

О РАНЖИРОВАНИИ ХРАНИЛИЩ ТВЕРДЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ ПРЕДПРИЯТИЙ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВНОГО ЦИКЛА ПО ПОТЕНЦИАЛЬНОЙ ОПАСНОСТИ

Р.Б. Шарафутдинов, Л.А. Кузнецов, В.А. Денисов, О.Н. Ушанова, В.И. Корж,
А.С. Абакумова, Е.В. Новикова, А.В. Талицкая (НТЦ ЯРБ)

Одним из главных условий развития атомной отрасли является решение проблем обеспечения безопасности накопленных радиоактивных отходов (РАО). Федеральной целевой программой «Обеспечение ядерной и радиационной безопасности на 2008 год и на период до 2015 года» предусмотрено создание объектов инфраструктуры обращения с РАО, а также повышение безопасности обращения с накопленными РАО.

На предприятиях ядерного топливного цикла (ЯТЦ) Российской Федерации размещено около 300 приповерхностных хранилищ твердых РАО. Большая часть этих хранилищ не удовлетворяет требованиям современных нормативных документов по безопасности.

Для образующихся в настоящее время РАО в большинстве случаев могут быть последовательно реализованы все установленные системой нормативного регулирования требования, а для РАО предыдущей деятельности такой подход осуществим ограниченно. В большинстве случаев хранилища либо не имеют требуемой с точки зрения современных представлений о безопасности системы барьеров на пути возможного распространения ионизирующего излучения и радиоактивных веществ, либо существующая система барьеров не совершенна.

С целью определения необходимости реализации технических решений и организационных мероприятий, направленных на повышение уровня безопасности хранилищ РАО, следует провести анализ текущего уровня их безопасности и прогнозный расчет для оценки безопасности системы хранения РАО. По результатам анализа и прогнозного расчета должны быть выполнены все мероприятия, направленные на реализацию требований федеральных норм и правил [1]. Необходимость реализации требований [1] диктуется положениями статьи 12 «Объединенной конвенции о безопасности обращения с отработавшим топливом и о безопасности обращения с радиоактивными отходами».

Принятие решений об извлечении РАО из хранилищ, сооружении дополнительных инженерных барьеров и/или реконструкции хранилищ в пункты захоронения должно основываться на оценке их безопасности. Для оценки безопасности необходимо детальное обследование хранилища и площадки его размещения, что требует серьезных финансовых затрат и много времени. В связи с большим количеством хранилищ твердых радиоактивных отходов (ТРО) на предприятиях ЯТЦ ранжирование их по опасности представляется чрезвычайно важным для идентификации тех хранилищ, которые требуют первоочередного вмешательства.

Для решения указанной выше задачи были рассмотрены критерии безопасности и разработаны показатели опасности хранилищ ТРО.

В качестве первого критерия безопасности использовали не превышение значений удельной активности радионуклидов в ТРО (СПОРО-2002, пп. 3.4, 3.5), значений минимально значимой удельной активности (МЗУА), приведенных в НРБ-99/2009.

Первый критерий безопасности представляется в виде:

$$\sum_i A_{Mi} / MЗУА_i \leq 1, \quad (1)$$

где A_i – активность;

A_{Mi} – удельная активность;

$MЗУА_i$ – минимально значимая удельная активность i -го радионуклида.

При выполнении этого условия твердые отходы не относятся к радиоактивным.

Первый показатель опасности W определили как превышение значения удельной активности, задаваемого приведенным выше критерием безопасности:

$$W = \sum_i A_{Mi} / MЗУА_i. \quad (2)$$

Статьи

Показатель W определяет насколько удельная активность радионуклидов в ТРО, находящихся в хранилище, превышает МЗУА. Чем больше значение показателя W , тем опаснее ТРО.

В качестве второго критерия безопасности использовали требование НРБ-99/2009 о том, что удельная активность радионуклидов в питьевой воде (в области разгрузки подземных вод от хранилища) не должна превышать уровня вмешательства (УВ). Данный критерий определяет опасность хранилища для населения, так как предполагается, что эта вода может быть питьевой.

Второй критерий безопасности при наличии нескольких радионуклидов представляется в виде (НРБ-99/2009, п. 5.3.5):

$$\sum_i (A_{Mi} / УВ_i) \leq 1, \quad (3a)$$

где A_{Mi} – удельная активность i -го радионуклида в воде, Бк/кг;

$УВ_i$ – соответствующий УВ, Бк/кг,

или

$$\sum_i (A_{Vi} / УВ_i) \leq 1, \quad (3б)$$

где A_{Vi} – объемная активность i -го радионуклида в воде, Бк/л;

$УВ_i$ – соответствующий УВ, Бк/л.

В качестве второго показателя опасности F определим поток активности в геосферу, нормированный по УВ, Бк/кг, при совместном присутствии в питьевой воде нескольких радионуклидов.

Для этого, воспользовавшись критерием безопасности в виде выражения (3б) и принимая во внимание соотношение:

$$\Phi_i = A_{Vi} \cdot R, \quad (4)$$

где Φ_i – поток i -го радионуклида, Бк/год;

R – расход воды в створе области разгрузки подземных вод, л/год,

получим тот же критерий безопасности, но в ином виде:

$$\sum_i (\Phi_i / УВ_i) \leq R. \quad (5)$$

Показатель опасности F или сокращенно поток активности, л/год, определим как:

$$F = \sum_i (\Phi_i / УВ_i). \quad (6)$$

В случае, когда известен расход воды по результатам мониторинга, отношение показателя F к реальному расходу дает превышение концентрации радионуклидов над уровнем вмешательства.

Чем опаснее хранилище, тем больше значение показателя опасности F , т.е. тем большим должен быть расход воды в створе области разгрузки подземных вод для разбавления потока радионуклидов до допустимой активности.

Вычисление показателя опасности F сводится к определению потоков каждого радионуклида, выходящих из конкретного хранилища, пропорциональных произведению концентрации радионуклида на площадь дна хранилища, скорости инфильтрации (скорости конвективного переноса в вертикальном направлении), толщины инженерного барьера и коэффициента диффузии в нем.

Методика оценки опасности хранилищ РАО и их ранжирования по убыванию показателя опасности

В связи с большим количеством хранилищ РАО (около 300) и множеством признаков, характеризующих состояние каждого и определяющих его опасность, возникла необходимость в автоматизации ранжирования хранилищ по убыванию показателей опасности. Эта задача была решена средствами системы управления базой данных (СУБД) Microsoft Office Access 2003. Характеристики хранилищ ТРО и вмещающей их среды введе-

ны в созданную в НТЦ ЯРБ автоматизированную информационную систему (АИС) «Объекты хранения-захоронения РАО предприятий ЯТЦ».

АИС позволяет в удобной для пользователя форме получать информацию о состоянии объектов хранения РАО предприятий ЯТЦ. С помощью АИС можно проводить сортировку хранилищ по предприятиям, по подразделениям предприятий, по суммарной активности РАО и удельной активности отдельных радионуклидов, максимальному периоду полураспада радионуклидов и т.д.

Расчет показателя опасности W

Показатель опасности W вычисляется по формуле (2). Для его вычисления необходимо знать значение удельной активности радионуклида, Бк/кг, в ТРО для каждого хранилища. Значения МЗУА, Бк/кг, радионуклида берутся из НРБ-99/2009.

Спецификой так называемых «исторических» хранилищ ТРО предприятий ЯТЦ является отсутствие достоверной информации о характеристиках, размещенных в них ТРО, в том числе и об удельной активности ТРО (информация о ТРО ограничивается в лучшем случае сведениями о суммарной альфа- и бета-активности и о радионуклидном составе РАО).

Удельную активность радионуклидов определяли экспертным способом, основанном на знании технологий, которые использовались в разные периоды времени на подразделениях предприятий ЯТЦ.

Расчет показателя опасности F

Для расчета показателя опасности F необходимо определить концентрацию радионуклидов в жидкой фазе области источника или объемную активность жидкой фазы и вычислить потоки радионуклидов из хранилищ в геосферу.

На предприятиях ЯТЦ, как правило, отсутствуют данные о состоянии хранилищ (наличие воды в хранилище, состояние барьеров), а также о концентрации радионуклидов, находящихся в жидкой фазе в хранилищах. Поэтому для расчета показателя опасности F были приняты следующие допущения:

- хранилище полностью заполняется ТРО в год его создания и вся поверхность ТРО контактирует с водой;
- основными радионуклидами, определяющими радиоактивность ТРО в настоящее время, являются: изотопы цезия, стронция, радия, углерода, тория, урана, плутония, причем их химические формы в водной фазе для всех хранилищ одинаковы [2];
- все радионуклиды мгновенно и полностью переходят в водную фазу хранилища и их концентрация в ней пропорциональна удельной концентрации этих радионуклидов в ТРО;
- по типу используемых в инженерных барьерах конструкционных материалов все хранилища разделены на три класса:
 - хранилища без инженерных барьеров;
 - хранилища с инженерным барьером из бетона;
 - хранилища с инженерным барьером из глины.

В хранилища без инженерных барьеров и хранилища с инженерным барьером из глины при размещении ТРО засыпался местный грунт послойно или после заполнения хранилища. Радионуклиды, вышедшие из ТРО, будут сорбироваться заполнителем – грунтом. Концентрация в водной фазе области источника таких хранилищ вычисляется по формуле [3–4]:

$$A_{VL} = \frac{A}{V \cdot (n_0 + K_d \cdot \rho)}, \quad (7)$$

где A – полная активность в хранилище (жидкой и твердой фаз), Бк;

A_{VL} – объемная активность в жидкой фазе хранилища, Бк/м³;

V – объем хранилища, м³;

K_d – коэффициент распределения радионуклида между твердой и жидкой фазами области источника, или коэффициент межфазного распределения, м³/кг;

ρ – плотность области источника (масса сухого образца, деленная на объем образца), кг/м³;

n_0 – активная пористость области источника.

Коэффициенты межфазного распределения для радионуклидов в грунтах области источника, использованные для расчета, были взяты из литературы [5 –11].

В хранилищах, материалом инженерных барьеров которых является бетон, по имеющимся данным, при размещении ТРО не используются буферные материалы. Сорбция в области источника отсутствует ($K_d = 0$).

Допущение бесконечно большой скорости перехода радионуклидов из ТРО в водную фазу, приводящее к чрезмерному консерватизму при расчете показателя опасности F , представляется вполне приемлемым, так как целью является не расчет этого показателя, а ранжирование хранилищ по убыванию опасности.

Далее принимаем, что выход из хранилищ происходит сразу в насыщенный водоносный горизонт.

Фильтрационный поток радионуклидов

Фильтрационный (конвективный) поток i -го радионуклида в хранилищах без инженерных барьеров вычисляется по формуле [7]:

$$\Phi_{f_i} = A_{vi} \cdot V_f \cdot S, \quad (8)$$

где A_{vi} – удельная активность i -го радионуклида в воде поровой среды области источника или барьера, Бк/л;

V_f – скорость фильтрации (инфильтрации), м/год;

S – площадь дна хранилища, м².

Если в качестве инженерных барьеров применяется бетон (железобетон), то необходимо иметь в виду, что в связи с деградацией бетона скорость фильтрации постепенно нарастает и при достижении некоего времени, называемого временем деградации бетона, достигает максимума и уже не меняется во времени.

Для расчета фильтрационных потоков в бетоне используется формула (8), в которой:

$$V_f(t) = V_{fm} \cdot V_{fr}(t, D_{gr}),$$

где: V_{fm} – максимальная скорость фильтрации;

$V_{fr}(t, D_{gr})$ – относительная скорость фильтрации, равная:

$$V_{fr}(t, D_{gr}) = \begin{cases} \left(\frac{t}{T_{dgr}}\right)^{D_{gr}} & 0 < t < T_{dgr}, \\ 1 & t > T_{dgr} \end{cases},$$

где t – возраст бетона; T_{dgr} – время деградации бетона; D_{gr} – показатель степени.

В расчетах использовались следующие значения параметров:

$$T_{dgr} = 100 \text{ лет и } D_{gr} = 5.$$

Скорость фильтрации во всех хранилищах без инженерных барьеров принята равной 0,2 м/год, что соответствует годовой норме атмосферных осадков 0,5 м/год (считается, что 40% годовых осадков достигает насыщенного водоносного слоя).

В хранилищах, материалом инженерных барьеров которых является глина (уплотненная глина), фильтрационный поток радионуклидов отсутствует.

Диффузионный поток радионуклидов

Диффузионный поток i -го радионуклида вычисляется по формуле:

$$\Phi_{d_i} = (D \cdot A_{vi} \cdot S) / H \quad (9)$$

с задержкой на время установления стационарного значения [7], равной

$$T = H^2 \times (n_0 + K_d \times \rho) / D, \quad (10)$$

где A_{Vi} – удельная активность i -го радионуклида в воде области источника, Бк/л;

D – водный коэффициент молекулярной диффузии (чистый коэффициент диффузии или фильтрационный коэффициент диффузии) бетона или глины, м²/год;

H – толщина материала барьера (глины или бетона);

S – площадь дна хранилища, м²;

K_d – коэффициент межфазного распределения в барьере, м³/кг;

ρ – плотность барьера, кг/м³;

n_0 – активная пористость барьера.

Коэффициенты межфазного распределения для радионуклидов в инженерных барьерах (бетон, глина), использованные для расчета времени задержки T , были взяты из литературы [3, 4, 12].

Расчет диффузионных потоков, проходящих через инженерные барьеры, состоящие из нескольких изолирующих слоев, проводился для слоя, материал которого обеспечивает долговременную безопасность. Так, например, если дно хранилища состояло из железобетонных плит большой толщины и относительно тонкого слоя бетона (монолитного железобетона), расчет проводился для этого относительно тонкого слоя. Железобетонные плиты были исключены из рассмотрения из-за возможности фильтрации через щели между ними.

При консервативном расчете диффузионных потоков принимаются максимальные значения коэффициентов диффузии D , м²/год:

для бетона – 0,012 м²/год;

для глины – 0,018 м²/год.

В хранилищах с бетонными барьерами учитывалась нарастающая зависимость скорости фильтрации от времени, которая достигла максимального значения 0,2 м/год через 100 лет.

Результаты ранжирования хранилищ ТРО

Рассмотрено 140 хранилищ ТРО предприятий ЯТЦ.

Проведено их ранжирование по убыванию показателя опасности W на 2008, 2030, 2050, 2100, 2200, 2300, 2400 и 2500 гг. (без учета выхода радионуклидов из хранилища).

Показано, что удельная активность отходов в 13-ти хранилищах станет меньше МЗУА к 2200 г., а в 20 хранилищах – к 2300 г. К 2500 г. количество хранилищ, удельная активность радионуклидов в ТРО которых станет меньше МЗУА, не изменится.

ТРО в этих 20 хранилищах содержат радионуклиды с периодом полураспада не более 30 лет (цезий, стронций, кобальт и др.). Их удельная активность не превышает допустимое содержание радионуклидов, установленное для захораниваемых РАО (НП-055-04, Приложение 1).

Проведено ранжирование по убыванию показателя опасности F на 2008, 2030, 2050 гг. и через 100 лет (срок деградации бетона) после начала эксплуатации хранилища.

Показано, что через 100 лет эксплуатации 42 хранилищ, материалом барьера которых является бетон, поток активности в геосферу:

- резко увеличится (до 5 порядков) из 9 хранилищ;
- изменится незначительно (в пределах порядка) из 29 хранилищ;
- существенно уменьшится из 4 хранилищ.

Показано, что для 8 хранилищ, материалом барьера которых является глина, поток радиоактивности не выйдет в геосферу ни в 2008 – 2050 гг., ни в течение 100 лет после начала их эксплуатации. Из-за высоких изолирующих свойств глиняных барьеров стронций и цезий не будут распространяться через барьеры, а уран начнет распространяться в геосферу через 20000 – 80000 лет при толщине барьера от 0,5 до 1,0 м.

Выводы

1. Предложены показатели опасности хранилищ ТРО:

- превышение удельной активности радионуклидов в ТРО МЗУА;

- поток активности в геосферу, нормированный по УВ, Бк/кг, при совместном присутствии в питьевой воде нескольких радионуклидов (отношение этого потока к расходу воды дает превышение концентрации радионуклидов над УВ).
2. Разработана и опробована методика ранжирования хранилищ ТРО по опасности. Результаты ранжирования хранилищ ТРО могут быть использованы для установления приоритетов при планировании работ по выводу их из эксплуатации, а также для проведения детальной оценки безопасности.

Список источников

1. Безопасность при обращении с радиоактивными отходами. Общие положения. НП-058-04, Москва.
2. Крайнов С.Р., Швец В.М., Роженов Б.Н., Геохимия подземных вод хозяйственно-питьевого назначения., М.: Недра, 1987. 237 с.
3. Safety Assessment Methodologies for Near Surface Disposal Facilities (ISAM), Results of a co-ordinated research project, Vol. 1, IAEA, VIENNA, 2004., pp. 408.
4. Safety Assessment Methodologies for Near Surface Disposal Facilities (ISAM), Results of a co-ordinated research project, Vol. 2, IAEA, VIENNA, 2004, pp. 336.
5. Платонов П.А., Штромбах Я.И., Чугунов О.К. и др. Фиксация радионуклидов в облученных блоках реакторного графита. Атомная энергия, т. 92, вып. 6, июнь 2002, с. 445–451.
6. R. Takahashi, M. Toyahara, S. Maruki, H. Ueda, T. Yamamoto, Investigation of morphology and impurity of nuclear grade graphite, and leaching mechanism of carbon-14, IAEA, Technical Committee Meeting on "Nuclear Graphite Waste Management", Manchester, 1999, UK, pp. 176–190.
7. Рыбальченко А.И., Пименов М. К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. М.: ИздАТ, 1994. 256 с.
8. Ewart F.T., Pugh S.Y.R., Wisbey S.J., Woodwark D.R. Chemical and microbiological effects in the near field: Current Status 1989, Nirex Safety Series report NSS/G111, 1989, UK.
9. Allard B., Hoglund L.O., Skagius K. Adsorption of radionuclides on concrete. Swedish Final Repository for Radioactive Waste, SKB Report SFR 91-02, 1991, Stockholm, Sweden.
10. Allard B., Persson G., Torstenfelt B. Radionuclide sorption on concrete, Nagra Technical Report NTB 85-21, 1985, Wettingen, Switzerland.
11. Кайман Е.П. Константинова Л.И. Исследование сорбции плутония (IV, V, VI) грунтами из природных вод; Российская Академия наук. - Санкт-Петербург: Наука, Радиохимия, т. 35, вып. 3, 1993. с.133 –138.
12. M.H. Bradbury, Van Loon L.R., Cementitious Near-Field sorption Data Bases for performance Assessment of a L/ILW repository in Palfris Marl Host Rock, CEM-94: Update I, June 1997, PSI-BER, 98-01, Paul Scherrer Institut, Labor fur Entsorgung, Wurenlingen and Villingen, Switzerland, 1998.