве было остекловано 24 м³ концентрированных растворов продуктов деления с общей активностью в $6 \cdot 10^6$ Ки, в результате чего был

получен стеклообразный продукт массой 12 т. Через 5 лет предприятие возобновило работу по остекловыванию жидких ВАО, производимых при радиохимической переработке ОЯТ реакторов на быстрых нейтронах, и произвело 10 блоков массой по 90 кг с очень высокой активностью.

В 1978 году в Маркуле было открыто производство AVM по остекловыванию растворов продуктов деления с РХК UP1. К концу 1995 года AVM остекловал 1920 м^3 жидких ВАО, содержащих 0,4 ГКи активности, произвел 860 тонн стекла, размещенных в 2,4 тысячах контейнеров.

Удельный коэффициент преобразования жидких ВАО в стекломассу составил $\sim 2,25 \text{ м}^3/\text{т}$, а удельное содержание активности в стекломассе составило $\sim 0,47 \text{ Ки/г}$.

Успешная деятельность AVM позволила начать во Франции остекловывание ВАО на коммерческой основе. Два таких производства были созданы на РХК UP2 на мысе Аг – Р7 в 1989 г. и Т7 в 1992 г. К 1995 году на Р7 было остекловано $\sim 2100 \text{ м}^3$ жидких растворов продуктов деления в ~ 2430 контейнеров, содержащих $\sim 400 \text{ кг}$ стекла каждый. На Т7 к этому времени было остекловано $\sim 970 \text{ м}^3$ жидких ВАО в 1275 контейнеров того же типа. Общий объем остеклованной активности на Р7 и Т7 составил $\sim 1,5 \text{ ГКи}$.

Удельный коэффициент преобразования жидких ВАО в стекломассу составил $\sim 2,05 \text{ м}^3/\text{т}$, а удельное содержание активности в стекломассе составило $\sim 1 \text{ Ки/г}$.

7.9. Работы по остекловыванию в Японии

Первый завод по остекловыванию жидких ВАО в боросиликатных стеклах в Токай Мура (TVF) был открыт в апреле 1992 года. Предприятие TVF успешно закончило испытания технологии и с 1995 года начало промышленное остекловывание ВАО, произведенных РХК TRP.

7.10. Работы по остекловыванию в Великобритании.

Жидкие ВАО Великобритании состоят на 99% из растворенных продуктов деления, а также включают конструкционные материалы, следы невыделенных урана и плутония и большинство трансурановых элементов. Исследования по остекловыванию ВАО в Великобритании начались в середине 1950-х годов в Харуэлле. Однако первое промышленное производство WVP было создано на ядерном комплексе «Селлафилд» только в 1991 году.

Установленный критерий определяет размещение отходов в стеклянной матрице на уровне 25%. Исследования определили в качестве основного материала для остекловывания боросиликатное стекло на основе баланса таких

факторов, как стойкость, химическая стабильность, противодействие коррозии и температура плавления. Одним из результатов исследований явилось установление того факта, что использование в композиции стекла смеси щелочных добавок (натрий и литий) дает преимущество по сравнению с использованием одной из щелочных добавок.

7.11. Работы по остекловыванию в России

Основная часть исследований была связана с остекловыванием жидких ВАО в фосфатных стеклах. Пилотный проект ЭП-100 имел производительность в 25 кг/час фосфатных стекол с составом: Na_2O – (22-26)%, Al_2O_3 – (21-25)%, P_2O_5 – (47-53)%, Fe_2O_3 до 1,5%. Было показано, что в условиях процесса остекловывания при температуре до 1100°C потери из расплава составляют до 5% для Ru-106, 0,6% для Cs-137 и (0,2-0,4)% для Sr-90.

Исследования показали, что, вероятно, является целесообразным предварительное выделение долгоживущих радионуклидов из ВАО. Остекловывание таких выделенных концентратов позволяет уменьшить объем для долговременного захоронения. Выделение стронция и цезия также упрощает вопросы обращения при геологическом захоронении и улучшает геохимическую совместимость между захораниваемыми материалами и геологическим окружением.

ЧАСТЬ II.

ТЕХНОЛОГИИ ХРАНЕНИЯ ОЯТ.

ПРОБЛЕМЫ И РЕШЕНИЯ

8. Общие особенности технологий хранения ОЯТ

Все ядерные реакторы имеют бассейны для хранения ОЯТ, непосредственно связанные с эксплуатацией ядерных реакторов. По существу, это основной технологический элемент хранения, в рамках которого обеспечивается снижение уровня активности и тепловыделения ОЯТ. Со временем приреакторные хранилища стали наполняться большим количеством ОЯТ различного возраста, приближаясь к уровню заполнения своей проектной мощности, что стало создавать угрозу для продолжения деятельности энергоблоков. При создании более современных реакторов стали предусматривать строительство вместительных бассейнов-хранилищ, которые обеспечивали бы возможность выгрузки ОЯТ и эксплуатации реакторов в течение 40 лет. Однако большинство старых действующих АЭС из-за ограниченной емкости своих приреакторных хранилищ нуждаются в развитии внереакторных хранилищ.

В этих целях используются два подхода. Первоначально при создании внереакторных хранилищ использовалась технология «мокрого» хранения, по существу представлявшая собой тиражирование приреакторных хранилищ, однако в конце XX века стали внедряться технологии «сухого» хранения. Внереакторные хранилища разделяются на две категории.

В первом случае дополнительное промежуточное хранилище создается непосредственно на реакторной площадке, однако оно существенно больше и в целом независимо от реактора и приреакторного хранилища. Такие хранилища могут представлять собой как «мокрые» хранилища с использованием одного или нескольких бассейнов, так и «сухие» хранилища, которые могут предусматривать или не предусматривать возможность транспортировки за пределы площадки. Предполагается, что такие «приреакторные» внереакторные хранилища могут действовать в течение всего времени эксплуатации АЭС, а также в течение рекультивационного периода (от 50 до 100 лет).

Во втором случае вне реакторное хранилище располагается вне территории реакторных площадок в специальном месте. Основная часть таких вне реакторных хранилищ представляет собой «бассейновые» хранилища, находящиеся на территории РХК (в частности, во Франции, Великобритании и в России). Подобные хранилища могут также создаваться на одной специально выбранной АЭС и получать ОЯТ с других АЭС. Основная часть таких хранилищ (92%) относится к хранилищам «мокрого» типа.

Технологии как «мокрого», так и «сухого» хранения должны удовлетворять целому ряду основных требований:

- совокупность топливных сборок должна поддерживаться в контролируемом состоянии и не должна вызывать нарушений в среде, окружающей хранилище;
- система охлаждения ОЯТ должна гарантировать, что не будут нарушены пределы тепловых ограничений, которые могли бы привести к деградации ОЯТ;
- подкритичность ОЯТ должна обеспечиваться как в нормальных условиях, так и в чрезвычайных обстоятельствах;
- радиологическая защита должна обеспечивать безопасность персонала, населения и окружающей среды в соответствии с действующими нормами;
- экологическая защита должна обеспечивать минимизацию выхода радионуклидов;
- должна постоянно обеспечиваться возможность обращения с ОЯТ.

По данным МАГАТЭ, к 1997 году в мире было произведено около 200 тысяч тонн ОЯТ ядерных энергетических реакторов различных типов, из которых приблизительно 130 тысяч тонн хранилось в приреакторных и вне реакторных хранилищах, а 70 тысяч тонн были подвергнуты радиохимической переработке на РХК. При этом количество ежегодно производимого ОЯТ мировой атомной энергетикой оценивается в 10,5 тысяч тонн. В соответствии с этим общий объем наработки ОЯТ к данному времени составляет около 300 тысяч тонн.

Крупнейшими переработчиками ОЯТ ядерной энергетики являются Великобритания и Франция, а основным видом переработанного ОЯТ является ОЯТ газографитовых реакторов GCR. Так, к 1995 году Великобритания переработала на РХК В205 30 тысяч тонн ОЯТ GCR, а Франция на РХК UP1 и UP2 переработала 11 тысяч тонн ОЯТ GCR. При этом Франция являлась к этому времени крупнейшим переработчиком оксидного ОЯТ легководных реакторов (~ 10 тысяч тонн).

9. Хранение ОЯТ в приреакторных бассейнах

Хотя в последние десятилетия XX века широкое развитие получило создание специализированных хранилищ ОЯТ, как «мокрых», так и «сухих», неотъемлемым способом хранения ОЯТ является его размещение в приреакторных бассейнах-хранилищах. Эта технология универсальна в том смысле, что она применяется для всех видов ОЯТ, выгруженного из ядерных энергетических реакторов. Она используется и для хранения ОЯТ во внереакторных хранилищах, так как является в этом случае первым шагом, необходимым для предварительной выдержки ОЯТ, уменьшения его радиации и активности. В то же время во многих случаях в приреакторных хранилищах ОЯТ хранится в течение длительного времени, так что они выполняют одновременно функции промежуточных хранилищ. Точная инвентаризация ОЯТ, хранящегося в приреакторных хранилищах, отсутствует, поскольку ОЯТ перемещается во внереакторные хранилища или подвергается радиохимической переработке. Вместе с тем, на АЭС всегда существует некоторый запас свободной емкости приреакторного хранилища, так как это необходимо для поддержания непрерывного технологического процесса.

Положительный опыт эксплуатации приреакторных хранилищ насчитывает несколько десятилетий. Сейчас можно утверждать, что применение оболочек из циркониевого сплава в состоянии обеспечить хранение ОЯТ в таких условиях не менее 50 лет. Мониторинг и обслуживание, использование особенностей химических процессов, происходящих в воде, предотвращают деградацию топлива в условиях такого хранения. Даже если какая-либо ТВС имеет некоторые дефекты вследствие ее облучения, она, как правило, может быть помещена в приреакторное хранилище на некоторый промежуток времени. Можно утверждать, что в ряде случаев некоторые элементы приреакторного хранилища имеют меньшее время жизни, чем допустимое время хранения в нем ОЯТ. Опыт приреакторных хранилищ явился основой для создания специализированных «мокрых» внереакторных хранилищ.

Приреакторный бассейн-хранилище находится или в одном здании с ядерным реактором, или в соседнем здании, которое соединено с реакторным зданием туннелем для транспортировки выгруженного ОЯТ. Для доставки ОЯТ в бассейн используются контейнеры, погружаемые в бассейн, где из них и производится выгрузка ОЯТ. В различных странах используется разная практика размещения ОЯТ в приреакторных бассейнах-хранилищах. Все бассейны требуют специальной чистоты воды и химического контроля для минимизации эффектов коррозии и активации воды. Этот подход важен при хранении ОЯТ в бассейне в течение длительного времени.

В таблице 13 приведены некоторые общие характеристики приреакторных хранилищ в различных странах. Подчеркнем, что это не полный список.

Таблица 13 – Общие характеристики приреакторных хранилищ (1997 г.)

Страна	Тип реактора	Число бассейнов	Емкость (т ТМ)	Количество (т ТМ)	Срок действия
США	действ. LWR	110	59000	38343	с 1957
	закрыт. LWR	8	1700	957	с 1957
Канада	CANDU	10	31407	22555	с 1971
Япония	LWR	43	14870	5120	с 1970
Франция	PWR	54	11290	5795	с 1979
Россия	ВВЭР	13	1680	780	с 1966
	РБМК	11	3560	2700	с 1975
Украина	ВВЭР	13	2410	1248	с 1980
	РБМК	3	600	380	с 1977
Великобритания	GCR	20	1500	330	с 1956
	AGR	14	230	154	с 1974
Германия	LWR	27	5087	2832	с 1968
Испания	LWR	9	3820	2000	с 1969
Республика Корея	LWR	12	5875	3072	с 1978
	PHWR				
Швеция	LWR	12	1500	730	с 1973
Аргентина	PHWR	2	1450	1200	с 1975
Болгария	ВВЭР	6	1000	387	с 1974
Литва	РБМК	2	2093	1380	с 1984
Румыния	CANDU	1	940	100	с 1996
Венгрия	ВВЭР	4	480	350	с 1982
Чехия	ВВЭР	4	480	306	с 1985
Словакия	ВВЭР	4	480	150	с 1981
Мексика	LWR	2	984	80	с 1991
Италия	LWR	3	253	253	с 1981
Швейцария	LWR	5	705	150	с 1970
ЮАР	PWR	2	670	392	с 1984
Финляндия	LWR	4	665	251	с 1978
Всего		398	154729	91995	

10. «Мокрое» хранение

«Мокрые» хранилища относятся к обоим типам хранилищ: приреакторным и внереакторным хранилищам. Они представляют собой «бассейновые» хранилища, в которых топливо размещается под водой по мере его выгрузки из реактора.

К основным технологическим операциям в «мокрое» внереакторное хранилище относятся:

- получение контейнеров, выгрузка и размещение ОЯТ;
- хранение ОЯТ под водой (бассейн);
- эксплуатационные действия (радиационный мониторинг, охлаждение и очистка воды, обращение с твердыми РАО, вентиляция, энергообеспечение).

ОЯТ поступает во внереакторное хранилище в составе транспортировочного контейнера. Оно может находиться как в отдельных ТВС, так и в составе многоэлементных систем ТВС в контейнерах. Для выгрузки контейнеров используется два вида процессов. «Мокрая» выгрузка, обычно используемая для ОЯТ LWR, производится под водой. Для «сухой» выгрузки используют специальные боксы.

Бассейн-хранилище представляет собой укрепленную бетонную структуру, обычно находящуюся выше или на уровне поверхности грунта, однако существуют и подземные бассейны. На ранних стадиях существовали открытые бассейны, но по мере накопления опыта эксплуатации и из-за необходимости контроля чистоты воды все бассейны были закрыты. Укрепленные бетонные структуры бассейна и связанных с ним зданий удовлетворяют национальным сейсмическим требованиям.

Большинство бассейнов имеют внутреннее покрытие из нержавеющей стали или эпоксидной резины. Однако опыт эксплуатации показал деградацию эпоксидной резины через несколько лет. Что касается бассейнов без покрытия, то использование специальных сортов бетона обеспечивает ничтожно малое выщелачивание и проницаемость для воды. Бассейны заполняют водой с пониженной степенью ионизации с содержанием (или без) специальных добавок в зависимости от вида топлива и методов обращения. Уровень выщелачивания в бассейне постоянно контролируется, и вода может подвергаться очистке и возврату в бассейн. Существуют способы контроля кислотности (pH), содержания бора (иногда используемого для снижения критичности), содержания агрессивных химических соединений (хлоридов, сульфатов), ускоряющих коррозию топлива. Используются методы подавления микробиологической активности.

Для изоляции топлива от основной водной среды применяются отдельные или многоэлементные чехлы или специальные контейнеры. Для снижения критичности в

случае плотного заполнения хранилища (в особенности ОЯТ LWR) используют нейтронные поглотители, в том числе в составе конструкционных материалов.

Время, в течение которого топливо может храниться в бассейне, зависит от особенностей бассейна и требований к системе обращения. Для топлива, находящегося в оболочках из циркониевых сплавов, удовлетворительным временем «мокрого» хранения, считается срок ~ 40 лет.

В таблице 14 приведена информация о «мокрых» вне реакторных хранилищах по странам мира (на 1997 год).

Таблица 14 – «Мокрые» централизованные вне реакторные хранилища ОЯТ

Страна	Число хранилищ	Объем (т ТМ)	
		емкость	количество ОЯТ
Франция	4	14500	9159
Россия	6	12960	6046
Великобритания	4	10350	7031
Швеция	1	5000	2703
Япония	3	4300	3500
Украина	1	2000	1695
Финляндия	2	1450	700
Аргентина	1	1100	766
Бельгия	1	1000	35
США	1	780	700
Болгария	1	600	356
Словакия	1	600	523
Германия	1	560	526
Индия	1	27	27
Всего	28	55227	33767

11. «Сухое» хранение

В течение последнего десятилетия XX века наблюдалось бурное развитие технологий «сухого» хранения. По различным практическим и экономическим причинам, различные способы «сухого» хранения развивались, прежде всего, с тем, чтобы удовлетворить специфическим требованиям различных видов ядерного топлива. При этом решались такие задачи, как увеличение температуры эксплуатации, создание различных газовых сред (воздух, He, CO₂).

Первоначально сам процесс «сухого» хранения рассматривался как основная задача. Камеры, ячейки железобетонного массива и нетранспортируемые контейнеры являлись основными технологическими элементами «сухого» хранения. Постепенно было осознано, что контейнеры для «капсулирования» ОЯТ могут выполнять разнообразные функции. В Германии, Бельгии и США были созданы контейнеры двойного назначения, которые могут использоваться как для хранения ОЯТ, так и для его транспортировки в хранилище или из него без перегрузки ТВС. Некоторые виды контейнеров стали создаваться одновременно как для транспортировки, так и для окончательного захоронения.

В таблице 15 приведены характеристики «сухих» хранилищ ОЯТ в различных государствах (1997 год).

Таблица 15 – Характеристики хранилищ для «сухого» хранения ОЯТ

Государство	Число хранилищ	Объем хранения (т ТМ)	
		емкость	количество
Канада действует строится	7	8567	1930
	1	14500	–
Германия действует строится	3	7768	58
	1	585	-
США действует строится	10	4700	1270
	6	2155	–
Республика Корея действует строится	1	609	609
	1	812	–
Великобритания	1	958	680
Бельгия	1	800	142
Чехия	1	600	232
Литва	1	419	–
Аргентина	1	200	64
Франция	1	180	180
Венгрия	1	162	54
Япония	1	73	73
Украина	1	50	0

Государство	Число хранилищ	Объем хранения (т ТМ)	
		емкость	количество
Всего	39	43138	5292
в т.ч. действует	30	25086	5292

11.1. V-хранилища (*Vaults, камеры*)

V-хранилища представляют собой бетонные сооружения (выше или ниже уровня грунта), содержащие систему полостей (объемов), подходящих для хранения отдельных ТВС или их групп. Радиационная защита обеспечивается особенностью структуры хранилища. Теплоотвод обеспечивается принудительной или естественной конвекцией воздуха или газа вокруг модулей с ОЯТ, после чего воздух выходит в атмосферу или отдает тепло во втором контуре охлаждения.

Типичными особенностями камер для «сухого» хранения ОЯТ является их модульная структура, позволяющая производить их расширение, разделять функции хранения и защиты, осуществлять мониторинг хранения и применять вертикальный способ загрузки ОЯТ. Топливо поступает в V-хранилище в перегрузочных контейнерах, откуда оно извлекается и подготавливается для хранения, если это необходимо. После этого оно размещается в металлической трубе (отдельная ТВС) или в цилиндре хранения (отдельный или многоэлементный контейнер), который находится в бетонной полости структуры V-хранилища. Трубы и цилиндры хранения загерметизированы и могут быть заполнены инертным газом для улучшения процесса теплопередачи и предотвращения окисления ОЯТ. Они обычно подсоединены к системе постоянного или периодического мониторинга.

11.2. Контейнеры (*Casks*)

Контейнеры, в соответствии с правилами МАГАТЭ, предназначены для транспортировки, хранения или захоронения ОЯТ. К контейнерам относятся металлические контейнеры, бетонные контейнеры и S-контейнеры. Существует большое количество разнообразных видов контейнеров для ОЯТ.

По своей сути контейнеры являются отдельными модулями. Это герметичные системы, которые во время хранения не допускают выхода радионуклидов. Контейнеры обеспечивают удержание ОЯТ и защиту от радиации с помощью физических барьеров, которые включают металлическое или бетонное тело контейнера, а также металлические слои и крышки. Типичная конфигурация контейнеров – цилиндр. Топливо размещается в «корзине» для хранения, которая может быть (или не быть) частью самого контейнера. Теплоотвод обеспечивается механизмом теплопроводности и естественным рассеиванием тепла в окружающей среде. Контейнеры могут размещаться в зданиях или находиться на открытом месте.

Хранилище, обслуживающее систему контейнеров, может включать оборудование, необходимое для обращения с контейнерами, загрузки топлива,

дезактивации, радиационной защиты и мониторинга. Хранилища контейнеров могут быть независимыми или использовать принадлежащее ядерному реактору оборудование для обращения с контейнерами, топливом и для дезактивации.

Металлические контейнеры представляют собой массивные модули, используемые для транспортировки, хранения и возможного захоронения ОЯТ. Материалом в таких контейнерах является сталь различного типа, применяется также слоеная структура из стали и свинца. Контейнер содержит внутреннюю корзину или герметичный металлический «бидон» (canister), который обеспечивает структурную прочность и подкритичность ОЯТ. Металлический контейнер обычно закрывается системой двойных крышек, которые завинчиваются и герметизируются и могут контролироваться на потерю герметичности.

Металлические контейнеры обычно поступают на площадку для хранения непосредственно из зоны загрузки топливом. Некоторые металлические контейнеры лицензируются как для хранения, так и для транспортировки за пределы площадки. ОЯТ размещается в контейнерах вертикально, а сами они также обычно находятся в вертикальной позиции.

Бетонные контейнеры представляют собой мобильные модули с одной полостью для хранения. Они используются в основном для хранения ОЯТ, и в некоторых случаях для его транспортировки. Структурная прочность и радиационная защита обеспечивается укрепленным обычным или высокоплотным бетоном.

Бетонные контейнеры могут использовать в середине для размещения ОЯТ герметичные металлические бидоны. Металлические бидоны могут использовать для охлаждения естественную конвекцию имеющегося воздуха и специальную систему двойных крышек. Металлические бидоны могут загружаться ОЯТ на специальной площадке для заправки и после передаваться для размещения в бетонные контейнеры. ОЯТ может также непосредственно загружаться в бетонные контейнеры на заправочной площадке. Некоторые металлические бидоны могут быть лицензированы для транспортировки как часть транспортных упаковок.

Бетонные контейнеры могут также использовать металлическую облицовку в полости для хранения ОЯТ и систему герметизации с единственной крышкой. Процесс теплопередачи обеспечивается теплопроводностью через структуру бетона. В этом случае, как правило, реализуются более жесткие ограничения тепловых режимов, чем в случае системы теплопередачи, основанной на конвективных потоках.

ОЯТ размещается в бетонных контейнерах вертикально, и контейнеры также хранятся в вертикальном положении.

11.3. S-системы (Silos, ячейки железобетонного массива)

Хранилища в виде ячеек железобетонного массива представляют собой монолитные или модульные системы из железобетона. Бетон обеспечивает

радиационную защиту, в то время как локализация ОЯТ обеспечивается встроенной внутренней металлической емкостью, которая герметизируется после загрузки ОЯТ или отдельным металлическим герметичным контейнером. В таком хранилище ОЯТ может храниться как в вертикальном, так и в горизонтальном положении.

Типичным примером S-системы является контейнер AECL, который загружается на площадке для хранения и содержит внутреннюю стальную облицовку. ОЯТ передается в герметичных корзинах с использованием специального защитного контейнера для передачи и загружается вертикально.

Система NUHOMS является примером горизонтальной S-системы. ОЯТ загружается вертикально в металлические контейнеры, которые хранятся горизонтально в модулях бетонного сооружения. Специальный перегрузочный контейнер используется для загрузки герметичных металлических контейнеров и их последующего размещения в горизонтальных бетонных ячейках.

12. Существующий опыт с «сухим» хранением ОЯТ

Первые попытки обращения и хранения ОЯТ в «сухих» условиях в течение коротких промежутков времени восходят к 1940-м годам. Исследование непрерывного «сухого» хранения ОЯТ началось в 1960-е годы. В конце 1970-х годов в ряде стран были запущены специальные программы развития технологий в этих целях. Одним из важных вопросов для «сухого» хранения является вопрос о допустимой температуре. Считается доказанной возможность хранения ОЯТ LWR в оболочках из циркониевых сплавов в атмосфере инертного газа при температурах около 450°C. Сухие хранилища в Германии лицензированы для температур ниже 410°C, а в США для температур ниже 380°C в атмосфере инертного газа. Сухое хранилище для ОЯТ реакторов CANDU в воздухе было лицензировано в Канаде при температурах до 160°C, а сухое хранилище для ОЯТ GCR было лицензировано в Великобритании с использованием как воздуха, так и инертного газа. Деградации топлива в сухих хранилищах не наблюдалось.

12.1. V-хранилища

Одним из основных видов сухого хранения являются камеры, которые были построены в Канаде, Франции, Венгрии, Великобритании и США. Некоторые сводные данные по ним приведены в таблице 16.

Таблица 16 – Сводные данные по V-хранилищам

Страна/производство	Тип топлива	Емкость ОЯТ (т ТМ)	Количество ОЯТ (т ТМ)	Время работы
Великобритания Wylfa	GCR	958	680	с 1971 г.
Франция CASCAD	HWR	180	180	с 1990 г.
США Fort St Vrain	HTGR	15,4	15,4	с 1991 г.
Канада Gentilly-2	CANDU	3648	20	с 1995 г.
Венгрия Paks	ВВЭР-440	162	54	с 1997 г.

12.1.1. Работы в Канаде

Хранилище на площадке реактора Gentilly-2 действует в Канаде с 1995 года. Это первое применение камер для «сухого» хранения ОЯТ реакторов CANDU, которое эволюционировало из ранее развитой технологии S-хранилищ. Переход к V-хранилищу определяется лучшим тепловым режимом, более компактной площадкой для хранения, а также экономическими и эксплуатационными преимуществами. Один

бетонный бункер такого хранилища оказался способен замещать по объему ОЯТ 22 стандартных S-контейнера, использовавшихся на площадке АЭС Pt. Lepreau.

Площадка для хранения имеет размеры 90×200 метров и расположена в непосредственной близости от бассейна с ОЯТ. Ее пространство позволяет построить 15 модулей для хранения, что достаточно для обеспечения всего срока эксплуатации АЭС. Мощность реактора Gentilly-2 составляет 680 МВт (эл), и он ежегодно производит ~ 100 тонн ОЯТ (при средней энерговыработке топлива ~ 7 ГВт·сут./тТМ и КИУМ ~ 0,9).

Первоначально топливные стержни ОЯТ, хранившиеся в бассейне, загружаются под водой в корзины для хранения. Рабочая станция размещена в специальном здании, являющемся продолжением «мокрого» реакторного хранилища. После загрузки корзины она размещается в передающем контейнере, который на рельсах доставляется в рабочую станцию. 30-тонный кран позиционирует передающий контейнер в рабочей станции, корзина выгружается, осушается и герметизируется. После этого она погружается в другой передающий контейнер, который доставляет ее к месту хранения на трейлере. 30-тонный кран поднимает передающий контейнер на крышу бетонного монолитного хранилища, называемого модулем CANSTOR, где находится платформа для разгрузки. Затем корзина опускается в цилиндрическую полость для хранения. После заполнения цилиндра 10 корзинами закрывается защитная крышка и производится герметизация верхней части цилиндра.

Модуль CANSTOR представляет бетонный монолит, содержащий 20 полостей для хранения ОЯТ. Каждая полость представляет собой цилиндр для хранения, заполненный 10 корзинами, содержащих по 60 стандартных сборок CANDU диаметром 102 мм и длиной 495 мм. Модуль снабжен лабиринтом для осуществления теплоотвода за счет естественной конвекции воздуха. Характерные размеры модуля: высота – 8,1 м, ширина – 7,5 м, длина – 21,6 м; его емкость – 228 т ТМ ОЯТ (12 тысяч топливных сборок). Материал, используемый в корзине хранения, – нержавеющая сталь, в цилиндре хранения – углеродистая сталь. Эксплуатационная температура – 150°C. Время выдержки ОЯТ в бассейне перед размещением в сухом хранилище может составлять ~ 7 лет.

12.1.2. Работы в Венгрии

В Венгрии в 1991-1992 гг. была выбрана для создания хранилища ОЯТ система MVDS, которая была разработана в США и использовалась для реактора HTGR. В Венгрии эта система была отработана для АЭС «Пакш», использующей реакторы ВВЭР-440 советского производства. АЭС «Пакш» включает в себя четыре энергоблока ВВЭР-440 и ежегодно производит ~ 55 тонн ОЯТ (при типовой энерговыработке топлива ~ 33 ГВт·сут./тТМ и КИУМ ~ 0,9). Камера для «сухого» хранения имеет модульную структуру, и к 1997 году хранилище было лицензировано для 11 модулей с 4950 ТВС. Характерное число ТВС для ВВЭР-440 составляет ~ 350,

а срок кампании ~ 3 лет. Первая фаза хранилища (3 модуля и 900 ТВС) начала реально действовать.

Модуль V-хранилища выполнен из железобетона, который покрыт структурированным стальным покрытием. Система воздушного охлаждения обеспечивается трубами, проходящими через всю структуру модуля.

Имеется отдельное здание, связанное с модулями хранилища, предназначенное для работы с передающими контейнерами. Это производство обладает необходимым оборудованием для погрузки ТВС и их сушки.

Хранилище MVDS обеспечивает вертикальное хранение облученных ТВС в бетонном модуле, основной элемент которого состоит из бетона и структурированной стальной системы цилиндров для накопления ТВС, каждый из которых имеет передвижную защитную крышку. В каждом стальном цилиндре размещается отдельная ТВС. Система управления перемещает ТВС из передающего контейнера, наполненного водой, в цилиндр для хранения через систему осушения. Механизм перемещения ТВС действует в замкнутом объеме над системой цилиндров для хранения ОЯТ. В хранилище осуществляется мониторинг, что предполагает как возможность визуального контроля ОЯТ, так и параметров среды.

12.2. Контейнерные хранилища (С-хранилища)

Сухие контейнерные хранилища ОЯТ были созданы в Бельгии, Канаде, Чешской республике, Японии, Индии и США и используют различные технологии с применением металлических и бетонных контейнеров. В таблице 17 приведены общие сведения по таким хранилищам (на 1997 год). Как правило, сухие контейнерные хранилища «привязаны» к конкретным АЭС.

Таблица 17 – Общие характеристики сухих контейнерных хранилищ (1997 г.)

Страна	Тип топлива	Емкость ОЯТ (т ТМ)	Количество ОЯТ (т ТМ)	Срок эксплуатации
США, в том числе		3631	572	
Surry	PWR	808	347	с 1986 г.
Palisades	PWR	233	102	с 1993 г.
Point Beach	PWR	447	19	с 1995 г.
Praire Island	PWR	724	60	с 1995 г.
Arkansas Nucl.	PWR	150	44	с 1996 г.
Dresden 1	BWR	70	0	пл. 1998 г.
North Anna	PWR	840	0	пл. 1998 г.
Trojan	PWR	359	0	пл. 1999 г.
Индия, Tarapur	BWR	27	27	с 1990 г.
Германия, в том числе		8353	58	
Ahaus	LWR, HTR	3960	15	с 1992 г.
Juelich	LWR, HTR	8	5	с 1993 г.
Gorleben	LWR	3800	38	с 1995 г.
Greifswald	ВВЭР	585	0	пл. 1998 г.

Япония, Fukushima	BWR	73	73	с 1995 г.
Бельгия, Doel	PWR	800	142	с 1995 г.
Канада, в том числе		6797	460	
Pickering 1	CANDU	1421	460	с 1995 г.
Pickering 2	CANDU	5376	0	пл.
Чехия, Dukovany	ВВЭР	600	232	с 1996 г.
Всего		20281	1564	

12.2.1. Работа в Бельгии

В Бельгии действует семь ядерных реакторов. Для того чтобы повысить гибкость обращения с ОЯТ, было принято решение по мере необходимости построить на площадке каждой АЭС специальное хранилище. АЭС Doel была выбрана для контейнерного хранения в специальном здании. В этих целях было разработано целое семейство металлических контейнеров TN-24, предназначенных для различных ТВС (см. раздел 15). Как правило, эти контейнеры двойного назначения, предназначенные также и для транспортировки ОЯТ.

Среди требований безопасности к промежуточному хранению ОЯТ в Бельгии была поставлена и решена задача обеспечения сохранности ОЯТ в случае аварии (падения) военного самолета. Хотя такая задача могла бы решаться созданием специального упрочненного здания хранилища, она была решена более дешевым способом – созданием ударопрочного контейнера, который выдерживает удар самолета F-16 массой 14,6 тонн на скорости 150 м/сек.

12.2.2. Работы в Чехии

В Чешской республике работы по созданию промежуточного сухого хранилища контейнерного типа были реализованы на АЭС «Дукованы», которая имеет четыре энергоблока ВВЭР-440 советского производства. В качестве основного модуля используется металлический контейнер класса CASTOR, адаптированный к ТВС ВВЭР-440 (CASTOR 440/84) (см. раздел 15). Емкость каждого контейнера включает 84 ТВС ВВЭР-440 (~ 10 т ТМ), а в целом хранилище рассчитано на размещение 60 таких контейнеров. Ежегодный объем производства ОЯТ в «Дукованы» оценивается на том же уровне, что и для АЭС «Пакш» (то есть ~ 55 т ТМ в год). Контейнеры рассчитаны на энерговыработку ОЯТ до 35 ГВт·сут./т ТМ при времени выдержки ОЯТ в бассейне не менее 5 лет. Поврежденные ТВС не поступают на хранение. Максимальная температура хранения ~ 350°C. Все основные функции безопасности обеспечиваются самими контейнерами.

Здание для промежуточного хранения в основном предназначено для оптимизации операционных процедур, а также для защиты от неблагоприятных погодных условий; кроме того, оно является и дополнительным барьером для защиты окружающей среды. Здание имеет отдельную зону для приемки контейнеров, которая частично отделена от основной зоны хранения бетонной стеной. Пол хранилища сделан из железобетона. Здание имеет единое пространство с колоннами и легкой

стальной крышей. Колонны поддерживают рельсовые пути для 130-тонного крана. Внешние стены хранилища сделаны из легкого бетона и покрыты панелями. Все перемещения контейнеров в хранилище осуществляются с помощью крана, включая перемещения из зоны приемки в зону хранения.

12.2.3. Работы в Канаде

Первая стадия контейнерного хранилища ОЯТ была создана в Канаде на АЭС Pickering. Сухое хранилище состоит из здания, которое включает в себя операционную зону и зону хранения, рассчитанную на размещение 185 специальных контейнеров (DSC), каждый из которых вмещает 10 тонн ОЯТ CANDU. Контейнеры выполнены из двойной стальной оболочки, заполненной высокоплотным железобетоном. Контейнеры загружаются ОЯТ возле бассейна и транспортируются для герметизации и дезактивации в зону подготовки для хранения. Герметизация производится автоматически, и утечка гелия не должна превышать $1 \cdot 10^{-5}$ см³/сек. Контейнеры размещаются в хранилище рядами с расстоянием в 0,63 м между рядами и 0,23 м между контейнерами в одном ряду. Такая структура обеспечивает достаточное пространство для циркуляции воздуха и охлаждения. Бетонная внешняя стена хранилища толщиной 0,2 м ограничивает уровень внешнего облучения на поверхности стен до 2,5 мкЗв/час. Уровень вентиляции обеспечивает максимальную температуру в хранилище ~ 38°C.

12.2.4. Работы в Литве

Ведется разработка сухого контейнерного хранилища для ОЯТ Игналинской АЭС в Литве (РБМК-1500). Предполагается, что сооружение хранилища будет включать ряд стадий. Первая стадия предполагала осуществление лицензирования к 1998 году и была рассчитана на мощность хранения 72 контейнеров класса CASTOR RBMK-1500, одной из версий металлического контейнера класса CASTOR. В дальнейшем предполагается осуществление перехода на использование для хранения бетонных контейнеров системы CONSTOR. Основными требованиями для сухого контейнерного хранилища в Литве являются:

- срок хранения до 50 лет;
- возможность вывоза ОЯТ с площадки в любое время;
- время жизни производственной структуры в 50 лет;
- пассивный теплоотвод;
- прочность в чрезвычайной ситуации (падение самолета, землетрясение).

Площадка для хранения окружена защитной стеной из укрепленного бетона и барьером с системой предупреждения. Контейнеры размещаются вертикально на упрочненном бетонном поле. Расстояние между центрами контейнеров составляет ~ 3 м. Система радиологического мониторинга действует вдоль периметра хранилища.

Контейнеры рассчитаны на загрузку ОЯТ со средней энерговыработкой 20 ГВт·сут./тТМ при начальном обогащении ядерного топлива 2,4% и времени выдержки его в бассейне не менее 5 лет. Емкость контейнера ~ 11 т ТМ.

12.3. S-хранилища

Хранилища в виде ячеек железобетонного массива были построены в Аргентине, Канаде и США, используя различные технологии. Основой S-хранилища является стационарная или мобильная структура, содержащая одну или несколько ячеек для хранения, которые сочетают все необходимые функции безопасности. Их типичными примерами является бетонная система AECL, созданная в Канаде, или горизонтальный модуль NUHOMS, разработанный в США. По своему типу S-хранилище занимает промежуточное положение между V-хранилищем и контейнерными хранилищами. Как правило, S-хранилище привязано к площадке конкретной АЭС. В таблице 18 приведены некоторые общие данные по S-хранилищам (1997 г.).

Таблица 18 – Общие характеристики S-хранилищ (1997 г.)

Государство	Тип топлива	Емкость ОЯТ (т ТМ)	Количество ОЯТ (т ТМ)	Срок действия
Канада, в том числе	CANDU	6514	1719	
Whiteshell Lab	CANDU	25	25	с 1977 г.
Gentilly-1	CANDU	67	67	с 1985 г.
Douglas Point	CANDU	298	298	с 1987 г.
NPD	CANDU	75	75	с 1989 г.
Point Lepreau	CANDU	1026	472	с 1991 г.
Gentilly	CANDU	3648	401	с 1995 г.
Pickering	CANDU	1375	381	с 1996 г.
США, в том числе		3213	588	
H.B.Robinson	PWR	26	26	с 1986 г.
Oconee	PWR	980	375	с 1990 г.
Calvert Cliffs	PWR	1112	154	с 1992 г.
Davis Besse	PWR	360	33	с 1995 г.
Oyster Creek	BWR	190	0	пл. 1998 г.
Rancho Seco	PWR	202	0	пл. 1998 г.
Susquehanna	BWR	343	0	пл. 1998 г.
Республика Корея, в том числе		1421	609	
Wolsong 1	CANDU	609	609	с 1992 г.
Wolsong 1-1	CANDU	812	0	пл. 1998 г.
Аргентина	CANDU	1000	-	с 1993 г.
Армения	ВВЭР-440	73,5	0	пл.
Всего		12221	2916	

12.3.1. Работы в Армении

В Армении были построены два реактора ВВЭР-440, один из которых продолжает работать. Поскольку в Армении нет условий ни для постоянного хранения, ни для радиохимической переработки ОЯТ, то долговременное хранилище ТВС является насущной потребностью. В качестве базового элемента была выбрана система NUHOMS, поставки которой осуществляет компания Framatom. Количество ТВС, хранящихся в одном модуле, составляет 56 единиц. Предполагается, что хранилище будет включать в себя 11 таких модулей (612 ТВС), которые будут сгруппированы в два блока.

12.3.2. Работы в США

В США для S-хранилища была выбрана горизонтальная модульная система NUHOMS, которая была впервые лицензирована в 1986 году для хранилища на АЭС H.B.Robinson. Базовым элементом является модуль NUHOMS-07P, который загружаются 7 ТВС. В состав модуля входит специальный внутренний контейнер DSC, играющий важную роль в технологии загрузки ОЯТ. Впоследствии в США были разработаны модули NUHOMS-24P и NUHOMS-52P, рассчитанные на загрузку 24 и 52 ТВС. Характеристики модулей приведены в разделе 6.

12.3.3. Работы в Канаде

Подходы Канады к созданию S-хранилищ можно рассмотреть на примере хранилища ОЯТ реактора Douglas Point, который был закрыт и демонтирован. Бетонные контейнеры были построены на площадке и выстроены в 4 ряда по 12 контейнеров. Каждый контейнер заполняется 9 корзинами, каждая из которых содержит 54 топливных системы ОЯТ CANDU (81,7 мм в диаметре и 495 мм длиной). Всего хранилище было заполнено 294 т ТМ ОЯТ в составе 22256 топливных систем.

Топливные системы загружались под водой в бассейне в корзины. Корзины поднимались из воды и поступали в рабочую станцию на краю бассейна. В рабочей станции корзины с ОЯТ осушались и герметизировались, образуя первичный контур безопасности. Затем топливные корзины устанавливались в передающий контейнер и доставлялись на трейлере на площадку хранилища. Специальный кран поднимал передающий контейнер для заполнения бетонного контейнера-хранилища с помощью погрузочной платформы. Корзины с ОЯТ опускались в полость бетонного контейнера. После заполнения внутренняя стальная облицовка контейнера герметизировалась крышкой, образуя второй контур безопасности. После этого устанавливалась бетонная крышка контейнера, и он ставился на эксплуатацию.

Характерные размеры бетонного контейнера 6,16 м в высоту и 2,59 м в диаметре. Толщина бетонного слоя составляет при этом 0,864 м. Корзины с ОЯТ производились из нержавеющей стали, а внутренняя облицовка бетонного контейнера выполнена из углеродистой стали. Максимальная энерговыработка ОЯТ

составляла 5,5 ГВт·сут./тТМ. Максимальная температура в ОЯТ составляет не более 150°C.

13. Контейнеры для хранения ОЯТ

13.1. Контейнеры системы CASTOR

Контейнеры системы CASTOR состоят из монолитного стального «тела» и системы крышек. Стальные стенки контейнера служат для защиты от гамма- и нейтронного излучения. Для дополнительной нейтронной защиты (если это нужно) внутри стального тела контейнера размещаются стержни из замедлителя – полиэтилена. Дно контейнера и вторичная крышка также могут включать пластины дополнительной нейтронной защиты.

Контейнер закрывается системой из двух крышек, устанавливаемых одна на другую. Крышки выполнены из нержавеющей стали и привинчиваются к телу контейнера. Первичная (внутренняя) крышка имеет толщину от 250 до 300 мм. Она проницаема для влаги, вентиляции и вакуумного осушения полости контейнера, так же как и для испытаний на герметичность. Вторая крышка имеет толщину около 100 мм и также является проницаемой. Герметичность обеспечивается специальной системой металлических прокладок и эластичных колец. Внутри полости контейнера устанавливается корзина с ТВС, которая имеет герметичную конструкцию и выполняется из нержавеющей стали с использованием борированных секций. Поверхность полости контейнера имеет никелевое покрытие для предотвращения коррозии и облегчения дезактивации. Снаружи тело контейнера защищено многослойным резиновым покрытием, а крышка и дно покрыты никелем. Полость контейнера заполнена гелием, который обеспечивает теплопередачу и служит ингибитором от коррозии.

Система CASTOR имеет много различных модификаций. В таблицах 19 и 20 приведены характеристики некоторых из них.

Таблица 19 – Характеристики контейнера CASTOR V/21

Характеристика	Значение
Тип топлива	21 ТВС PWR
Емкость (т ТМ)	9,77
Масса (т)	106
Высота (мм)	4886
Внешний диаметр (мм)	2400
Максимальное энерговыделение ОЯТ (ГВт·сут./тТМ)	35
Максимальное тепловыделение (кВт)	21

Таблица 20 – Некоторые характеристики отдельных типов контейнеров CASTOR

Тип	Тип топлива	Кол-во ТВС	Емкость (т ТМ)	Масса (т)	Высота (мм)
440/84	ВВЭР-440	84	10,6	120	4080
W-1000	ВВЭР-1000	13	5,73	100	5505
РБМК	РБМК	102	11,2	72	4395
V/52	BWR	61	9,69	121	5451
AVR	HTR-сферы	1900	0,02	26	2874

13.2. Контейнеры CONSTOR

CONSTOR – бетонно-стальной контейнер, предназначенный первоначально для транспортировки и хранения топлива РБМК. Затем он был адаптирован и для других видов ОЯТ. Контейнер состоит из двух стальных слоев (внешнего и внутреннего), пространство между которыми заполнено тяжелым бетоном. Внутри бетона стальная «арматура» выполняет функции по усилению механических свойств и улучшению теплопередачи. Дно контейнера имеет такое же устройство, как и его стенки. Границы крышки герметизированы кольцом, выполненным из стали. Крышка контейнера представляет собой многобарьерную систему. Первичная (внутренняя) крышка крепится болтами, выполняет прочностные функции и ослабляет радиацию. Герметизирующая плита и вторичная крышка привертываются к стальному кольцу после заполнения контейнера.

ОЯТ РБМК размещается в полости контейнера в корзине, содержащей 102 ТВС (половинной длины). Общая масса контейнера с такой загрузкой 96,5 т, масса топлива – 11,2 т. Допустимая энерговыработка ОЯТ – 20 ГВт·сут./тТМ, минимальное время охлаждения ОЯТ – 5 лет, общее тепловыделение – 7,65 кВт. Разработка CONSTOR RBMK была инициирована РФ.

В таблице 21 приведены характеристики контейнеров CANSTOR, адаптированных к ОЯТ PWR и BWR перспективного типа.

Таблица 21 – Характеристики контейнеров CANSTOR

Параметр	V/32 (PWR)	V/69 (BWR)
Число ТВС	32	69
Тепловыделение	до 32 кВт	до 32 кВт
Обогащение ЯТ	5% U-235	3,7%(5) U-235
Энерговыработка	60 ГВт·сут./тТМ	40(60) ГВт·сут./тТМ
Время выдержки ОЯТ	5 лет	5 лет
Масса	≤ 125 т	≤ 125 т
Высота	5039 мм	5345 мм
Диаметр	2460 мм	2460 мм
Высота полости	4322 мм	4508 мм
Диаметр полости	1760 мм	1760 мм

13.3. Модули NUHOMS

Семейство бетонных модульных систем NUHOMS предназначено для горизонтального хранения ТВС с ОЯТ PWR и BWR. Его основными компонентами являются сухой защитный бидон из нержавеющей стали (DSC) с корзиной ТВС и бетонный модуль горизонтального хранения (HSM), который предохраняет DSC и обеспечивает экранирование радиации, а также «передающий» контейнер, используемый для транспортировки DSC в HSM и обеспечивающий радиационную защиту в процессе транспортировки, а также гидравлическая система (HRS), используемая для загрузки DSC в HSM.

Бетонный модуль горизонтального хранения сделан из упрочненного бетона и обычной и нержавеющей стали. Он может представлять собой отдельный модуль или представлять группу модулей. Специальный рельсовый путь позволяет разместить DSC внутри стен модуля, а система «стопперов» предотвращает возможность горизонтального движения DSC после укладки в случае сейсмических событий. Специальная скользящая плита, состоящая из толстой стали и нейтроннопоглощающего материала, закрывает вход в HSM и постоянно закрыта после размещения DSC. Охлаждение в системе обеспечивается комбинацией теплового излучения, теплопроводности и конвекции. Воздух входит в полость через отверстие в передней стенке HSM, проходит вокруг DSC и выходит через специальные каналы на крыше HSM.

Защитный бидон из нержавеющей стали является первичной системой удержания ТВС и представляет собой стальной цилиндр (нержавеющая сталь) длиной 4,6-4,7 м, диаметром 0,9-1,7 м и толщиной 13-16 мм. Концевые пластины из нержавеющей стали и стальные крышки приварены с двух сторон DSC с обеспечением двойной герметизации. DSC вмещает 7, 24 или 52 ТВС в корзинах из нержавеющей стали. В ряде случаев корзина использует нейтронно-поглощающие слои.

Передающий контейнер используется для передачи DSC из бассейна в HSM. Он состоит из трех концентрических цилиндров с защитными материалами между ними, связывающими верхнюю и нижнюю стальные концевые пластины. Эта конструкция состоит из внутреннего лайнера из нержавеющей стали, защитного слоя свинца, оболочки из углеродистой стали, слоя нейтронной защиты и внешней оболочки из нержавеющей стали. Дно контейнера имеет съемную гидравлическую систему для перегрузки DSC из «передающего» контейнера в HSM.

Защитный бидон из нержавеющей стали размещается в «передающем» контейнере и погружается в бассейн с ОЯТ. После загрузки топлива в DSC крышка закрывается, контейнер и DSC поднимают из бассейна. После их деактивируют и сушат. DSC подвергается вакуумной сушке, заполняется гелием и герметизируется. На передающий контейнер ставится крышка и он устанавливается горизонтально на трейлер, после чего его везут на площадку хранилища и пристыковывают к HSM.

Затем система HRS «заталкивает» DSC в HSM, передающий контейнер отстыковывается, а стальная плита закрывает вход в HSM.

Таблица 22 – Элементы системы NUHOMS

Параметр/тип	07P	24P	52B
Энерговыработка ОЯТ (ГВт-сут./ГТМ)	35	40	35
Число и тип ТВС	7 PWR	24 PWR	52 BWR
Длина DSC (м)	4,6	4,7	4,7
Диаметр DSC (м)	0,9	1,7	1,7
Длина HSM (м)	5,9	6,1	6,1
Высота HSM (м)	3,7	4,6	4,6
Ширина HSM (м)	1,7	2,7	2,7
Длина «ПК» (м)	4,6	4,75	4,75
Диаметр «ПК» (м)	0,95	1,7	1,7

13.4. Контейнеры TN 24

Семейство контейнеров TN 24 разработано как для целей транспортировки, так и для целей хранения ТВС с ОЯТ реакторов различного типа. При этом время охлаждения ТВС в бассейне должно составлять от 5 до 10 лет. Контейнеры TN используются для хранения ОЯТ в США и Бельгии. Версии контейнеров были разработаны для ОЯТ реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000.

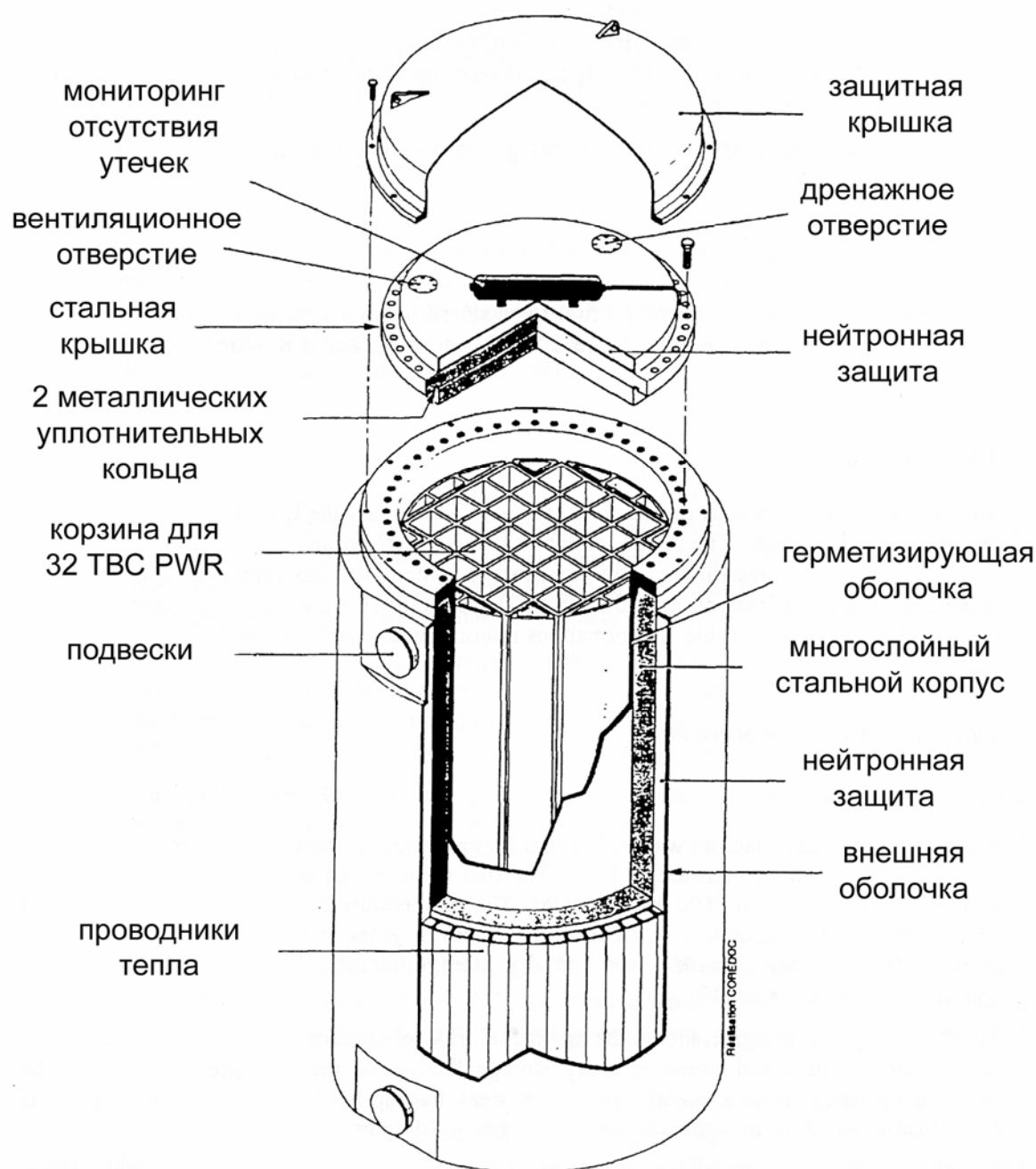


Рисунок 5. Контейнер TN-32

Три основные компоненты контейнера – толстые стенки, дно и первичная крышка – выполнены из стали. При этом первые две компоненты делаются из углеродной стали из-за ее качеств: хороших механических свойств при низких температурах (что определяется транспортными требованиями), высокой теплопроводности, хорошо отработанной технологии производства. Система защиты предполагает толщину стенок от 220 до 350 мм, что достаточно для требуемой экранировки гамма-излучения. Монолитный стальной стакан приваривается к днищу. Первичная металлическая крышка с металлическими прокладками привинчивается к

верхней части стакана контейнера, так чтобы обеспечить необходимую герметичность. Затем аналогично устанавливается вторая крышка. Все герметизирующие детали покрыты слоем из нержавеющей стали. Полость контейнера защищена от коррозии покрытием Zn-Al.

Снаружи стальных стенок установлен слой (от 80 до 180 мм) боросодержащей резины. Этот материал заключен во внешнюю стальную оболочку. Развитые медные пластины связывают стальные стенки контейнера с внешней стальной оболочкой для улучшения теплоотвода. Внешняя оболочка контейнера покрыта слоем антикоррозионной защиты. В таблице 23 приведены некоторые характеристики контейнеров TN 24.

Таблица 23 – Характеристики контейнеров TN 24

Параметр/тип	TN 24P	TN 24B	TN 24G	TN 68
Число и тип ТВС	24 PWR	52 BWR	PWR	BWR
Время охлаждения в бассейне (лет)	5	5	10	10
Энерговыработка (ГВт·сут./тТМ)	33	33	42	40
Тепловыделение (кВт)	24	24	30	25
Емкость (т ТМ)	11	10	> 15	> 12
Масса (т)	93	95	125	125

14. Некоторые экономические характеристики

Оценки экономических затрат на создание «сухого» хранилища ОЯТ были сделаны в [19], где отмечалось, что такой проект является высокоэффективным по стоимости способом обращения с ОЯТ. Капитальные затраты для создания сухого хранилища включают в себя:

- предварительные затраты (стоимость проектирования, лицензирования, оборудования, систем безопасности, пусковых испытаний и т.д.);
- затраты на хранение (стоимость контейнеров, операционные расходы, демонтаж и т.д.).

В США величина предварительных расходов для создания сухого хранилища на площадке АЭС оценивается от 9 до 12 млн. долларов в зависимости от специфических особенностей ОЯТ, предполагаемого для хранения. Стоимость закупки и загрузки контейнеров для сухого хранения, включая оплату труда, оценивается в 60-80 долларов за 1 кг ТМ. Поскольку типичная загрузка ОЯТ в контейнере составляет ~ 10 тонн, то на 1 единицу хранения (1 контейнер) приходится затраты в (0,6-0,8) млн. долларов.

Операционные расходы невелики, поскольку с загруженным контейнером в эксплуатационный период практически ничего не требуется делать. Основные операционные расходы связаны с обеспечением работы системы безопасности и мониторинга, предписываемым действующим лицензированием. Для большинства площадок хранилищ, непосредственно связанных с действующим реактором, такие расходы во многом относятся к эксплуатационным операциям самого реактора. Поэтому дополнительные операционные работы для такой площадки составляют 0,75 млн. долларов в год (независимо от количества хранящегося ОЯТ).

Для независимых площадок хранения или площадок хранения на территории закрытых реакторов эксплуатационные расходы значительно выше и оцениваются на уровне (3-4) млн. долларов в год. Для сравнения отмечается, что если после закрытия реактора ОЯТ необходимо продолжать держать в бассейне (без изменения стандартных процедур), то эксплуатационные расходы составят на это ~ 9 млн. долларов в год.

В соответствии с этим чистые затраты на создание и эксплуатацию хранилищ на площадке действующей АЭС в течение 40 лет составят ~ 110 млн. долларов (в расчете на 1000 т ТМ ОЯТ), а на площадке для закрытого реактора

~ 200 млн. долларов. В соответствии с этим чистые удельные расходы на хранение 1 кг ТМ ОЯТ в течение 80 лет составят ~ 310 долларов/кг или ~ 4 долларов/кг год.

Близкие оценки дают и данные проекта создания в Японии централизованного сухого хранилища на 5000 т ТМ ОЯТ. В этом случае в предположении 40-летней нормальной эксплуатации хранилища и при 54-летнем сроке от начала строительства до окончания демонтажа, удельная стоимость на 1 кг ТМ составляет ~ 320 долларов/кг. Аналогичная величина для «мокрого» хранилища такой же мощности составила ~ 600 долларов/кг. В таблице 24 приведены данные, характеризующие удельные расходы (на 1 кг ТМ) для «сухого» и «мокрого» хранилища в Японии.

Таблица 24 – Удельные расходы на промежуточное хранение ОЯТ в Японии (долларов/кг ТМ)

Расходы	«Сухое» хранилище	«Мокрое» хранилище
Капитальные затраты, в том числе	261	312,5
стоимость строительства	21	265,8
стоимость контейнеров	238	20
демонтаж	2	26,7
Операционные расходы	47	279,5
Транспортные расходы	12	8
Всего	320	600

Из таблицы видно, что основная статья расходов при «сухом» хранении связана со стоимостью контейнеров, достигая в расчете на 10 т ТМ ОЯТ на один контейнер величины в 2,4 млн. долларов за один контейнер. В ценах на строительство в Японии учтена процентная ставка в некоторых затратах, составляющая 5% в год.

15. Перспективная задача: долгосрочное промежуточное хранение ОЯТ

Рассмотрим ситуацию, которая складывается с ОЯТ. Существуют две возможности:

- переработка ОЯТ, возврат в рецикл части урана и плутония, отделение ВАО в виде высокоактивных продуктов деления и минорных актиноидов, их иммобилизация в стекле или керамике с последующим долговременным хранением;

Недостатки этого подхода: образование больших количеств РАО при радиохимической переработке (САО и НАО), отсутствие ясности со стабильностью долгосрочной иммобилизации ВАО в стекле и керамике, технологическая нецелесообразность радиохимической переработки ОЯТ МОКС-топлива и проблемы обращения с ним, масштабная радиохимическая деятельность, большой оборот ядерных и радиоактивных материалов; затратный характер этого подхода.

- хранение ОЯТ в промежуточных хранилищах;

Достоинства подхода – отсутствие масштабной радиохимической переработки и образования больших объемов РАО. Недостатки подхода – видимость решения проблемы.

Дело в том, что промежуточное хранение ОЯТ от $T_B = 3$ года (извлечение из реакторного бассейна) до $T_B = 50$ лет уменьшает β , γ -активность ОЯТ всего на один порядок; α -активность ОЯТ при этом вообще не уменьшается; удельное тепловыделение уменьшается всего в четыре раза. Это означает, что ОЯТ, как было чрезвычайно радиоактивным материалом до поступления на временное хранение, так и осталось таковым после него. При этом простое увеличение срока хранения до $T_B = 100$ лет также ничего кардинально не изменяет: β , γ -активность дополнительно уменьшится приблизительно в три раза, а α -активность уменьшится на 10%. В то же время гарантировать удержание активности на более длительные сроки при существующих технологиях хранения, по-видимому, проблематично из-за коррозии стали и бетона.

Существуют естественные физические критерии, определяющие сроки хранения ОЯТ, по окончании которых достигаются качественные переходы в повышении безопасности этого материала.

Наиболее опасным при обращении с ОЯТ является высокий уровень его гамма-излучения, создаваемый в процессе β -распада возбужденных дочерних ядер, и в существенно меньшей степени – тормозным излучением высокоэнергетических β -частиц. Основной вклад в этот процесс уже при $T_B > 10$ лет вносит β -распад Cs-137 (Ba-137m), а также Sr-90 (Y-90).

Для того чтобы избавиться в составе ОЯТ от высокоактивных продуктов деления со средней продолжительностью «жизни» (десятки лет), необходимо хранить ОЯТ в течение времени ~ 500 -600 лет. При $T_B = 600$ лет активность этой группы продуктов деления уменьшается до $\sim 4,2$ Ки/т ТМ и определяется в основном вкладом Sm-151 ($T_{1/2} = 90$ лет), который не является γ -излучателем. При этом активность Cs-137 уменьшается до 0,13 Ки/т ТМ (в 30000 раз меньше по сравнению с активностью при $T_B = 50$ лет).

На этом рубеже времени уровень активности, связанный с высокоактивными продуктами деления, становится меньше уровня активности, связанной с долгоживущими продуктами деления (время жизни которых составляет сотни тысяч и миллионы лет), от которых невозможно избавиться выдержкой ОЯТ ни при каких разумных сроках хранения. Однако снижение активности ОЯТ в десятки тысяч раз (при увеличении времени хранения до 600 лет) можно рассматривать как крупный шаг в обеспечении радиационной безопасности. При этом по β -активности ОЯТ из категории ВАО переходит в САО.

Однако α -активность ОЯТ при переходе от $T_B = 50$ лет к $T_B = 600$ лет уменьшается всего в $\sim 2,8$ раза (с 9300 до 3300 Ки/т ТМ), и по уровню α -активности ОЯТ все еще существенно превышает нижнюю границу ВАО. Среди α -распадчиков также существуют достаточно долгоживущие радионуклиды, например, Am-241, который вносит $\sim 75\%$ в общую α -активность ОЯТ при $T_B = 600$ лет. Поэтому следующая физическая граница безопасности связана с выдержкой ОЯТ в течение времени, когда распадутся такие радионуклиды. Такой границей является $T_B \cong 5000$ лет, при которой α -активность ОЯТ уменьшается до ~ 640 Ки/т ТМ, то есть дополнительно в пять раз.

Следующая естественная граница определяется временем, при котором уровень α -активности сравнивается с уровнем активности долгоживущих продуктов деления, то есть достигает значения ~ 20 Ки/т ТМ. Это происходит при $T_B = 100000$ лет; α -активность ОЯТ определяется в этих условиях в

основном распадом Pu-239. При несколько больших временах выдержки ОЯТ может перейти в разряд САО и по α -активности.

Из этого рассмотрения видно, что две естественные (физические) границы времени выдержки ОЯТ $T_B = 600$ лет и $T_B = 5000$ лет вполне соответствуют временам цивилизационного развития. Поэтому представляется чрезвычайно важным решить задачу обеспечения хранения ОЯТ, отвечающую этим этапам в качественном изменении активности и повышении безопасности ОЯТ. В качестве «знаковой» проблемы следует, по-видимому, ставить задачу обеспечения хранения ОЯТ в течение ~ 5000 лет.

Что касается дальнейшей судьбы ОЯТ, то в принципе оно может быть подвергнуто радиохимической переработке в условиях отсутствия жесткого γ -излучения, что кардинально улучшит ситуацию с безопасностью. Азотнокислые растворы, содержащие продукты деления, уже не будут в этих условиях высокоактивными отходами и могут подвергаться кондиционированию и захоронению (возможно, с предварительным выделением Tc-99 и йода). Выделенные актиноиды должны будут поступать на длительное хранение в высококонцентрированном виде или перерабатываться в топливо для сжигания в реакторах-сжигателях. Основная масса продуктов переработки – уран, не представляет серьезной радиологической опасности. Решение о том, когда целесообразно производить такую радиохимическую переработку (через $T_B = 600$ лет или через $T_B = 5000$ лет), зависит от конкретного процесса развития технологий в будущем и готовности общества.

Приведем для иллюстрации некоторые численные данные изменения различных характеристик активности ОЯТ при длительном хранении. Значения приведены для наиболее распространенного вида ОЯТ легководных реакторов с энерговыработкой ~ 40 ГВт·сут./тТМ.

В таблице 25 приведены общие характеристики активности ОЯТ при $T_B = 50$ и $T_B = 5000$ лет.

Таблица 25 – Характеристики активности ОЯТ при долговременном хранении (на 1 т ТМ)

T_B (лет)	C_β (Ки/т ТМ)	C_γ (Ки/т ТМ)	C_α (Ки/т ТМ)	W_Σ (кВт/т ТМ)
50	10^5	$3,6 \cdot 10^4$	$9,2 \cdot 10^3$	0,6
5000	22	2	650	0,02

При таком увеличении срока хранения уровни β , γ -излучения уменьшаются приблизительно на четыре порядка, так что из радиоактивных продуктов деления остаются только долгоживущие продукты деления.

Таблица 26 – Долгоживущие продукты деления

Изотоп	Se-79	Zr-93 Nb-93m	Tc-99	Pd-107	Sn-126 Sb-126m Sb-126	I-129	Cs-135
$T_{1/2}$ (лет)	$6,5 \cdot 10^4$	$1,53 \cdot 10^6$	$2,13 \cdot 10^5$	$6,5 \cdot 10^6$	$1 \cdot 10^5$	$1,57 \cdot 10^7$	$2,3 \cdot 10^6$
C (Ки/т ТМ)	0,41	2,3 2,2	16,4	0,13	0,63 0,63 0,09	0,04	0,48
M_C (г/т ТМ)	17,5	906	950	254	22,3	220	421
M_0 (г/т ТМ)	17,5	4433	950	1423	22,3	267	1802

В таблице 26 C – активность; M_C и M_0 – массы активных изотопов и всей совокупности изотопов данного элемента в ОЯТ.

Удельная активность этой части радионуклидов составляет 22 мКи/г, что соответствует категории САО.

Уровень α -активности при изменении времени хранения от 50 до 5000 лет уменьшается в ~ 15 раз и в конце этого срока α -активность определяется практически полностью изотопами Pu-239 и Pu-240. В таблице 27 приведены характеристики такого изменения активности трансурановых актиноидов.

Таблица 27 – Содержание трансурановых актиноидов в ОЯТ при длительном хранении

T_B	Плутоний					Америций			Кюрий		Np-237
	238	239	240	241	242	241	242m	243	244	245	
50	0,13	5,85	2,3	0,16	0,7	1,64	$0,7 \cdot 10^{-3}$	0,15	$6,5 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-3}$	0,65
5000	0	5,07	1,35	0	0,68	0	0	0,0095	0	$1,3 \cdot 10^{-3}$	2,4
50	$2,25 \cdot 10^3$	362	524	$1,65 \cdot 10^4$ (β)	2,8	$5,6 \cdot 10^3$	7	30	525	0,34	0,45
5000	0	314	308	0	2,8	0	0	19	0	0,22	1,7

В двух верхних строках таблицы приведены характеристики изменения массы изотопов (в кг), а в двух нижних строках – характеристики изменения активности (Ки). Приведенные данные иллюстрируют кардинальное уменьшение радиационной опасности ОЯТ, прежде всего, за счет уменьшения β , γ , а также α -активности.

В связи с изложенным возникает задача – создание технологии долгосрочного промежуточного хранения ОЯТ с «заявочным» сроком около 5000 лет. Путь к решению этой задачи представляется следующим.

Принцип хранения ОЯТ должен быть заимствован из технологии контейнерного хранения, то есть единицей хранения является автономный контейнер. Для обеспечения требуемой долговечности контейнер должен быть изолирован от воздействия окружающей среды внешней устойчивой оболочкой. Представляется, что в этих целях он должен быть инкапсулирован в стеклянную или керамическую минералоподобную оболочку. Таким образом, решение задачи может лежать на пути объединения достоинств технологии контейнерного хранения и технологии остекловывания.

В этом случае будут отсутствовать проблемы, связанные с выщелачиванием радионуклидов из стекла, потому что их там просто нет, а уровень внешнего радиационного (γ) воздействия на стекло будет на несколько порядков меньше, чем в стеклообразном теле иммобилизованных ВАО.

Внутренний контейнер не подвержен действию влаги и атмосферы и должен обеспечивать стабильность (отсутствие коррозии) в условиях распада радионуклидов ОЯТ и возможного выделения из него со временем летучих компонент. Эта проблема потребует специального исследования, однако ее решение должно облегчить то, что возможный ресурс летучих компонент весьма ограничен (технеций, цезий, йод и незначительные следы трития). Отметим, что даже частичное разрушение внутреннего контейнера (в аварийной ситуации) не приведет к выходу активности в окружающую среду, поскольку активность будет изолирована от нее толстым слоем стекла или керамики.

Другая проблема, которая потребует решения, – это организация абсолютной герметичности. Возможно, что для этого целесообразно использовать следующий подход. Из стекла или керамики отливается «стакан», в который целиком может входить внутренний контейнер, а также «блюдец». После этого внутренний контейнер вставляют в холодный стакан, который в опрокинутом виде ставится на «блюдец». Между «стаканом» и границей «блюдца» должна быть достаточно широкая и глубокая цилиндрическая щель, в которую заливают расплав стекла или керамики (того же типа, что и материал «стакана»). После отверждения вся система должна представлять собой единый монолит. При этом технологически необходимо обеспечить отсутствие существенного теплового воздействия заливаемого при герметизации стекла на ТВС.

Следующая проблема связана с обеспечением требуемого теплоотвода. Ее решение может потребовать заполнения пространства между внутренним контейнером и стенками «стакана» теплопередающими материалами или

обеспечения теплового контакта между крышками внутреннего контейнера и основаниями «стакана». Эта проблема также потребует исследования, и, возможно, что ее решение будет связано с определенными ограничениями на тепловыделение ОЯТ в начальный период хранения.

Важным является вопрос об экономичности. Каждый «стакан» потребует производства нескольких десятков тонн стекла или керамики. При этом его производство, а также производство «блюдца» можно будет проводить в заводских условиях. С другой стороны, «заливка» (герметизация) должна будет производиться на площадке хранения, что определяет требования к наличию соответствующих материалов и оборудования на территории хранилища. В то же время сырье для производства стекла и керамики недорого и доступно, а энергозатраты (электроэнергия) относительно невелики. При этом существенно, что оптимизация производства стекла или керамики должна идти способом, отличным от условий иммобилизации ВАО, поскольку в этом случае от стекла или керамики не требуются высокая радиационная прочность и низкая степень выщелачивания радионуклидов.

По-видимому, специальная оптимизация должна производиться и в отношении внутреннего контейнера, который должен быть механически прочным и термостойким, но не должен быть рассчитан на десятилетия хранения в открытой внешней среде.

Возможно, что существуют и другие подходящие ниши для выработки новых технологий обращения с ОЯТ, однако на данной стадии рассматриваемый подход представляется достаточно привлекательным.

ПРИЛОЖЕНИЕ 1.

ОЦЕНКИ СКОРОСТИ РАСТВОРЕНИЯ СТЕКЛООБРАЗНЫХ КОМПОЗИЦИЙ

Большинство долгоживущих радионуклидов, образованных в ядерных взрывах при подземных испытаниях, находятся в стеклообразном расплаве породы и со временем «высвобождаются» из него в процессе растворения стекла подземными водами. Скорость растворения таких стеклообразных расплавов хорошо известна для условий, когда поток воды далек от насыщения стеклом, но этого нельзя сказать об условиях, когда насыщение воды значительно. В условиях, близких к насыщению, скорость растворения уменьшается очень сильно, часто в 100 и более раз. В 1999-2001 гг. специалистами LLNL на основе методов математического моделирования было показано, что в условиях, далеких от насыщения, около 30% массы стеклообразного расплава, образованной в ядерных испытаниях, может быть растворено подземными водами через ~1000 лет. Хотя такая оценка является консервативной, она может существенно преувеличивать реальную скорость растворения линз расплава. Так, например, менее консервативные оценки этих специалистов показывают, что через 1000 лет может раствориться только ~1% массы расплава.

В связи с этой проблемой в LLNL были проведены эксперименты по определению растворения стекла в условиях, близких к насыщению. Исследования проводились для различных уровней кислотности воды (pH), степени насыщения и температуры. Для температуры использовался диапазон от 40°C до 80°C, что соответствует высокотемпературному режиму подземных вод вблизи зоны расплава. Отдельные эксперименты проводились при $T = 160^\circ\text{C}$ для того, чтобы уточнить развитие процессов при высоких температурах. В ряде работ рассматривался вопрос о воздействии тепловыделения захоронения ядерного взрыва на подземные воды. Считается, что охваченный экспериментами температурный диапазон показывает возможный разброс температурных условий для растворения стекла в условиях Невадского испытательного полигона.

Результаты экспериментов сравниваются с данными предложенной модели растворения, и на их основе параметры модели были откорректированы.

В используемой модели растворение стекла определяется соотношением:

$$Z = k_0 \cdot \exp\left[\frac{E_a}{R}\left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T}\right)\right] \cdot A_s \cdot \prod_i a_i^{n_i} \cdot \left[1 - \left(\frac{Q}{K}\right)^{1/\sigma}\right]^v + A_s K_f.$$

В этом соотношении:

Z – скорость растворения стекла (моль-стекла/г·сек);
 k_0 – скорость растворения стекла в условиях, далеких от насыщения, отнесенная к единице площади поверхности (моль-стекла/м²·сек) при температуре T_0 , °C;
 E_α – энергия активации (кал/моль), параметр который определяет изменение скорости растворения стекла, как функцию температуры воды;
 R – универсальная газовая постоянная ($R = 2$ кал/моль·град К);
 T и T_0 – исследуемая и базовая температуры (обычно $T_0 = 25^\circ\text{C}$);
 A_s – удельная поверхность массива стекла (м²/г);
 a_i – набор параметров водного раствора, характеризующих ускорение или замедление процесса растворения, где n_i определяет их степенную зависимость;
 Q – степень насыщения раствора относительно предельного уровня насыщения K_0 ;
 σ – стехиометрическое отношение, определяющее реакцию растворения (как правило, является эмпирическим параметром);
 v – эмпирический параметр, часто связываемый с моделью растворения/осаждения;
 K_f – предельная скорость растворения стекла в условиях насыщения (когда первый член соотношения для Z равен нулю) (моль-стекла/м²·сек).

Величина k_0 была определена разными исследователями для многих силикатных стекол. Используемая в работе LLNL модель опирается на данные измерений для стеклообразных составов на основе базальта, дацита и др., полученных в 1987 году Дж. Мэйзером. В качестве базового значения для нормальных условий ($T_0 = 25^\circ\text{C}$, pH = 6-7) использовалось значение $k_0 = 10^{-11}$. Было показано также, что $\lg(k_0) \sim \alpha(\text{SiO}_2)$ – концентрация SiO_2 в стеклообразном составе.

В рамках температурной зависимости скорости растворения определяющим параметром является энергия активации E_α , которая, как правило, находится в пределах от 10 до 20 ккал/моль. Выбор того или иного значения энергии активации не влияет заметно на результаты оценок вблизи базовой температуры T_0 , но имеет важное значение для экстремальных оценок на существенно отличные значения температурного диапазона. Так, например, при переходе от базовой температуры $T_0 = 25^\circ\text{C}$ к $T = 50^\circ\text{C}$ относительная скорость растворения возрастает в $\sim 3,7$ раза при $E_\alpha = 10$ ккал/моль и в 13,6 раза при $E_\alpha = 20$ Ккал/моль. Однако одним из важных результатов проведенной экспериментальной работы явилось то, что уровень энергии активации E_α был переоценен и его реальное значение находится в диапазоне (12-15) ккал/моль.

Количество растворимой массы стекла пропорционально площади его поверхности. Для типичных условий ядерных взрывов на Невадском испытательном полигоне было оценено, что величина A_s находится в пределах $(10^{-3}-10^{-2})$ м²/г, что соответствует его весьма «рыхлой» структуре. Часто для скорости растворения стекла использует также величину $\bar{Z} = Z / A_s$ (моль-стекла/м²·сек).

Параметры a_i могут включать в себя различный набор компонент. Однако основными характеристиками, влияющими на растворение стекла в воде, являются ее кислотные или щелочные свойства, то есть содержание ионов H^+ и OH^- . Так, увеличению скорости растворения на один порядок при номинальной температуре $T_0 = 25^\circ C$ соответствует увеличение pH до $\sim 10,5$ (щелочная среда) или уменьшение pH до $\sim 2,5$ (кислотная среда). Следует отметить, что с ростом температуры влияние отклонений pH от нейтральных условий на скорость растворения увеличивается.

Среди других параметров влияния на скорость растворения стекол отмечается роль их композиции, то есть содержание в стекле тех или иных элементов. Так, например, уменьшение скорости растворения связывается с наличием в стекле окислов алюминия.

Характеристики влияния насыщения водного раствора стекол определяются целым набором эмпирических параметров. Величины параметров σ и ν зависят от конкретных видов стекол. В 1994 году величина σ была определена в эксперименте по растворению стекол на уровне ~ 10 , а величина $\nu \sim 3$. В этих предположениях, например, при $Q/K \cong 0,3$ скорость растворения стекла уменьшается по сравнению с начальным состоянием на ~ 3 порядка.

Параметр K_f определяет растворение стекла в условиях, когда достигнуто химическое насыщение раствора, что говорит о том, что в рамках данной модели стекло в условиях водной среды в принципе нестабильно. Однако, поскольку в проведенных экспериментах химическое насыщение не было достигнуто, то величина K_f осталась неопределенной.

Таким образом, в номинальных предположениях скорость растворения стекла магматогенного происхождения составляет:

$$k_0 = 10^{-11} \text{ моль-стекла/м}^2 \cdot \text{сек} = 6,4 \cdot 10^{-10} \text{ г/м}^2 \cdot \text{сек} = 5,5 \cdot 10^{-9} \text{ г/см}^2 \cdot \text{сут.},$$

что примерно в 20 раз меньше характерных величин, принятых для силикатных стекол. Скорость растворения линзы расплава в отсутствии насыщения при нормальных условиях составляет:

$$Z = k_0 \cdot A_s = (10^{-3} - 10^{-2}) \text{ м}^2/\text{г} \cdot k_0 = (10 - 100) \text{ см}^2/\text{г} \cdot k_0 = 1,65 \cdot 10^{-7} \text{ г/г} \cdot \text{сут.},$$

и при $t = 10^3$ лет $Z \cdot t = 0,06 \text{ г/г}$.

Для ординарных стекол $k_0 \cong 10^{-7} \text{ г/см}^2 \cdot \text{сут}$. Для тонкого цилиндра радиуса R , высоты h и толщины стенок Δ величина $A_s = 1/\rho\Delta$. Полагая $\rho = 2 \text{ г/см}^3$ и $\Delta = 1 \text{ см}$, получим $A_s = 0,5 \text{ см}^2/\text{г}$ и $Z = k_0 \cdot S = 0,5 \cdot 10^{-7} \text{ г/г} \cdot \text{сут}$. При $t = 10^3$ лет $Z \cdot t = 1,8 \cdot 10^{-2} \text{ г/г}$, то есть $\sim 1\%$ толщин стекол цилиндра.

ПРИЛОЖЕНИЕ 2. ХАРАКТЕРИСТИКИ ИЗМЕНЕНИЯ АКТИВНОСТИ ОЯТ ПРИ РАЗЛИЧНЫХ СРОКАХ ЕГО ХРАНЕНИЯ

П2.1. Общие характеристики изменения активности ОЯТ

Продукты деления определяют β и γ -активность ОЯТ и существенную часть его тепловыделения, в то время как актиноиды определяют α -активность, нейтронное излучение и также значительную часть тепловыделения.

В таблице 1 приведены основные характеристики активности ОЯТ РWR (ВВЭР-1000) для типовых условий энерговыработки в 40,5 ГВт·сут./тТМ для времени выдержки ОЯТ в диапазоне 3-70 лет для 1 тТМ. Мы выбрали этот диапазон исходя из того, что при $T_B > 3$ лет ОЯТ начинают выгружать из приреакторных бассейнов для осуществления различных видов обращения с ним, а $T_B \sim 50$ лет представляет собой характерный срок промежуточного хранения ОЯТ в рамках различных используемых технологий.

Таблица П1 – Общие характеристики изменения активности ОЯТ

Параметр	$T_B = 3$ года	$T_B = 10$ лет	$T_B = 30$ лет	$T_B = 50$ лет	$T_B = 70$ лет
β -активность (Ки/тТМ)	10^6	$0,39 \cdot 10^6$	$0,2 \cdot 10^6$	$0,1 \cdot 10^6$	$0,6 \cdot 10^5$
γ -активность (Ки/тТМ)	$0,36 \cdot 10^6$	$0,125 \cdot 10^6$	$0,063 \cdot 10^6$	$0,036 \cdot 10^6$	$0,24 \cdot 10^5$
α -активность (Ки/тТМ)	$0,77 \cdot 10^4$	$0,9 \cdot 10^4$	$0,95 \cdot 10^4$	$0,92 \cdot 10^4$	$0,88 \cdot 10^4$
$\bar{E}_\beta$ (МэВ)	0,395	0,28	0,325		
$\bar{E}_\gamma$ (МэВ)	0,615	0,615	0,63	0,66	0,66
W_Σ (кВт)	3,87	1,37	0,9	0,6	0,47
$W_{\beta,\gamma}$ (кВт)	3,63	1,1	0,61	0,28	0,27

Уже ко времени $T_B = 30$ лет активность ПД ОЯТ определяется относительно небольшим набором радионуклидов, который можно разделить на следующие группы:

- высокоактивные радионуклиды со средним временем жизни (Sr-90, Cs-137 и дочерние продукты, а также ряд других радионуклидов);
- долгоживущие продукты деления с очень большим временем жизни (более десятков тысяч лет);
- Sm-151, занимающий промежуточное положение между двумя вышеприведенными группами;
- Kr-85, высокоактивный газообразный радионуклид.

В таблице 2 приведена динамика изменения активности высокоактивных продуктов деления, а также Sm-151 и Kr-85 в рассматриваемом диапазоне хранения ОЯТ $T_B = 10-70$ лет.

Таблица П2 – Характеристики изменения активности высокоактивных радионуклидов со средним временем жизни

Радионуклид	$T_{1/2}$ (лет)	Время выдержки ОЯТ (лет)			
		10	30	50	70
Sr-90	28,6 лет	$7,4 \cdot 10^4$	$4,55 \cdot 10^4$	$2,8 \cdot 10^4$	$1,73 \cdot 10^4$
Y-90	(64,1 час)	$7,4 \cdot 10^4$	$4,55 \cdot 10^4$	$2,8 \cdot 10^4$	$1,73 \cdot 10^4$
Cs-137	30,2 лет	$10 \cdot 10^4$	$6,32 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^4$	$2,53 \cdot 10^4$
Ba-137m	(2,55 мин)	$9,4 \cdot 10^4$	$5,94 \cdot 10^4$	$3,75 \cdot 10^4$	$2,37 \cdot 10^4$
Eu-152	13,3	3,75	1,32	0,47	0,165
Eu-154	8,8	$5,9 \cdot 10^3$	$1,22 \cdot 10^3$	$2,53 \cdot 10^2$	52
Eu-155	4,9	$2,1 \cdot 10^3$	128	7,8	0,48
Cs-134	2,06	$7 \cdot 10^3$	8,4	~ 0	0
Pm-147	2,62	$1,42 \cdot 10^4$	72	0,36	0
Sb-125	2,73	640	4	0,025	0
Te-125m	(58 сут.)	150	1	0,006	0
Cd-113m	14,1	14,1	5,3	2	0,74
Sn-121m	55	0,37	0,29	0,22	0,17
$\Sigma(\text{Sr}+\text{Cs})$		$3,42 \cdot 10^5$	$2,14 \cdot 10^5$	$1,33 \cdot 10^5$	$0,84 \cdot 10^5$
$\Sigma(\text{OCT})$		$3 \cdot 10^4$	$1,43 \cdot 10^3$	265	54
Sm-151	90	380	326	279	239
Kr-85	10,72	$8,2 \cdot 10^3$	$2,25 \cdot 10^3$	615	170

Значения активности приведены в Ки/тТМ.

$\Sigma(\text{Sr}+\text{Cs})$ включает в себя активности Sr-90 и Cs-137 и их дочерних радионуклидов Y-90 и Ba-137m.

$\Sigma(\text{OCT})$ включает в себя активности всех остальных приведенных в таблице 2 высокоактивных продуктов деления, кроме выделенных отдельно Sm-151 и Kr-85.

В таблице 3 приведены общие характеристики наработки в ОЯТ ВВЭР-1000 долгоживущих продуктов деления (ДПД).

Таблица ПЗ – Общие характеристики наработки ДПД

Радионуклид	Se-79	Zr-93 Nb-93m	Tc-99	Pd-107	Sn-126 Sb-126m1 Sb-126	I-129	Cs-135
$T_{1/2}$ (лет)	$6,5 \cdot 10^4$	$1,53 \cdot 10^6$ (16,1)	$2,1 \cdot 10^5$	$6,5 \cdot 10^6$	$1 \cdot 10^5$ (10,4 мин.) (12,4 сут.)	$1,57 \cdot 10^7$	$2,3 \cdot 10^6$
C (Ки/тТМ)	0,41	2,3 2,3	16,4	0,13	0,63 0,63 0,09	0,039	0,48

Следующей важной компонентой активности ОЯТ являются высокоактивные актиноиды, в состав которых входят изотопы плутония, америция и кюрия, а также Np-237. Характеристики их наработки приведены в таблице 4.

Таблица П4 – Изменение массы (г/тТМ) актиноидов в ОЯТ ВВЭР-1000 ($W = 40,5$ ГВт·сут/тТМ)

Изотопы	$T_{1/2}$ (лет)	Время выдержки ОЯТ (лет)				
		10	30	50	70	100
Pu-238	87,7	177	151	129	110	87
Pu-239	$2,41 \cdot 10^4$	5860				
Pu-240	$6,56 \cdot 10^3$	2300				
Pu-241	14,35	1130	430	164	62	15
Pu-242	$3,73 \cdot 10^5$	700				
Am-241	$4,32 \cdot 10^2$	760	1424	1640	1680	1630
Am-242m	$1,41 \cdot 10^2$	1,15	0,79	0,71	0,65	0,56
Am-243	$7,38 \cdot 10^3$	150				
Cm-244	18,1	30	14	6,5	3	1
Cm-245	$8,5 \cdot 10^3$	2				
Np-237	$2,14 \cdot 10^6$	570	606	656	718	805

Отметим, что рост содержания Am-241 в ОЯТ происходит за счет распада Pu-241 (β -распад), а рост содержания Np-237 в ОЯТ происходит за счет распада Am-241 (α -распад).

В таблице 5 приведены содержания в ОЯТ ВВЭР-1000 изотопов урана.

Таблица П5 – Общие характеристики содержания в ОЯТ изотопов урана

Изотоп	U-234	U-235	U-236	U-238
$T_{1/2}$ (лет)	$2,46 \cdot 10^5$	$7,04 \cdot 10^8$	$2,34 \cdot 10^7$	$4,48 \cdot 10^9$
M (кг/тТМ)	0,23	10	5	950
C (Ки/тТМ)	1,43	0,022	0,325	0,32

П2.2. Радиационные и радиологические характеристики различных классов активности ОЯТ и их изменение от времени хранения.

Наиболее долгоживущим (и слабоактивным) классами активности ОЯТ являются ДПД и изотопы урана, входящие в состав топлива. Активности этих классов радионуклидов не изменяются в цивилизационном масштабе времени. В таблице 6 приведены характеристики активности ДПД в расчете на удельную энерговыработку 1 ГВт(тепл)·сут. Для рассматриваемого ОЯТ ВВЭР-1000 количества активности на 1 тТМ (при энерговыработке ОЯТ 40,5 ГВт·сут/тТМ) в 40,5 раз больше значений, приведенных в таблице 6.

Таблица П6 – Характеристики наработки ДПД в ВВЭР-1000 в расчете на 1 ГВт(тепл)·сут.

Изотоп	$T_{1/2}$	C_0	Q	E_β	E_γ	α	P_0	C	стаб.	χ	МЗУА	УВ	d_2	d_2C
Se-79	$6,5 \cdot 10^4$	$7 \cdot 10^{-2}$	100% β 142	52	0	$4,48 \cdot 10^{-4}$	0,145	$3,75 \cdot 10^8$	Se-80 Se-82	9,2	100	48	$2,8 \cdot 10^{-8}$	10,5
Zr-93	$1,53 \cdot 10^6$	$2,51 \cdot 10^{-3}$	100% β 62	20	30	$6,35 \cdot 10^{-2}$	22,4	$2,1 \cdot 10^9$	Zr-90 Zr-91	20,4	10^3	130	$1,1 \cdot 10^{-9}$	2,3
Nb-93m	16,1	$2,38 \cdot 10^{-3}$	100% ИП	0					Zr-92 Zr-94 Zr-96					
Tc-99	$2,1 \cdot 10^5$	$1,72 \cdot 10^{-2}$	100% β 293	96	0	$6,15 \cdot 10^{-2}$	23,5	$1,5 \cdot 10^{-10}$	нет	100	10^4	220	$4,8 \cdot 10^{-9}$	72
Pd-107	$6,5 \cdot 10^6$	$5,13 \cdot 10^{-4}$	100% β 33	10	0	$1,42 \cdot 10^{-3}$	6,27	$1,2 \cdot 10^8$	Pd-104 Pd-105 Pd-106 Pd-110	16	100	3800	$2,8 \cdot 10^{-10}$	$3,4 \cdot 10^{-2}$
Sn-126	$1 \cdot 10^5$	$2,83 \cdot 10^{-2}$	100% β 250	70	1×414	$5,7 \cdot 10^{-4}$	0,55	$5,75 \cdot 10^8$	нет	100	100	30	$3 \cdot 10^{-8}$	17,2
Sb-126m1	10,5 мин	$2,83 \cdot 10^{-2}$			1×686			$5,75 \cdot 10^8$						
Sb-126	12,4 сут.	$4 \cdot 10^{-3}$			1×695			$0,8 \cdot 10^8$						
I-129	$1,57 \cdot 10^7$	$1,76 \cdot 10^{-4}$	100% β 152	36	40	$7,6 \cdot 10^{-3}$	5,43	$3,53 \cdot 10^7$	I-127	81,5	100	1,3	$1,9 \cdot 10^{-7}$	6,7
Cs-135	$2,3 \cdot 10^6$	$1,15 \cdot 10^{-3}$	100% β 205	48	0	$6,55 \cdot 10^{-2}$	10,4	$4,4 \cdot 10^8$	Cs-133	23,3	10^4	69	$2 \cdot 10^{-9}$	0,88

В таблице П6:

$T_{1/2}$ – период полураспада (лет);

C_0 – удельная активность (Ки/г);

Q – тип распада и энергия распада (кэВ);

E_β – энергия β -частиц (кэВ);

E_γ – энергия γ -квантов (кэВ);

α – кумулятивный выход при делении (для U-235);

P_0 – удельная наработка в реакторе ВВЭР-1000 (г/ГВт(тепл)·сут.);

C – удельная активность наработки в ВВЭР-1000 (Бк/ГВт(тепл)·сут.);

стаб. – стабильные изотопы, содержащиеся в ОЯТ;

χ – доля содержания в стабильных изотопах (%);

МЗУА – минимально значимая удельная активность (Бк/г);

УВ – уровень вмешательства (Бк/кг) при содержании в воде;

d_2 – дозовый коэффициент при поступлении с водой и пищей (Зв/Бк);

d_2C – удельная наработка радиологического потенциала (Зв).

Основным источником γ -квантов в ДПД является цепь распадов, связанных с Sn-126. По своему воздействию жесткие γ -кванты этой цепочки эквивалентны 2,9 γ -квантам с $E_\gamma = 0,66$ МэВ (γ -кванты Ba-137m). В соответствии с этим эффективный источник жесткого γ -излучения ДПД составляет $\sim 1,7 \cdot 10^9$ квант/сек на 1 ГВт(тепл)·сут. или $\sim 6,9 \cdot 10^{10}$ квант/сек на 1 тТМ ОЯТ (для типичной энерговыработки 40,5 ГВт·сут./тТМ).

Общая активность ДПД составляет 23,3 Ки/тТМ, причем 70% этой активности составляет активность Тс-99. Радиологический потенциал этой активности (при поступлении с водой и пищей, соответствующий угрозе рассеяния активности в окружающей среде) составляет $4,45 \cdot 10^3$ Зв/тТМ, причем 65,5% этой величины также определяет изотоп Тс-99.

Общий объем активности изотопов урана, входящих в состав ОЯТ, составляет 2,1 Ки/тТМ, причем 68% этой активности определяет изотоп U-234 (поступающий в ядерное топливо из природного урана в процессе обогащения). Радиологический потенциал этого класса радионуклидов составляет 10^4 Зв/тТМ (дозовые коэффициенты практически одинаковы для всех изотопов урана).

Таким образом, хотя активность урана ОЯТ в 11 раз меньше активности ДПД, его радиологический потенциал при этом в 2,25 раза больше радиологического потенциала ДПД. Однако особую роль ДПД часто связывают с летучестью изотопов технеция и йода.

В таблице П7 приведены аналогичные характеристики высокоактивных продуктов деления, определяющих активность ОЯТ при времени выдержки более 30 лет. Данные приведены при времени выдержки 50 лет в расчете на удельную энерговыработку 1 ГВт(тепл)·сут.

Таблица П7 – Характеристики наработки высокоактивных ПД в ВВЭР-1000 при времени хранения ОЯТ 50 лет в расчете на 1 ГВт(тепл)-сут.

Изотоп	$T_{1/2}$	C_0	Q	E_β	E_γ	P_0	C	C_γ	стаб.	χ	МЗУА	УВ	d_2	d_2C
Sr-90	28,6 лет	$1,38 \cdot 10^2$	100% β 546	196	0	5	$2,55 \cdot 10^{13}$		Sr-88	31,5	10^2	5	$8 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^6$
Y-90	64,1 час	$1,38 \cdot 10^2$	100% β 2279	931	~ 0									
Cs-137	30,2 лет	86,5	100% β 548	180	0	11,4	$3,65 \cdot 10^{13}$		Cs-133	20,4	10	11	$1,3 \cdot 10^{-8}$	$4,75 \cdot 10^5$
Ba-137m	2,55 мин.	81,8	100% γ	0	660			$3,45 \cdot 10^{13}$	Cs-135					
Sm-151	90 лет	26,2	100% β 76	20	0	0,26	$2,55 \cdot 10^{11}$		Sm-147 Sm-148 Sm-150 Sm-151 Sm-154	1,4	10^4	$1,4 \cdot 10^3$	$6,4 \cdot 10^{-10}$	$1,63 \cdot 10^2$
Eu-154	8,8 лет	$2,63 \cdot 10^2$	100% β 1967	225	1285	$2,4 \cdot 10^{-2}$	$2,3 \cdot 10^{11}$	$\sim 4,6 \cdot 10^{11}$	Eu-153	0,75	10	69	$1,2 \cdot 10^{-8}$	$2,76 \cdot 10^3$
Kr-85	10,72 лет	$3,9 \cdot 10^2$	100% β 678	251	0	$3,9 \cdot 10^{-2}$	$5,6 \cdot 10^{11}$		Kr-84 Kr-86	0,41	10^5			

Общая активность этих изотопов составляет $1,35 \cdot 10^5$ Ки/тТМ, а ее радиологический потенциал составляет 10^8 Зв/тТМ. Эти параметры в $5,8 \cdot 10^3$ раз превышают активность ДПД и в $2,25 \cdot 10^4$ раз превышают радиологический потенциал ДПД. Важным параметром является удельная γ -активность, которая для высокоактивных продуктов деления в рассматриваемых условиях превышает γ -активность ДПД в $1,7 \cdot 10^4$ раз.

В таблице П8 приведены характеристики активности высокоактивных продуктов деления при времени выдержки ОЯТ 600 лет.

Таблица П8 – Характеристики активности высокоактивных продуктов деления при времени выдержки ОЯТ 600 лет (на 1 тТМ)

Изотоп	Sr-90 Y-90	Cs-137 Ba-137m	Sm-151	Всего
C_β (Бк)	$1,65 \cdot 10^9$ $1,65 \cdot 10^9$	$2,65 \cdot 10^9$	$1,5 \cdot 10^{11}$	$1,56 \cdot 10^{11}$
C_γ (Бк)	–	$2,5 \cdot 10^9$	–	$2,5 \cdot 10^9$
d_2C (Зв)	132	32	96	260

Из данных таблицы П8 следует, что общая β -активность высокоактивных продуктов деления при времени выдержки ОЯТ 600 лет составляет 4,2 Ки/тТМ (на 96% определяется изотопом Sm-151), что в 5,5 раз меньше β -активности ДПД. При этом радиологический потенциал этой активности в 17 раз меньше радиологического потенциала ДПД, а выход γ -квантов в 30 раз меньше выхода γ -квантов ДПД. Эти данные говорят о том, что при времени выдержки ОЯТ в 600 лет радиационные и радиологические характеристики активности продуктов деления уже полностью определяются ДПД.

В таблице П9 приведены характеристики изменения активности трансурановых актиноидов ОЯТ в диапазоне времени хранения 50-5000 лет. Увеличение времени выдержки ОЯТ до 5000 лет приводит к существенному уменьшению этой активности, которая составляет при этом 650 Ки/тТМ и на 96% определяется долгоживущими изотопами Pu-239 и Pu-240.

Таблица П9 – Изменение характеристик содержания трансурановых актиноидов в ОЯТ ВВЭР-1000 (на 1 тТМ) при энерговыработке ОЯТ 40,5 ГВт·сут./тТМ в зависимости от времени выдержки ОЯТ

Изотоп	$T_{1/2}$ (лет)	C_0 (Ки/г)	P_0 (г)	C (Ки)	C (Бк)	МЗУА (Бк/г)	УВ (Бк/кг)	d_2 (Зв/Бк)	d_2C (Зв)	T_B (лет)
Pu-238	87,7	17,2	129	2219	$8,2 \cdot 10^{13}$	1	0,6	$4 \cdot 10^{-7}$	$3,28 \cdot 10^7$	50
			1,68	28,9	$1,07 \cdot 10^{12}$				$4,26 \cdot 10^5$	600
			~ 0	~ 0	$< 10^{-3}$				~ 0	5000
Pu-239	$2,41 \cdot 10^4$	0,062	$5,86 \cdot 10^3$	363	$1,34 \cdot 10^{13}$	1	0,56	$4,2 \cdot 10^{-7}$	$5,52 \cdot 10^6$	50
			$5,76 \cdot 10^3$	357	$1,32 \cdot 10^{13}$				$5,54 \cdot 10^6$	600
			$5,08 \cdot 10^3$	315	$1,16 \cdot 10^{13}$				$4,87 \cdot 10^6$	5000
Pu-240	$6,56 \cdot 10^3$	0,228	$2,3 \cdot 10^3$	524	$1,94 \cdot 10^{13}$	1	0,56	$4,2 \cdot 10^{-7}$	$8,15 \cdot 10^6$	50
			$2,17 \cdot 10^3$	495	$1,83 \cdot 10^{13}$				$7,69 \cdot 10^6$	600
			$1,36 \cdot 10^3$	310	$1,15 \cdot 10^{13}$				$4,83 \cdot 10^6$	5000
Pu-241	14,4 (β)	103	165	$1,7 \cdot 10^4$	$6,3 \cdot 10^{14}$	100	29	$4,8 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^6$	50
			~ 0	~ 0	$2 \cdot 10^3$				~ 0	600
			0	0	0				0	5000
Pu-242	$3,73 \cdot 10^5$	$3,95 \cdot 10^{-3}$	700	2,76	$1,02 \cdot 10^{11}$	1	0,58	$4 \cdot 10^{-7}$	$4,08 \cdot 10^4$	50
			700	2,76	$1,02 \cdot 10^{11}$	1	0,58	$4 \cdot 10^{-7}$	$4,08 \cdot 10^4$	600
			700	2,76	$1,02 \cdot 10^{11}$	1	0,58	$4 \cdot 10^{-7}$	$4,08 \cdot 10^4$	5000
Am-241	432	3,42	$1,64 \cdot 10^3$	5609	$2,08 \cdot 10^{14}$	1	0,69	$3,7 \cdot 10^{-7}$	$7,7 \cdot 10^7$	50
			720	2462	$9,11 \cdot 10^{13}$				$3,37 \cdot 10^7$	600
			0,6	2,05	$7,6 \cdot 10^{10}$				$2,8 \cdot 10^4$	5000
Am-242m	141	10,43	0,7	7,3	$2,7 \cdot 10^{11}$	1	0,73	$3 \cdot 10^{-7}$	$8,1 \cdot 10^4$	50
			0,047	0,49	$1,8 \cdot 10^{10}$				$5,4 \cdot 10^3$	600
			~ 0	~ 0	7				0	5000
Am-243	$7,38 \cdot 10^3$	0,2	150	30	$1,11 \cdot 10^{12}$	1	0,69	$3,7 \cdot 10^{-7}$	$4,1 \cdot 10^5$	50
			142,4	28,5	$1,05 \cdot 10^{12}$				$3,9 \cdot 10^5$	600
			94,2	18,85	$6,97 \cdot 10^{11}$				$2,6 \cdot 10^5$	5000
Cm-244	18,1	81	6,5	526	$1,95 \cdot 10^{13}$	10	1,2	$2,9 \cdot 10^{-7}$	$5,65 \cdot 10^6$	50
			~ 0	~ 0	$1,4 \cdot 10^4$					600
			0	0	0					5000

Продолжение таблицы П9

Изотоп	$T_{1/2}$ (лет)	C_0 (Ки/г)	P_0 (г)	C (Ки)	C (Бк)	МЗУА (Бк/г)	УВ (Бк/кг)	d_2 (Зв/Бк)	$d_2 C$ (Зв)	T_B (лет)
См-245	$8,5 \cdot 10^3$	0,172	2	0,345	$1,27 \cdot 10^{10}$	1	0,66	$3,7 \cdot 10^{-7}$	$4,7 \cdot 10^3$	50
			1,91	0,329	$1,22 \cdot 10^{10}$				$4,5 \cdot 10^3$	600
			1,33	0,23	$8,5 \cdot 10^9$				$3,15 \cdot 10^3$	5000
Np-237	$2,14 \cdot 10^6$	$7 \cdot 10^{-4}$	655	0,46	$1,7 \cdot 10^{10}$	1	1,3	$2,1 \cdot 10^{-7}$	$3,6 \cdot 10^3$	50
			1620	1,13	$4,18 \cdot 10^{10}$				$8,8 \cdot 10^3$	600
			2400	1,68	$6,2 \cdot 10^{10}$				$1,3 \cdot 10^4$	5000

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами (СПОРО-2002). СП 2.6.61168 02. М.: Минздрав России, 2002.
2. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99). М.: Минздрав России, 1999.
3. Wronkiewicz D. J. Radionuclide Decay Effects on Waste Glass Corrosion and Weathering. Argonne National Laboratory, ANL/CMT/CP-80028, 1993.
4. Vittrification Technologies for Treatment of Hazardous and Radioactive Waste. Handbook. U.S. Environmental Protection Agency, EPA/625/R-92/002, May 1992.
5. Allen G. Croff. Identification and Summary of Characterization of Materials Potentially Requiring Vittrification // Glass as a Waste Form and Vittrification Technology: Summary of an International Workshop. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
6. Pavel Hrma. Hanford Wastes and Glass Composition // Glass as a Waste Form and Vittrification Technology: Summary of an International Workshop. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
7. William Bourcier. Waste Glass Leaching and Long-Term Modeling // Glass as a Waste Form and Vittrification Technology: Summary of an International Workshop. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
8. Bernd Grambow. Corrosion Behavior of Glass: Remaining Scientific Issues // Glass as a Waste Form and Vittrification Technology: Summary of an International Workshop. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
9. William G. Ramsey. Actinide Vittrification: Status of Savannah River Site Activities // Glass as a Waste Form and Vittrification Technology: Summary of an International Workshop. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
10. William J. Weber. Radiation Effects in Glass Waste Forms // Glass as a Waste Form and Vittrification Technology: Summary of an International Workshop. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
11. Maurits Demonie. Experience in Belgium // Glass as a Waste Form and Vittrification Technology: Summary of an International Workshop. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
12. Antoine Jouan, Thierry Flament, Hugues Binnering. Vittrification Experience in France – Development and Perspectives // Glass as a Waste Form and Vittrification

- Technology: Summary of an International Workshop. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
13. M. Yoshioka, H. Igarashi. *Vitrification Experience of TVF in Japan // Glass as a Waste Form and Vitrification Technology: Summary of an International Workshop*. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
 14. Graham A Fairhall, Charles R Scales. *Vitrification Experience in the UK // Glass as a Waste Form and Vitrification Technology: Summary of an International Workshop*. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
 15. A. S. Aloy, V. A. Bel'tyukov, A. V. Demin, Yu. A. Revenko. *Experiences with Vitrification HLW and Development of New Approaches in Russia // Glass as a Waste Form and Vitrification Technology: Summary of an International Workshop*. National Academy Press, Washington, D.C., 1996.
 16. *Survey of Wet and Dry Spent Fuel Storage*. International Atomic Energy Agency, IAEA-TECDOC-1100, July 1999.
 17. *Dry Spent Fuel Storage Designs: NRC Approved for General Use*. [Электронный ресурс] U.S. Nuclear Regulatory Commission. Режим доступа: <http://www.nrc.gov/waste/spent-fuel-storage/designs.html>.
 18. *GNSI Spent Fuel Cask Technology*. [Электронный ресурс] Board on Radioactive Waste Management, The National Academies. Режим доступа: http://dels.nas.edu/sfs/docs/GNB_McConaghy.pdf.
 19. Matthew Bunn, John P. Holdren, Allison Macfarlane, Susan E. Pickett, Atsuyuki Suzuki, Tatsujiro Suzuki, Jennifer Weeks. *Interim Storage of Spent Nuclear Fuel*. Harvard University and University of Tokyo, 2001.
 20. Шаталов В.В. Анализ количественного состава и качественного состояния накопленных РАО // Бюллетень по атомной энергии. 2002. № 7
 21. Егоров Н.Н., Поляков А.С. Проблемы образования РАО, их переработка и захоронение // *Ядерная индустрия России* / Гл. ред.: А.М. Петросьянц. М.: Энергоатомиздат, 2000.
 22. *Waste Management in the Nuclear Fuel Cycle*. [Электронный ресурс] World Nuclear Association. Режим доступа: http://www.world-nuclear.org/info/printable_information_papers/inf04ap1print.htm.
 23. Полуэктов П.П. Технологии кондиционирования РАО. [Электронный ресурс] ВНИИНМ им. А.А. Бочвара. Режим доступа: http://www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/CEG/documents/ws062006_4R.pdf.

24. Баринов А., Варламов А. Совершенствование технологии цементированья РАО. [Электронный ресурс] ГУП МосНПО «Радон». Режим доступа: <http://www.radon.ru/moscow/cement.htm>.
25. Womack R.K. Using the Centrifugal Method for Plasma-Arc Vitrification of Waste. [Электронный ресурс] Режим доступа: <http://www.tms.org/pubs/journals/JOM/9910/Womack-9910.html>.
26. David Albright and Kimberly Kramer. Plutonium Watch. Tracking Plutonium Inventories. [Electronic resource] Institute for Science and International Security. Mode of access http://www.isis-online.org/global_stocks/plutonium_watch2004.html.
27. Булатов В.И. Жидкие радиоактивные отходы в России: проблемы без конца. [Электронный ресурс] Энергетика и Безопасность № 10. Режим доступа: <http://www.ieer.org/ensec/no-10/no10russ/russia.html>.
28. Брохович В.В., Круглов А.К., Фетисов В.И. База 10. Комбинат № 817. ПО «Маяк» // Ядерная индустрия России / Гл. ред.: А.М. Петросьянц. М.: Энергоатомиздат, 2000.
29. D.Albright, F.Berkhout, W.Walker. Plutonium and Higly Enriched Uranium. 1996. SIPRI. 1997.