

РАЗРАБОТКА АЛГОРИТМА ОЦЕНКИ РАДИОНУКЛИДНОГО СОСТАВА ОСТЕКЛОВАННЫХ ВАО ФГУП «ПО «МАЯК» ДЛЯ ЦЕЛИ ИХ БЕЗОПАСНОГО ЗАХОРОНЕНИЯ

М. Б. Ремизов¹, П. В. Козлов^{1,2}, В. П. Борисенко¹,
И. И. Дементьева¹, П. А. Блохин³, А. А. Самойлов³

¹ФГУП «ПО «Маяк», г. Озерск Челябинской обл.

²ОТИ НИЯУ МИФИ, г. Озерск Челябинской обл.

³Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Москва

Статья поступила в редакцию 30 июля 2018 г.

Разработан расчетный алгоритм оценки активности значимых радионуклидов в остеклованных РАО класса 1 ФГУП «ПО «Маяк» для обеспечения обоснования безопасности захоронения РАО в геологических формациях. Алгоритм базируется на данных по расчетному составу отработавшего ядерного топлива, определенному исходя из его характеристик (начального обогащения по ²³⁵U, глубины выгорания и времени выдержки после облучения), и технологических коэффициентов перераспределения радионуклидов между технологическими потоками на различных стадиях переработки ОЯТ и в процессе остекловывания.

Ключевые слова: *отработавшее ядерное топливо, радиоактивные отходы, алюмофосфатное стекло, остекловывание, значимые радионуклиды.*

Введение

Начиная с 1987 года на заводе РТ-1 ФГУП «ПО «Маяк» проводится отверждение радиоактивных отходов (РАО) от переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) с использованием алюмофосфатной стекломатрицы. За время эксплуатации 4 электропечей (ЭП-500/2, ЭП-500/1-р, ЭП-500/3 и ЭП-500/4) накоплено около 6,2 тыс. т остеклованных высокоактивных радиоактивных отходов (ОВАО) суммарной активностью (на момент отверждения) около 640 млн Ки [1]. В конце 2017 года была введена в эксплуатацию ЭП-500/5, за время работы которой будет дополнительно наработано ~3,8 тыс. т остеклованных РАО активностью ~570 млн Ки.

Остеклованные ВАО, согласно классификации [2], относятся к РАО класса 1 и подлежат захоронению в пунктах глубинного захоронения РАО

(ПГЗРО). Обоснование безопасности захоронения РАО предполагает проведение моделирования процессов эволюции пунктов захоронения с учетом характеристик кондиционированных РАО и барьеров безопасности как инженерных, так и естественных. Для этого требуется информация об эволюции свойств стекломатериалов при долговременном хранении в специфических условиях (температурные, радиационные и прочие факторы воздействия). С учетом того, что стратегия захоронения РАО принята относительно недавно [3], ранее не предусматривались мероприятия по определению характеристик РАО в таком разрезе. Процедура их характеристики ограничивалась определением набора параметров, необходимых для обеспечения эксплуатационной безопасности их хранения. Для

оценки долговременной безопасности захоронения необходим качественно другой состав исходных данных.

Одной из ключевых характеристик РАО является радионуклидный состав, требования об определении которого зафиксированы в общих критериях приемлемости [4]. Однако конкретных требований по перечню радионуклидов, подлежащих определению, там нет, что должно быть устранено, по-видимому, в рамках разработки частных критериев приемлемости для конкретного пункта захоронения РАО. При этом анализ международного опыта показывает, что данные по большинству радионуклидов, содержащихся в РАО, не требуются в силу объективных причин [5].

Поэтому в свете проектирования первого в России ПГЗРО крайне актуальной становится комплексная задача характеризации физико-химических свойств ОВАО и их радионуклидного состава. С учетом значительных объемов накопленных отходов и перспектив их образования, одним из инструментов решения этой задачи должна стать база данных, где бы накапливалась вся необходимая информация о характеристиках упаковок с отходами. Ввиду объективных сложностей по прямому измерению радионуклидного состава ОВАО и несоответствию архивной информации современным требованиям, на первом этапе необходимо разработать алгоритм определения радионуклидного состава ОВАО на основании накопленных на ФГУП «ПО «Маяк» данных, в первую очередь данных технологического контроля процессов переработки ОЯТ и отверждения ЖРО, а также современных расчетно-аналитических систем.

В статье описывается разработка алгоритма оценки радионуклидного состава ОВАО для обеспечения обоснования безопасности их захоронения в ПГЗРО.

Проблематика радионуклидного состава ОВАО ФГУП «ПО «Маяк»

Цикл переработки ОЯТ (в части, определяющей характеристики ОВАО) и витрификации ВАО состоит из ряда этапов (рис. 1).

В контексте определения радионуклидного состава РАО следует выделить две основные проблемы: определение перечня контролируемых радионуклидов и разработка алгоритма определения их содержания в РАО.

При формировании перечня контролируемых радионуклидов будем ориентироваться на вполне очевидный тезис, что предоставляемые в паспорте данные по радионуклидному составу должны полностью покрывать потребности при проведении обоснования безопасности захоронения РАО, включая долговременную, и удовлетворять критериям приемлемости. Следовательно, необходимо предварительно определить перечни радионуклидов, значимых для оценки:

- долговременной безопасности;
- ядерной безопасности;
- теплового воздействия на инженерные барьеры безопасности ПГЗРО и геологических формаций.

Начальные этапы выполнения этой задачи, при базовом сценарии эволюции ПГЗРО, уже выполнены в работе [6], где был сформирован перечень значимых радионуклидов в контексте долговременной безопасности. Для этого учитывались следующие параметры:

- активность радионуклида в исходном составе ОЯТ;
- период полураспада;
- предел растворимости в воде химических соединений, содержащих рассматриваемые радионуклиды в составе РАО;
- скорость миграции радионуклида (в случае сплошной пористой среды — коэффициент распределения фаз при физико-химических взаимодействиях в системе «РАО — подземные

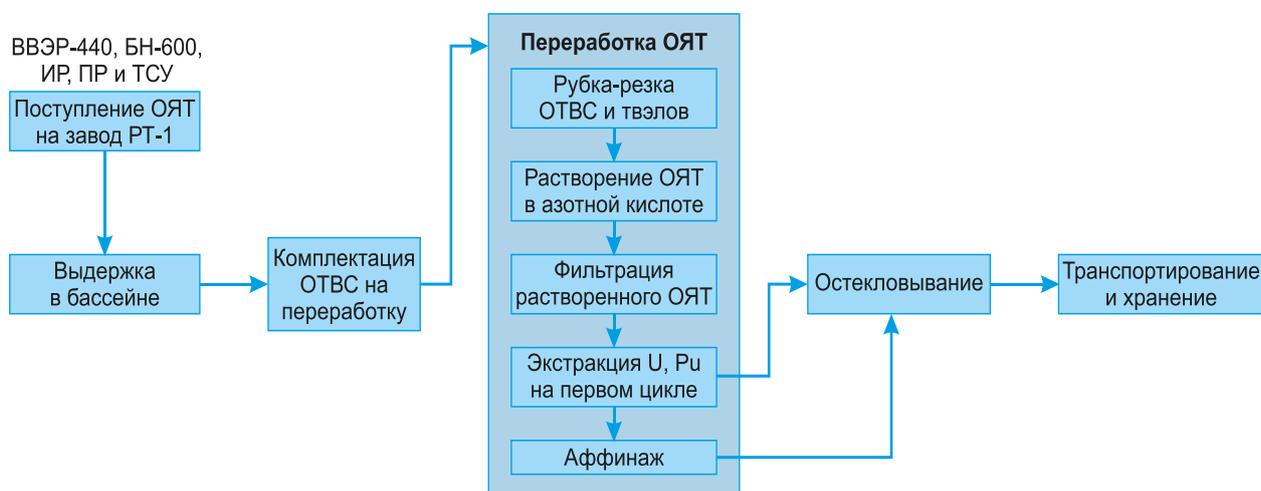


Рис. 1. Этапы обращения с ОЯТ на РТ-1

воды — горные породы» и характеристики геологической среды);

- дозовые коэффициенты при потреблении питьевой воды (в качестве основного сценария потенциального воздействия на население подразумеваем использование загрязненных подземных вод для питья).

С учетом того, что в настоящее время нет однозначного мнения о механизмах миграции радионуклидов из ПЗРО в окружающую среду, в качестве базового возьмем перечень радионуклидов (табл. 1) согласно [6], соответствующий итерации до учета миграционных характеристик.

Таблица 1. Перечень значимых радионуклидов для оценки долговременной безопасности

Радионуклид	$T_{1/2}$, лет	Радионуклид	$T_{1/2}$, лет
⁹³ Zr	1,53·10 ⁶	²³⁴ U	2,46·10 ⁵
^{95m} Nb	16,1	²³⁵ U	7,04·10 ⁸
¹²⁶ Sn	2,11·10 ⁵	²³⁶ U	2,34·10 ⁷
¹²⁹ I	1,57·10 ⁷	²³⁸ U	4,47·10 ⁹
²²⁶ Ra	1,60·10 ³	²³⁸ Pu	87,7
²²⁸ Ra	5,75	²³⁹ Pu	2,41·10 ⁴
²²⁷ Ac	21,8	²⁴⁰ Pu	6,57·10 ³
²²⁸ Th	1,91	²⁴² Pu	3,74·10 ⁵
²²⁹ Th	7,34·10 ³	²⁴¹ Am	433
²³⁰ Th	7,54·10 ⁴	²⁴³ Am	7,37·10 ³
²³¹ Pa	3,28·10 ⁴	²⁴⁵ Cm	8,50·10 ³
²³³ U	1,59·10 ⁵	²⁴⁶ Cm	4,73·10 ³

С учетом того, что основной объем перерабатываемого топлива на радиохимическом заводе составляет ОЯТ реакторов ВВЭР-440, в рамках работы [6] исходили из данных по радионуклидному составу ОВАО, полученному при переработке этого типа ОЯТ. В рамках данной работы при демонстрации алгоритма оценки радионуклидного состава будем исходить из аналогичного предположения. Тем не менее в общем алгоритме определения радионуклидного состава будем учитывать возможность включения в партию для переработки различных видов ОЯТ (БН-350, БН-600, промышленных, исследовательских реакторов и транспортно-судовых).

Более того, полученный перечень (табл. 1) учитывает только необходимость обоснования долговременной безопасности, и его необходимо расширить с учетом потребностей в оценке энерговыделения, содержания ядерно-делящихся материалов и, возможно, применения метода радионуклидного вектора.

В результате анализа расчетных данных радиационных характеристик ОЯТ ВВЭР-440, выполненных ранее, получено [7], что в первые 300 лет наибольший вклад в энерговыделение вносят радионуклиды ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr со своими

дочерними продуктами. Максимальный вклад в энерговыделение среди долгоживущих радионуклидов вносит ²⁴¹Am. Для оценки ядерной безопасности в части радионуклидного состава требуется информация о содержании делящихся изотопов, которые в полной мере представлены в табл. 1, поэтому в данном случае перечень не расширится. В результате итоговый перечень, поправленный из расчета на необходимость обеспечения контроля тепловыделения и ядерной безопасности, включает в себя 26 радионуклидов (⁹⁰Sr, ⁹³Zr, ^{95m}Nb, ¹²⁶Sn, ¹²⁹I, ¹³⁷Cs, ²²⁶, ²²⁸Ra, ²²⁷Ac, ²²⁸, ²²⁹, ²³⁰Th, ²³¹Pa, ²³³, ²³⁴, ²³⁵, ²³⁶, ²³⁸U, ²³⁸, ²³⁹, ²⁴⁰, ²⁴²Pu, ²⁴¹, ²⁴³Am, ²⁴⁵, ²⁴⁶Cm).

В части разработки алгоритма определения радионуклидного состава ОВАО следует отметить, что он в общем случае будет напрямую зависеть от нескольких параметров:

- характеристик партии исходных ОТВС, отправляемых на переработку;
- степени извлечения изотопов U и Pu (изменялся при отработке технологии);
- степени извлечения дополнительных изотопов (периодически осуществлялось извлечение изотопов Np и др.);
- перераспределения радионуклидов по технологическим потокам в процессе переработки ОЯТ и витрификации РАО.

Наибольший интерес при этом представляет собой влияние последнего фактора, как наименее изученного и потенциально оказывающего значительное влияние на состав значимых радионуклидов в ОВАО. В первом приближении данный процесс можно учесть за счет введения коэффициентов распределения, которые показывают относительную долю химического элемента, который остался в материале, направляемом на дальнейшую стадию переработки ОЯТ или витрификации РАО. Коэффициенты распределения должны определяться индивидуально для каждого рассматриваемого радионуклида с учетом параметров технологического процесса и его специфических характеристик.

Этапы технологического процесса переработки ОЯТ и витрификации РАО

Рассмотрим технологический процесс переработки ОЯТ (в части, определяющей характеристики ОВАО) и витрификации РАО для выделения этапов, на которых возможно перераспределение радионуклидов. Этот процесс состоит из следующих основных стадий:

1. Комплектация отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС);
2. Растворение и фильтрация ОЯТ;
3. Экстракция целевых компонентов — U, Pu и Np на первом цикле экстракции;
4. Комплектация и упаривание партии ВАО;
5. Остекловывание ВАО.

1 Комплектация отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС)

На данном этапе происходит формирование партии ОТВС, которая направляется на переработку, с учетом их характеристик, определяющих ядерную безопасность. Важным фактором при комплектации партии ОТВС также является соблюдение регламентных норм по содержанию примесных компонентов в растворенном ОЯТ с целью обеспечения штатного происхождения процессов переработки и учет изотопного состава целевых компонентов топлива. В одну партию попадают несколько типов ОТВС. В отношении уже переработанного топлива основная часть приходилась на ОЯТ ВВЭР-440, при этом в отдельных партиях соотношение между ОТВС различного типа может существенно отличаться. В среднем за год диапазон изменения количества ОТВС различного типа, направляемых на переработку, составляет: ВВЭР-440 — от 55,4 до 98,0%; БН-350, 600 — от 0,0 до 34,5%; ИР — от 0,0 до 2,6%; ТСУ — от 0,8 до 12,9%.

Содержание радионуклидов в ОВАО может быть определено исходя из радионуклидного состава перерабатываемого ОЯТ, который, в свою очередь, может быть оценен на основании данных исследований [8, 9]. В рамках этой статьи были использованы результаты расчета с применением кода нуклидной кинетики TRACT [7].

В дальнейшем при определенных приближениях (пренебрегая неизвлекаемыми остатками в технологической цепочке, непрерывностью цикла экстракции/реэкстракции и пр.) будем считать, что радионуклидный состав исходного ВАО определяется именно радионуклидным составом и количеством различных типов ОТВС, а также последующим технологическим перераспределением радионуклидов между различными потоками материалов (в том числе и товарной продукции радиохимической переработки ОЯТ).

Типы и количество перерабатываемых в рамках одной партии ОТВС, время их выдержки можно определить на основе архивной информации завода РТ-1. Зависимость удельной активности i -го радионуклида в ОВАО без учета перераспределений радионуклидов между различными потоками может быть описана формулой:

$$A_i(t) = \frac{\sum_k m_k \sum_n A_i^n(t)}{M_{\text{ОВАО}}}, \quad (1)$$

где $A_i^n(t)$ — удельная активность i -го радионуклида в n -й ОТВС;

m_k — масса ОТВС k -го типа;

$M_{\text{ОВАО}}$ — итоговая масса ОВАО.

С учетом того, что вычисление активности различных радионуклидов в каждой конкретной ОТВС представляет значительную сложность,

обусловленную имеющимися неопределенностями в условиях ее эксплуатации и нейтронно-физическими характеристиками реакторной установки в период ее эксплуатации, имеет смысл перейти от функциональной зависимости для конкретной ОТВС к единой зависимости для типа ОТВС от времени выдержки после завершения облучения и глубины выгорания. В такой ситуации активность ОВАО в момент образования выглядит следующим образом

$$A_i = \frac{\sum_k m_k \cdot \sum_j A_i^k(t_{\text{выд}}^j, B^j)}{M_{\text{ОВАО}}}, \quad (2)$$

где $A_i^k(t_{\text{выд}}^j, B^j)$ — удельная активность i -го радионуклида в k -м типе ОТВС с выгоранием и временем выдержки j ;

m_k — масса ОТВС k -го типа;

N_k — количество ОТВС k -го типа;

$M_{\text{ОВАО}}$ — итоговая масса ОВАО.

Последующее перераспределение радионуклидов в процессе переработки и витрификации ВАО может быть учтено введением в формулу коэффициентов распределения радионуклидов. В таком случае формула будет иметь вид:

$$A_i = \frac{\sum_k m_k \cdot \sum_j A_i^k(t_{\text{выд}}^j, B^j)}{M_{\text{ОВАО}}} \cdot K_i, \quad (3)$$

где K_i — коэффициент распределение/извлечения i -го радионуклида.

2 Растворение и фильтрация ОЯТ

На данном этапе переработки реализуются операции по рубке-резке топлива, его растворению и отделению нерастворенных осадков. При этом происходит перераспределение как летучих радионуклидов (^3H , ^{14}C , ^{129}I и т. д.), так и малорастворимых (либо сорбированных на твердой фазе) в условиях проведения процесса растворения ОЯТ (изотопы урана, плутония, цезия). Содержание изотопов Pu и Cs в нерастворенных оболочках и осадках крайне невелико [10], менее 0,5% от присутствующего в ОЯТ, поэтому в расчетах данными потерями можно пренебречь.

На стадии растворения ^{14}C практически полностью переходит в газообразную форму в виде диоксида. Некоторая его часть в форме элементарного углерода задерживается на стадии фильтрации растворенного ОЯТ и остается в осадках. Таким образом, на дальнейшую стадию экстракции ^{14}C не попадает.

Кроме того, ^{129}I на 99,5% также переходит в газообразную фазу в виде молекулярного йода или йодорганических соединений.

Стоит отдельно упомянуть о перераспределении трития. Несмотря на то, что данный

радионуклид не относится к радиологически важным для ОВАО (вследствие относительно короткого периода полураспада), его перераспределение представляет интерес для безопасности приповерхностного захоронения других РАО, образующихся при переработке ОЯТ (вследствие высокой миграционной способности).

Значительная часть ^3H (около 40% от образовавшегося в процессе деления) остается в структуре металла циркониевых оболочек [11]. Остальной ^3H выделяется в виде тритированной воды (НТО) в процессе растворения. Таким образом, на данной стадии в растворе ОЯТ остается около 60% образовавшегося трития.

Остальные радионуклиды, содержащиеся в ОЯТ, переходят на стадию экстракции практически полностью.

3 Экстракция целевых компонентов ОЯТ

В результате этого передела образуются высокоактивные рафинаты первого цикла экстракции (жидкие ВАО) — азотнокислые растворы, содержащие продукты деления, продукты коррозии и трансплутониевые элементы, а также следовые количества недоизвлеченного урана, плутония и нептуния [11–13].

На первом цикле экстракционной переработки в органическую фазу переходят:

- 99,9% изотопов U;
- 99,5% изотопов Pu;
- 98% изотопов Np;
- 90% изотопов Th.

Остальные радионуклиды практически полностью остаются в рафинате.

4 Комплектация и упаривание партии ВАО

На этом этапе технологического процесса рафинаты первого цикла от переработки высокообогащенного и низкообогащенного ОЯТ передаются в цех переработки РАО, где происходит их смешение с другими жидкими радиоактивными отходами (ЖРО), преимущественно среднего уровня активности (например, рафинатами второго цикла), которые содержат существенное количество стабильных макрокомпонентов (ионы натрия, железа, сульфата и т. д.) и незначительное (по сравнению с содержащимися в ВАО) — радиоактивных. Комплектация партии ЖРО осуществляется в емкостях большого объема — до 1500 м³. Так образуется исходная смесь ЖРО, которую направляют на упаривание в выпарное отделение этого же цеха. После упаривания с коэффициентом ~20 упаренные жидкие ВАО собирают в емкости-хранилища объемом 285 м³. Содержимое одной емкости после подготовки направляется на остекловывание и традиционно называется «операцией». Каждой операции присваивается порядковый номер. После завершения

переработки очередной операции ее основные характеристики, результаты химического и радиохимического анализов фиксируют в специальном акте. В нем приводятся расчетные химический и радиохимический составы остеклованных ВАО, которые будут получены из этой порции.

На стадии упаривания наблюдается унос ^3H . Количественно данный процесс в первом приближении можно оценить, опираясь на долю отогнанной с паровой фазой воды, пренебрегая различием в способности к испарению молекул воды с различными изотопами водорода. Поскольку исходный объем ЖРО при упаривании составляет, как правило, ~6400 м³, а после упаривания образуется ~275 м³ концентрата, коэффициент перехода трития в раствор на данной стадии можно оценить как ~0,05.

Также на стадии упаривания происходит дополнительная отгонка йода.

5 Остекловывание ВАО

На данном этапе скомплектованную и упаренную порцию ВАО флюсуют жидкими добавками (фосфорной кислотой, раствором нитрата натрия) и перерабатывают в печи прямого электрического нагрева. Расплав фосфатного стекла разливают в стальные бидоны объемом 200 л, которые упаковывают в стальные пеналы. Пеналы герметично заваривают дистанционной аргоновой сваркой и помещают в хранилище остеклованных отходов [14]. На этом этапе наблюдается технологическое перераспределение трития, изотопов йода, цезия и технеция.

В процессе обезвоживания и кальцинации отверждаемых ВАО в поверхностном слое варочной зоны электропечей имеет место полная отгонка остаточного количества воды (а следовательно, и ^3H) и I. Таким образом, в остеклованные отходы данные радионуклиды не попадают, уходя в потоки САО.

В процессе кальцинации и варки стекла имеет место также унос сравнительно легколетучего Cs (около 1,5%) и твердой фазы (около 0,4%). С твердой фазой уносятся все присутствующие в ОВАО радионуклиды в равной степени. Указанные значения подтверждаются результатами периодически выполняемого химического и радиохимического анализа конденсата барботера-холодильника, установленного на выходе газозода электропечи.

Унос Tc на стадии варки стекла в форме Tc₂O₇ сильно зависит от условий проведения процесса (степени окисления данного элемента, температуры процесса, наличия относительно холодной корки кальцината на поверхности расплава и т. д.) и может варьироваться от 45% до 95% [15]. Консервативно можно оценить количество Tc, переходящего в остеклованные РАО на данной стадии, равным 50% от исходного.

Вследствие ограниченной растворимости в стекле радиоактивный ^{107}Pd вместе со стабильными изотопами $^{106,108}\text{Pd}$ образует (наряду с остальными металлами платиновой группы — Ru и Rh) отдельную металлоподобную фазу, которая в силу конструктивных особенностей электропечи ЭП-500 скапливается в донной ее части в специально организованных приемках. На данном этапе исследований количественно оценить перераспределения элементов этой группы при работе печи не представляется возможным. В первом приближении можно задаться величиной 50% попадания ^{107}Pd в бидоны с ОВАО.

Вышеизложенные соображения позволяют сформировать соответствующую матрицу коэффициентов перехода радионуклидов по стадиям переработки (табл. 2).

Таблица 2. Коэффициенты перехода радионуклидов по стадиям процесса при переработке ОЯТ ВВЭР-440 и остекловывании образующихся ВАО

Нук- лид	Коэффициент перехода по стадиям, %				Итоговый коэффициент, %
	2	3	4	5	
^{90}Sr	100	100	100	99,6	99,6
^{95}Zr	100	100	100	99,6	99,6
$^{93\text{m}}\text{Nb}$	100	100	100	99,6	99,6
^{126}Sn	100	100	100	99,6	99,6
^{129}I	0,5	100	0	0	0
^{137}Cs	100	100	100	98,5	98,5
^{226}Ra	100	100	100	99,6	99,6
^{228}Ra	100	100	100	99,6	99,6
^{227}Ac	100	100	100	99,6	99,6
^{228}Th	100	10	100	99,6	9,96
^{229}Th	100	10	100	99,6	9,96
^{230}Th	100	10	100	99,6	9,96
^{231}Pa	100	100	100	99,6	99,6
^{233}U	100	0,1	100	99,6	0,1
^{234}U	100	0,1	100	99,6	0,1
^{235}U	100	0,1	100	99,6	0,1
^{236}U	100	0,1	100	99,6	0,1
^{238}U	100	0,1	100	99,6	0,1
^{238}Pu	100	0,5	100	99,6	0,5
^{239}Pu	100	0,5	100	99,6	0,5
^{240}Pu	100	0,5	100	99,6	0,5
^{242}Pu	100	0,5	100	99,6	0,5
^{241}Am	100	100	100	99,6	99,6
^{243}Am	100	100	100	99,6	99,6
^{245}Cm	100	100	100	99,6	99,6
^{246}Cm	100	100	100	99,6	99,6

Отметим, что исследований, направленных на изучение этой проблемы, не проводилось. Вследствие этого все приводимые численные значения коэффициентов перехода радионуклидов стоит рассматривать как предварительные, которые должны быть уточнены по результатам проведения соответствующих исследований.

Использование соответствующих коэффициентов позволяет уточнить радионуклидный состав ОВАО с учетом технологических факторов. Отметим, что при остекловывании коэффициент увеличения массы составляет от 1,5 до 1,8.

Обсуждение результатов и выводы

Разработанный алгоритм расчета радионуклидного состава ОВАО должен лечь в основу базы данных, в которой на основе архивной информации о переработке ОЯТ на заводе РТ-1, проведенных измерений и пр. должны быть рассчитаны составы РАО. В дальнейшем полученные результаты должны быть верифицированы как минимум на следующих экспериментальных данных:

- измерения температуры упаковки;
- радиохимического анализа радионуклидного состава образца известного происхождения;
- спектрометрических исследований упаковок с РАО.

На текущем этапе можно получить весьма приближенные данные о характеристиках остеклованных ВАО вследствие большого количества принятых допущений и упрощений. Существует по крайней мере три пути снижения получаемых погрешностей:

- последовательное уточнение параметров на всех этапах расчета (учет соотношения различных видов ОЯТ и их состава, учет других видов отходов, направляемых на остекловывание, уточнение коэффициентов перехода радионуклидов по стадиям и т. д.);
- верификация результатов расчетов по имеющимся данным аналитического контроля ВАО, подававшихся на остекловывание (перечень радионуклидов невелик и представлен в основном хорошо детектируемыми гамма-излучающими нуклидами);
- верификация результатов расчетов по новым данным анализа ОВАО с использованием современных аналитических методов и аппаратных возможностей.

Перечисленные направления характеризуются различными трудозатратами и финансовыми вложениями. Причем последнее направление потребует наибольшего вложения сил и средств (потребуется создать полноценную исследовательскую лабораторию с горячими камерами и дорогостоящим оборудованием, решить проблемы проведения измерения реальных пеналов с ОВАО, отбора проб стекла из бидонов и т. д.). Но при этом данный подход позволит получить по истечении значительного времени (не менее 5 лет) исчерпывающую информацию об объекте исследования. Отметим также перспективность применения т. н. метода радионуклидного вектора для анализа состава партий ОВАО [16].

В то же время в близкой перспективе предложенный расчетный метод, после проведения ряда уточнений, позволит получить весьма

достоверную информацию по большому массиву упаковок с ОВАО, приемлемую для обоснования безопасности ПГЗРО и корректировки (при необходимости) проектных решений.

Стоит отметить, что с учетом разработанного алгоритма видоизменяется перечень значимых радионуклидов. В рамках анализа технологической схемы переработки ОЯТ показано, что в ОВАО практически не попадает ^{129}I , значимый для долговременной безопасности. Однако, с другой стороны, перечень расширяется за счет включения в него ^{137}Cs и ^{90}Sr , знания о которых нужны для определения тепловыделения упаковки с РАО. Следующим шагом должен стать анализ влияния различного типа ОЯТ на конечный радионуклидный состав ОВАО.

Литература

1. Ремизов М. Б., Козлов П. В., Логунов М. В., Колтышев В. К., Корченкин К. К. Концептуальные и технические решения по созданию на «ПО «Маяк» установок остекловывания текущих и накопленных жидких ВАО // Вопросы радиационной безопасности. 2014. № 3. С. 17–25.
2. Постановление Правительства Российской Федерации от 19 октября 2012 года № 1069 «О критериях отнесения твердых, жидких и газообразных отходов к радиоактивным отходам, критериях отнесения радиоактивных отходов к особым радиоактивным отходам и к удаляемым радиоактивным отходам и критериях классификации удаляемых радиоактивных отходов».
3. Федеральный закон от 11 июля 2011 г. № 190-ФЗ «Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации».
4. Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения: НП-093-14: утв. приказом Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору от 15 декабря 2014 г. № 572.
5. Александрова Т. А., Блохин П. А., Самойлов А. А., Курындин А. В. Анализ данных по радионуклидному составу РАО в контексте оценки долговременной безопасности их захоронения // Радиоактивные отходы. 2018. № 2 (3). С. 44–51.
6. Самойлов А. А., Блохин П. А., Болдырев К. А., Уткин С. С., Семенов М. А., Коновалов В. Ю. Методический подход к определению радиологически значимых радионуклидов для оценки долговременной безопасности пунктов захоронения радиоактивных отходов // Вопросы радиационной безопасности. 2017. № 3. С. 21–31.
7. Блохин А. И., Блохин П. А., Сипачев И. В. Возможности расчетного кода TRACT для решения задач характеристики радионуклидного состава РАО и ОЯТ // Радиоактивные отходы. 2018. № 2 (3). С. 95–104.
8. Радиационные и теплофизические характеристики ОЯТ ВВЭР и РБМК: РБ 093-14: утв. приказом Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору от 26 марта 2014 г. № 119.
9. Колобашкин В. М., Рубцов П. М., Ружанский П. А., Сидоренко В. Д. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива: Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1983. 385 с.
10. Скачек М. А. Обращение с отработавшим ядерным топливом и радиоактивными отходами АЭС: учеб. пособие для вузов. М.: Издательский дом МЭИ, 2007. 448 с.
11. Копырин А. А., Карелин А. И., Карелин В. А. Технология производства и радиохимической переработки ядерного топлива: учеб. пособие для вузов. М.: ЗАО «Издательство Атомэнергоиздат», 2006. 576 с.
12. Лебедев В. М. Ядерный топливный цикл: Технологии, безопасность, экономика: М.: Энергоатомиздат, 2005. 316 с.
13. Никифоров А. С., Куличенко В. В., Жихарев М. И. Обезвреживание жидких радиоактивных отходов. М.: Энергоатомиздат, 1985. 184 с.
14. Буров К. В., Машкин А. Н., Корченкин К. К., Лукин С. А., Мелентьев А. Б., Вербицкий К. В., Ермолин В. С. Отбор и предварительный анализ проб оболочек и осадков от растворения ОЯТ МОКС БН-600 на заводе РТ-1// Тезисы докладов VIII Всероссийской конф. по радиохимии «Радиохимия-2015», 28 сентября–2 октября 2015 г. — Железногорск, 2015. С. 247.
15. Демин А. В., Матюнин Ю. И., Поляков А. С. Локализация элементов платиновой группы и технеция при отверждении жидких ВАО с получением фосфатных и боросиликатных материалов: реферат // Материалы 4-й ежегодной научно-технической конференции Ядерного общества. Нижний Новгород, ВНИИНМ, 1993.
16. ISO 21238-2007 Scaling factor method to determine the radioactivity of low- and intermediate-level waste packages generated at nuclear power plants.

Информация об авторах

Ремизов Михаил Борисович, к.т.н., начальник технологической лаборатории, Центральная заводская лаборатория, ФГУП «ПО «Маяк», (456780, г. Озерск Челябинской обл., ул. Ермолаева, 18), e-mail: mirem@yandex.ru.

Козлов Павел Васильевич, руководитель группы, Центральная заводская лаборатория, ФГУП «ПО «Маяк», (456780, г. Озерск Челябинской обл., ул. Ермолаева, 18), e-mail kozlov_pavel@inbox.ru.

Борисенко Владимир Павлович, руководитель группы, Центральная заводская лаборатория, ФГУП «ПО «Маяк», (456780, г. Озерск Челябинской обл., ул. Ермолаева, 18).

Дементьева Ирина Ивановна, инженер-технолог-химик-исследователь, Центральная заводская лаборатория, ФГУП «ПО «Маяк», (456780, г. Озерск Челябинской обл., ул. Ермолаева, 18), e-mail: iidementeva@yandex.ru.

Блохин Павел Анатольевич, младший научный сотрудник, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, (115191, Москва, Большая Тульская ул., 52), e-mail: blokhin@ibrae.ac.ru.

Самойлов Андрей Анатольевич, старший научный сотрудник. Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, (115191, Москва, Большая Тульская ул., 52), e-mail: samoylov@ibrae.ac.ru.

Библиографическое описание данной статьи

Ремизов М. Б., Козлов П. В., Борисенко В. П., Дементьева И. И., Блохин П. А., Самойлов А. А. Разработка алгоритма оценки радионуклидного состава остеклованных ВАО ФГУП «ПО «Маяк» для цели их безопасного захоронения // Радиоактивные отходы. — 2018. — № 3 (4). — С. 102—110.

DEVELOPMENT OF AN ALGORITHM FOR ESTIMATING THE RADIONUCLIDE COMPOSITION OF VITRIFIED HLW OF FSUE “PA “MAYAK” FOR THE PURPOSE OF THEIR SAFE DISPOSAL

Remizov M. B.¹, Kozlov P. V.^{1,2}, Borisenko V. P.¹,
Dementeva I. I.¹, Blokhin P. A.³, Samoylov A. A.³

¹FSUE “PO Mayak”, Ozyorsk, Chelyabinsk region, Russia

²OTI National Research Nuclear University MEPhI, Ozyorsk, Chelyabinsk region, Russia

³Nuclear Safety Institute (IBRAE RAN), Moscow, Russia

Article received 30 July 2018

A method for a calculation the activity of relevant radionuclides in vitrified RW Class 1 FSUE “PA Mayak” is developed. This method is supposed to be used for a safety case of radioactive waste disposal in geological formations. The algorithm is based on the calculated isotopic composition of spent nuclear fuel data, which was determined on the basis of its characteristics (initial enrichment at ²³⁵U, burnup and cooling time after irradiation), and parameters of technological a redistribution of radionuclides at materials streams at various stages of SNF reprocessing.

Key words: nuclear spent fuel, radioactive waste, alumophosphate glass, vitrification, relevant radionuclides.

References

1. Remizov M.B., Kozlov P.V., Logunov M.V., Kolyshchev V.K., Korchenkin K.K. Conceptual and Technical Solutions Related to Creation of Facilities for Current and Accumulated HLW Vitrification at the Mayak PA. *Radiation Safety Issues*, 2014, no. 3, pp. 17—25. (In Russian).
2. Postanovlenie Pravitel'stva Rossijskoj Federacii ot 19 oktyabrya 2012 goda No 1069 “O kriteriyah otneseniya tverdyh, zhidkih i gazoobraznyh othodov k radioaktivnym othodam, kriteriyah otneseniya radioaktivnyh othodov k osobym radioaktivnym othodam i k udalyaemym radioaktivnym othodam i kriteriyah klassifikacii udalyaemyh radioaktivnyh othodov”.
3. Federal'nyj zakon ot 11 iyulya 2011 g. No 190-FZ “Ob obrashchenii s radioaktivnymi othodami i o vnesenii izmenenij v otдел'nye zakonodatel'nye akty Rossijskoj Federacii”.
4. Kriterii priemlemosti radioaktivnyh othodov dlya zahoroneniya: NP-093-14: utv. prikazom

Federal'noj sluzhby po ehkologicheskomu, tekhnologicheskomu i atomnomu nadzoru ot 15 dekabrya 2014 g. No 572.

5. Alexandrova T. A., Blokhin P. A., Samoylov A. A., Kuryndin A. V. Analysis of the RW Radionuclide Composition in the Context of Long-Term Safety of its Disposal. *Radioactive Waste*, 2018, no. 2 (3), pp. 44–51. (In Russian).

6. Samoylov A. A., Blokhin P. A., Boldyrev K. A., Utkin S. S., Semenov M. A., Konovalov V. YU. Methodological Approach to the Identification of Radionuclides Radiologically Relevant for the Long-Term Safety Assessment of Radioactive Waste Deep Disposal Facilities. *Radiation Safety Issues*. 2017, no. 3, pp. 21–31. (In Russian).

7. Blokhin A. I., Blokhin P. A., Sipachev I. V. Capabilities code TRACT to solve problems of characterization radioactive waste and spent fuel. *Radioactive Waste*, 2018, no. 2 (3), pp. 95–104. (In Russian).

8. Radiacionnye i teplofizicheskie harakteristiki OYAT VVEHR i RBMK: RB 093-14: utv. prikazom Federal'noj sluzhby po ehkologicheskomu, tekhnologicheskomu i atomnomu nadzoru ot 26 marta 2014 g. No. 119.

9. Kolobashkin V. M., Rubcov P. M., Ruzhanskij P. A., Sidorenko V. D. *Radiacionnye harakteristiki obluchennogo yadernogo topliva*: Spravochnik. Moscow, Ehnergoatomizdat Publ., 1983. 385 p.

10. Skachek M. A. *Obrashchenie s otrabotavshim yadernym toplivom i radioaktivnymi othodami AEHS*:

ucheb. posobie dlya vuzov. Moscow, Izdatel'skij dom MEHI Publ., 2007. 448 p.

11. Kopyrin A. A., Karelin A. I., Karelin V. A. *Tekhnologiya proizvodstva i radiohimicheskoy pererabotki yadernogo topliva*: ucheb. posobie dlya vuzov. Moscow, Atomehnergoizdat Publ., 2006. 576 p.

12. Lebedev V. M. *Yadernyj toplivnyj cikl: Tekhnologii, bezopasnost', ehkonomika*. Moscow, Ehnergoatomizdat Publ., 2005. 316 p.

13. Nikiforov A. S., Kulichenko V. V., Zhiharev M. I. *Obezvrezhivanie zhidkih radioaktivnyh othodov*. Moscow, Ehnergoatomizdat Publ., 1985. 184 p.

14. Bugrov K. V., Mashkin A. N., Korchenkin K. K., Lukin S. A., Melent'ev A. B., Verbickij K. V., Ermolin V. S. Otkor i predvaritel'nyj analiz prob obolochek i osadkov ot rastvoreniya OYAT MOKS BN-600 na zavode RT-1. *Tezisy dokladov VIII Vserossiyskoy konf. po radiohimii "Radiohimiya-2015"*. Zheleznogorsk, 2015, p. 247.

15. Demin A. V., Matyunin Yu. I., Polyakov A. S. Lokalizaciya ehlementov platinovoj gruppy i tekhneciya pri otverzhenii zhidkih VAO s polucheniem fosfatnyh i borosilikatnyh materialov: referat. *Materialy 4 ezhegodnoj nauchno-tekhnicheskoy konferencii Yadernogo obshchestva*. Nizhnij Novgorod, VNIINM, 1993.

16. ISO 21238-2007 Scaling factor method to determine the radioactivity of low- and intermediate-level waste packages generated at nuclear power plants.

Information about the authors

Remizov Mikhail Borisovich, Ph.D in Science, Head of Radioactive Waste Management Laboratory, Central Plant Laboratory, FSUE "PA "Mayak", (18, Ermolaeva st., Ozyorsk, 456780, Russia), e-mail: mirem@yandex.ru.

Kozlov Pavel Vasilevich, head of group Central Plant Laboratory, FSUE "PA "Mayak" (18, Ermolaeva st., Ozyorsk, 456780, Russia), e-mail kozlov_pavel@inbox.ru.

Dementyeva Irina Ivanovna, engineer-technologist-chemist-researcher of Central Plant Laboratory, FSUE "PA "Mayak", (18, Ermolaeva st., Ozyorsk, 456780, Russia), e-mail: iidementeva@yandex.ru.

Borisenko Vladimir Pavlovich, head of group Central Plant Laboratory, FSUE "PA Mayak", (18, Ermolaeva st., Ozyorsk, 456780, Russia).

Blokhin Pavel Anatol'evich, junior researcher. Nuclear Safety Institute of Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tul'skaya st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: blokhin@ibrae.ac.ru.

Samoylov Andrey Anatol'evich, senior researcher, Nuclear Safety Institute of Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tul'skaya st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: samoylov@ibrae.ac.ru.

Bibliographic description

Remizov M. B., Kozlov P. V., Borisenko V. P., Dementeva I. I., Blokhin P. A., Samoylov A. A. Development of an Algorithm for Estimating the Radionuclide Composition of Vitrified HLW of FSUE "PA "Mayak" for the Purpose of Their Safe Disposal. *Radioactive Waste*, 2018, no. 3 (4), pp. 102–110. (In Russian).