

Технічні засоби для безпечного поводження з радіоактивними відходами, що містять тритій

Розглянуто можливість відокремленого безпечного зберігання радіоактивних відходів, що містять тритій, з використанням «пасивного» захисту з бетону, глини, силікагелю та додаткового інженерного бар'єра у вигляді захисного контейнера з полімерних матеріалів. Описано деякі властивості контейнера, виготовленого з двох полімерних матеріалів, для зберігання радіонуклідів тритію, відокремлених від інших радіонуклідів.

Ключові слова: радіоактивні відходи, тритій, пасивний захист, інженерні бар'єри, технічні засоби поводження з радіоактивними відходами, полімерний матеріал, двофазний контейнер.

И. А. Полякова

Технические средства для безопасного обращения с радиоактивными отходами, содержащими тритий

Рассмотрена возможность отдельного безопасного хранения радиоактивных отходов, содержащих тритий, с использованием «пассивной» защиты из бетона, глины, силикагеля и дополнительного инженерного барьера в виде защитного контейнера из полимерных материалов. Описаны некоторые свойства контейнера, изготовленного из двух полимеров, для хранения радионуклидов трития, отделенных от других радионуклидов.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, тритий, пассивная защита, инженерные барьеры, технические средства обращения с радиоактивными отходами, полимерный материал, двухфазный контейнер.

© І. О. Полякова, 2016

Проблема безпечного поводження з РАВ, що містять тритій (Т), є надзвичайно актуальною в Україні. Із застосуванням тритію в багатьох галузях науки і техніки та з використанням джерел іонізуючого випромінювання (ДІВ) у практичній діяльності утворюються радіоактивні відходи (РАВ), що містять його радіонукліди [1]. Радіонуклід тритію становить небезпеку, утворювану ізотопним обміном між радіонуклідом і воднем (Н), що входить до складу органічних структур [2], в разі вдихання його газових форм (НТ, DT, T₂), потрапляння тритієвих вод (НТО, DTO, T₂O) через органи травлення, надходження до організму людини через шкіру. Безпечний за умови зовнішнього опромінення людини, тритій, надходячи до організму, спричиняє різні ефекти на всіх рівнях біологічної організації. Ці ефекти (за поглинених доз близько 1 Гр) полягають у морфологічних змінах і порушеннях функцій ендокринних та кровоносних органів, судинної системи, печінки тощо.

Потрапивши до організму людини, тритій з імовірністю 0,71—0,85 укорінюється в структурі ДНК і заміщує 34—68 атомів водню в кожному ядрі клітини, спричиняючи радіаційно індуковані генетичні ефекти, обумовлені як опроміненням хромосом внаслідок β-розпаду тритію, так і ефектом його перетворення в ³He, за якого розривається вуглецевий зв'язок у хромосомі через утворення гелію [3]. Мутагенна ефективність тритію зростає в міру збільшення енергії трансмутації й залежить також від об'єму клітини, кількості та тривалості надходження тритію в організм, форми зв'язку трансмутації з генетичним матеріалом тощо [4—15].

Фізико-хімічні властивості й характеристики тритію свідчать про необхідність відокремлення його від інших радіонуклідів та спеціального зберігання.

Відокремленням радіонуклідів тритію від інших радіонуклідів можна досягти таких результатів:

зменшити вплив шкідливих чинників на персонал, що працює з ДІВ та РАВ (зовнішнє опромінення від γ-випромінюючих радіонуклідів відсутнє в разі відокремленого зберігання та виконання регламентних робіт);

імобілізувати та забезпечити довгострокове зберігання відокремлених довгоіснуючих радіонуклідів;

зменшити об'єми рідких радіоактивних відходів (РРВ) та скоротити час зняття з регулюючого контролю РАВ, що містять тритій, завдяки відсутності довгоіснуючих радіонуклідів;

уникнути додаткової небезпеки хімічного руйнування компонентів захисних оболонок контейнера, спричиненої взаємодією з пероксидом водню (H₂O₂), тобто радіолізом, що виникає внаслідок радіоактивного розпаду хімічних елементів у рідких сумішах з утворенням α-, β-, γ-частинок, які вилітають з атомних ядер з певною енергією і утворюють вільні радикали на шляху іонізації; довготривале руйнування захисних оболонок контейнера призведе до порушення його цілісності та виникнення радіаційної аварії з емісією РРВ в оточуюче середовище. Рідкі РАВ, що містять лише радіонукліди тритію, не є хімічно агресивними, радіоліз у цьому випадку буде незначним;

мінімізувати викиди тритію, використовуючи спеціальні захисні контейнери. Тритій, що виходить з РАВ у вигляді пари чи газу, може конденсуватись на частинках ґрунту та дифундувати в напрямку підземного водоносного горизонту. Коефіцієнт дифузії НТО в ґрунті за різними оцінками дорівнює 1,03·10⁻⁵ ... 3,0·10⁻⁶ см²/с [16].

Метою даної статті є обґрунтування впровадження у місцях тимчасового зберігання РАВ додаткових інженерних

бар'єрів як у вигляді двошарового захисного контейнера для тимчасового зберігання такого типу РАВ, так і у вигляді «пасивного» захисту — шарів бетону, глини, силікагелю.

Контейнери для зберігання РАВ, що містять тритій. Щоб запобігти надходженню радіонуклідів у довкілля, радіоактивні відходи тимчасово зберігаються в спеціальних контейнерах (компонент багатошарового захисту [17]). Простота виготовлення та експлуатації, технологічність, менша вартість контейнерів можуть бути забезпечені виготовленням їх з полімерних матеріалів, які, в свою чергу, забезпечать довготривале зберігання РАВ, різних за радіонуклідним складом, типами радіаційного випромінювання та агрегатним станом.

Поводження з РАВ із вмістом тритію ускладнюється специфікою фізико-хімічних властивостей і характеристик тритію.

Властивості спеціальних контейнерів (радіаційна стійкість, механічна стійкість, корозійна стійкість до радіаційних матеріалів та дезактивуючих сумішей, хімічна стійкість, дифузійні процеси, що відбуваються з рідинами і газами тощо) з полімерно-композитних матеріалів — двошарових на основі поліетилену $(-CH_2-CH_2-)_n$ та фторопласту $(-CF_2-CF_2-)_n$ — відповідатимуть технічним вимогам і зберігатимуться протягом усього терміну експлуатації контейнерів.

Габаритні розміри спеціального захисного контейнера у вигляді бочки з двошарового матеріалу наведено на рис. 1.

Конструкція двошарового контейнера унеможливує його виготовлення на загальнопромисловому обладнанні без застосування спеціальних технологій.

Товщини полімерно-композитних матеріалів розраховувалися виходячи з фізичних і хімічних характеристик тритію, насамперед радіаційних та дифузійних властивостей.

Залежності лінійних пробігів β -частинок R_β , см, від енергії E_β , MeV, у різних речовинах знайдені дослідним шляхом; для теоретичних розрахунків інформації про тритій недостатньо, оскільки цей елемент має дуже малу енергію, що виділяється під час розпаду.

Максимальний масовий пробіг β -частинок тритію в $(-CH_2-CH_2-)_n$

$$R_{\max \beta CH_2} = R_{\max \beta Al} \cdot \frac{Z_{Al}}{Z_{CH_2}} \cdot \frac{A_{Al}}{A_{CH_2}}, \quad (1)$$

де $R_{\max \beta Al}$ — масовий пробіг, kg/m^2 , β -частинок в алюмінії; Z_{Al} , A_{Al} — заряд ядра та атомна маса алюмінію; Z_{CH_2} , A_{CH_2} — зведені заряд ядра та атомна однієї структурної ланки поліетилену, відповідно.

Масовий пробіг β -частинок в алюмінії

$$R_{\max \beta Al} = 5,26 E_\beta = 5,26 \cdot 0,0186 = 0,097 \text{ кг/м}^2.$$

Значення Z_{Al} , A_{Al} візьмемо з таблиці Менделєєва, а Z_{CH_2} , A_{CH_2} розрахуємо: $Z_{Al} = 13$, $A_{Al} = 26,98$, $Z_{CH_2} = 2,6$, $A_{CH_2} = 4,6$.

Підставивши розрахункові та табличні значення до формули (1), отримуємо максимальний масовий пробіг β -частинок тритію в $(-CH_2-CH_2-)_n$:

$$R_{\max \beta CH_2} = 0,097 \cdot \frac{13}{2,6} \cdot \frac{26,98}{4,6} = 0,083 \text{ кг/м}^2.$$

Щоб визначити мінімальну товщину стінки контейнера, перерахуємо масовий максимальний пробіг β -частинок тритію в $(-CH_2-CH_2-)_n$ на лінійний пробіг.

Масовий пробіг частинки в речовині прямо пропорційний добутку густини речовини (в даному випадку — густини поліетилену $\rho = 910 \text{ кг/м}^3$) на лінійний пробіг. Отже, лінійний пробіг дорівнює $0,083 \cdot 910 = 9,12 \cdot 10^{-5} \text{ м} = 0,091 \text{ мм}$.

Товщина захисної стінки контейнера з $(-CH_2-CH_2-)_n$, тобто $0,091 \text{ мм}$, цілком достатня для повної зупинки β -частинок тритію.

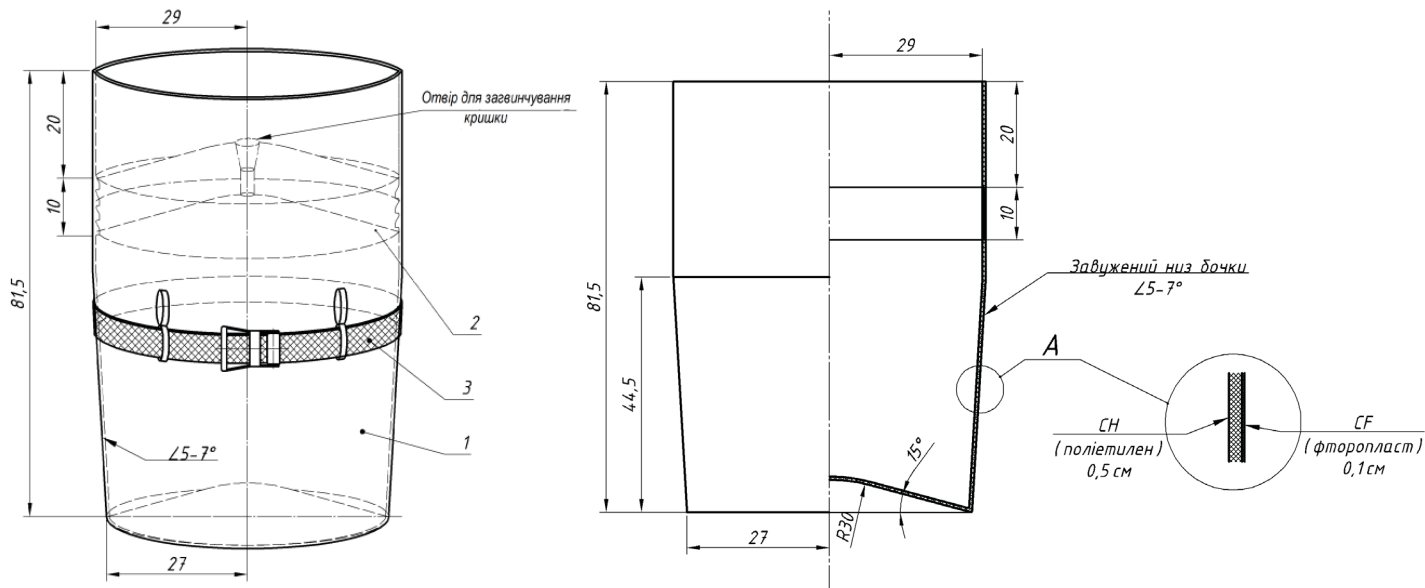


Рис. 1. Двошаровий захисний контейнер для зберігання РАВ, що містять тритій:

- 1 — поліетиленова захисна бочка з фторопластовим покриттям;
2 — кришка з різьом та механізмом для закручування по осі контейнера;
3 — підйомно-фіксуєчий ремінь із захватами для строп і храповим механізмом

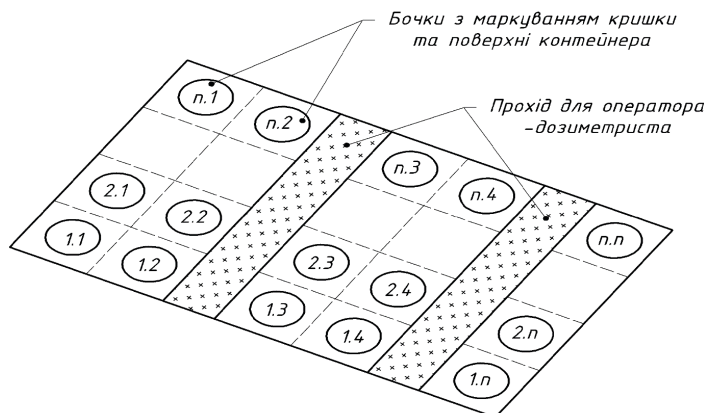


Рис. 2. План-схема розташування захисних контейнерів з РАВ, що містять тритій

Однак найважливішою в розрахунку товщини стінки контейнера характеристикою безпечного зберігання тритію є дифузійна проникність.

З урахуванням необхідності забезпечити механічну стійкість та убезпечити зберігання РАВ у контейнері, а також взявши до уваги технічні можливості виготовлення його на загальнопромисловому обладнанні, товщину стінки контейнера експериментально визначено за різних товщин поліетиленових плівок і пластин за допомогою серії лабораторних досліджень на базі Державної установи «Інститут геохімії оточуючого середовища» НАН України: товщина стінки контейнера має дорівнювати 0,5 см, а товщина покриття з фторопласту — 0,1 см, що повністю забезпечить виконання вимог, які висуваються до спеціальних контейнерів.

Приклад системи безпечного зберігання РАВ, що містять тритій. Особливу увагу потрібно звернути на інженерно-технічні характеристики місць зберігання рідких та твердих РАВ із вмістом тритію. За результатами дослідження причинно-наслідкового зв'язку виникнення та поширення радіаційних аварій на сховищах РАВ Державної корпорації «Українське державне об'єднання «Радон» з емісією тритію в навколишнє середовище [1, 18], виявилася потреба в розробці «пасивної» системи захисту на шляху розповсюдження радіоактивних матеріалів та додаткових інженерних бар'єрів. Таку систему розроблено автором статті в рамках дисертаційного дослідження на базі Державної установи «Інститут геохімії оточуючого середовища» НАН України.

План-схему розташування всередині будівлі (ангара) контейнерів з РАВ, що містять тритій, наведено на рис. 2.

Відповідно до схеми будівлі, зазначеної в технічному паспорті місць зберігання РАВ із вмістом тритію, всередині приміщення (ангара) розташовано у вигляді матриці захисні контейнери (бочки) з твердими (ТРВ) та рідкими (РРВ) радіоактивними відходами, що містять тритій. Кришки та самі бочки марковані, завдяки чому будь-який захисний контейнер безперешкодно може бути вилучений та досліджений окремо. Згідно з маркуванням кожний захисний контейнер внесено до бази даних РАВ, де зазначено нуклід, активність тритію, дату постановки на облік, тип відходів (рідкі або тверді), дату зняття з регулюючого контролю тощо.

За регламентом радіаційного контролю, оператор-дозиметрист візуально оглядає захисні контейнери з РАВ та в разі потреби вносить змінення в базу даних. Інформацію про виявлення радіаційної аварії у вигляді пошкодження оболонки бочки, неузгодженого позапланового відкривання кришки, зникнення бочки тощо

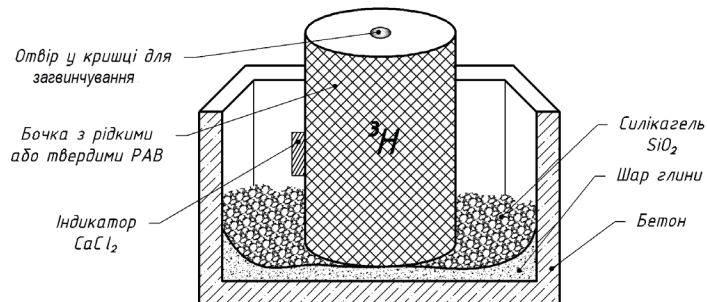


Рис. 3. Приклад системи «пасивного» захисту зберігання РАВ, що містять тритій

оператор-дозиметрист передає начальнику служби радіаційного захисту та до адміністрації підприємства.

Форма захисного контейнера (бочка) для рідких РАВ та твердих РАВ, що містять тритій, відповідає всім вимогам безпеки.

Як додаткові інженерні бар'єри на шляху можливого поширення РАВ із вмістом тритію (в разі виникнення радіаційних аварій) запропоновано використовувати бетон, глину, силікагель. Використання конструкційних матеріалів приповерхневих сховищ з бетону як єдиного інженерного бар'єра є неприпустимим через його фільтраційні властивості відносно води, яка конденсується в процесі нормальної експлуатації сховища. Застосування спеціальних захисних контейнерів з полімерних матеріалів унеможливить потраплення радіонуклідів тритію з конденсованою водою або у вигляді газу в довкілля.

Приклад системи безпечного зберігання радіоактивних відходів у твердій та рідкій формах наведено на рис. 3. Дно залізобетонної матриці, де зберігається захисний контейнер, торкретовано шаром глини та засипано силікагелем (SiO_2), що служить «пасивним» захистом на випадок виникнення радіаційної аварії з витоком РАВ із вмістом тритію. На боковій поверхні для визначення концентрації тритію в повітрі розташовано індикатор з CaCl_2 (може бути використано CuSO_4), який змінює свої характеристики, взаємодіючи з НТО.

Висновки

Захисний контейнер з двох полімерних матеріалів поєднує в собі такі властивості, як хімічна стійкість, підвищена стійкість до радіоактивного випромінювання, триботехнічні, антиадгезійні, електроізоляційні характеристики тощо, що дуже важливо для виробів, які експлуатуються в екстремальних умовах підвищених температур, агресивних середовищах, за підвищених рівнів радіаційного випромінювання та призначені для безпечного довготривалого зберігання радіоактивних матеріалів. Застосування полімерних матеріалів для виготовлення контейнерів забезпечить простоту виготовлення та експлуатації останніх, значно здешевить вартість контейнера.

Відокремлене зберігання РАВ з вмістом тритію зменшує вплив шкідливих чинників на персонал підприємств (категорія А опромінюваних осіб), де напружуються РАВ, та в процесі поводження з РАВ (зовнішнє опромінювання від γ -випромінюючих радіонуклідів відсутнє). Радіоліз від β -випромінювання тритію незначний, а отже, стінки контейнера не руйнуватимуться. Викиди тритію із спеціальних захисних контейнерів мінімізуються.

Запропонована система «пасивного» захисту для безпечного зберігання РАВ, що містять тритій, на шляху розповсюдження радіоактивних матеріалів і додаткових інженерних бар'єрів дасть змогу запобігти надходженню радіонуклідів у довкілля.

Список використаної літератури

1. Тритій у біосфері / Долін В. В., Пушкар'єв О. В., Шраменко І. Ф., Бобков В. М., Іщук О. О., Орлов О. О., Дікарев О. О., Ковалюх М. М., Скрипкін В. В., Главацька О. В., Приймаченко В. М., Долін В. В. (мол.), Стеценко Д. О., Тютюнник С. В., Коротких Д. І., Шевченко О. Л., Яковлев Є. О. — К. : Наук. думка, 2012. — 224 с.
2. Окись тритія / Ю. М. Штуккенберг, Т. И. Горячева, А. Г. Истомина; под ред. Ю. И. Москалева. — М. : Атомиздат, 1986. — 396 с.
3. Tislajar-Lentulisen G. Enhancement ratio for single and double strand breaks induced by tritium incorporated in DNA of cultured human TL cells. Impact on the transmutation effect / Tislajar-Lentulisen G., Hennenberg P., Feinendegen L. E. // Radiat. Res. — 1983. — № 94. — P. 257–267.
4. Baverstock K. F. Risk of radiation at low dose rates / Baverstock K. F., Papworth D., Vennart J. // Lancet. — 1981. — № 1(8217). — P. 430–433.
5. Bender M. A. Significance of Chromosome Abnormalities / Bender M. A. // Radiat. Carcinogenesis Epidemiology and Biological Significance. — New York : Raven Press, 1984. — P. 281–289.
6. Brackenbush L.W. Microdosimetric Basis for Exposure Limits / Brackenbush L. W., Brady L. A. // Health Physics. — 1988. — № 55. — P. 251–255.
7. Cahill D. F. Tritium Irradiation of Mammalian Fetus / Cahill D. F., Yuile C. L. // Radiation Research. — 1970. — № 44. — P. 727.
8. Goodhead D. T. Current Status of Ultrasoft X-ray and Track Structure Analysis as Tools for Testing and Developing Biophysical Models of Radiation Action / Goodhead D. T., Nikjoo H. // Radiat. Prot. Dos. — 1990. — № 1/4. — P. 343–352.
9. Hori T. A. Unusual Dose-Response of Chromosome Aberrations Induced in Human Lymphocytes by Very Low Dose Exposures to Tritium / Hori T. A., Nakai S. // Mutation Research. — 1978. — V. 50. — P. 101–110.
10. Ito T. Mutagenesis in Yeast Cells by Storage in Tritiated Water / Ito T., Kobayashi K. // Radiation Research. — 1978. — V. 76. — P. 139–144.
11. Komatsu K. Radiation Dose to Mouse Liver Cells from Ingestion of Tritiated Food or Water / Komatsu K., Okumura Y. // Health Physics. — 1990. — V. 58. — P. 625–629.
12. Laskey J. W. Some Effects of Lifetime Parental Exposure to Low Levels of Tritium on the F2 Generation / Laskey J. W. // Radiation Research. — 1973. — V. 56. — P. 171–179.
13. Lytovchenko A. S. Assessment of the potential ability of phyllosilicates to accumulate and retain tritium in structural OH-groups / Lytovchenko A. S., Pushkarev A. V., Samodurov V. P. // Минерал. журн. — 2005. — № 2. — P. 59–65.
14. Torok P. Effects of a Single Injection of Tritiated Water During Organogeny on the Prenatal and Postnatal Development of Mice / Torok P. // International Atomic Energy Agency Symposium. Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries. — Vienna, 1979. — V. 1. — 241 p.
15. Upton A. Prevention of Work-Related Injuries and Disease: Lessons from Experience with Ionizing Radiation / Upton A. // Amer. Jour. Indust. Med. — 1987. — P. 300–301.
16. Беловодский Л.Ф., Гаевой В.К., Гришмановский В.И. Тритий. — М. : Энергоатомиздат, 1985. — 247 с.
17. Полякова І. О. Оцінка захисних властивостей контейнера для зберігання відпрацьованих джерел іонізуючого випромінювання / Полякова І. О. // Зб. наук. праць Інституту геохімії навколишнього середовища. — 2013. — Вип. 22. — 179–187 р.
18. Кретинин А. А. Корректировка проекта минимизации влияния радиационной аварии на хранилищах радиоактивных отходов № 5, 6, 7 ПЗРО Киевского ГМСК на окружающую среду. — Т. 15 : Оценка воздействия на окружающую среду / Кретинин А. А., Животенко А. Н., Нечипоренко Л. Г. — Желтые Воды : НТЦ КОРО, 2005. — 93 с.

References

1. Dolin, V.V., Pushkarev, O.V., Shramenko, I.F., Bobkov, V.M., Ischuk, O.O., Orlov, O.O., Dikarev, O.O., Kovalykh, M.M., Skripkin, V.V., Glavatska, O.V., Prijmachenko, V.M., Dolin, V.V. (jr), Stetsenko, D.O., Tjutjunnyk, S.V., Korotkyh, D.I., Shevchenko, O.I., Yakovlev, E.O. (2012), "Tritium in the biosphere" [Trytii v biosferi], Kyiv, 224 p. (Ukr)
2. Shtukkenberg, Yu.M., Gorjacheva, T.I., Istomina, A.G., Moskaliyov, Yu.I. (1986), "Tritium Oxide" [Okis tritiia], Moscow, 396 p. (Rus)
3. Tislajar-Lentulisen, G., Hennenberg, P., Feinendegen, L.E. (1983), "Enhancement Ratio for Single and Double Strand Breaks Induced by Tritium Incorporated in DNA of Cultured Human TL Cells. Impact on the Transmutation Effect", Radiat. Res., No. 94, pp. 257–267.
4. Baverstock, K.F., Papworth, D., Vennart, J. (1981), "Risk of Radiation at Low Dose Rates", Lancet, No. 1(8217), pp. 430–433.
5. Bender, M.A. (1984), "Significance of Chromosome Abnormalities", Radiat. Carcinogenesis Epidemiology and Biological Significance, New York, Raven Press, pp. 281–289.
6. Brackenbush, L.W., Brady, L.A. (1988), "Microdosimetric Basis for Exposure Limits", Health Physics, No. 55, pp. 251–255.
7. Cahill, D.F., Yuile, C.L. (1970), "Tritium Irradiation of Mammalian Fetus", Radiation Research, No. 44, P. 727.
8. Goodhead, D.T., Nikjoo, H. (1990), Current Status of Ultrasoft X-ray and Track Structure Analysis as Tools for Testing and Developing Biophysical Models of Radiation Action, Radiat. Prot. Dos., No. 1/4, pp. 343–352.
9. Hori, T.A., Nakai, S. (1978), "Unusual Dose-Response of Chromosome Aberrations Induced in Human Lymphocytes by Very Low Dose Exposures to Tritium", Mutation Research, V. 50, pp. 101–110.
10. Ito, T., Kobayashi, K. (1978), "Mutagenesis in Yeast Cells by Storage in Tritiated Water", Radiation Research, V. 76, pp. 139–144.
11. Komatsu, K., Okumura, Y. (1990), "Radiation Dose to Mouse Liver Cells from Ingestion of Tritiated Food or Water", Health Physics, V. 58, pp. 625–629.
12. Laskey, J.W. (1973), "Some Effects of Lifetime Parental Exposure to Low Levels of Tritium on the F2 Generation", Radiation Research, V. 56, pp. 171–179.
13. Lytovchenko, A.S., Pushkarev, A.V., Samodurov, V.P. (2005), "Assessment of the Potential Ability of Phyllosilicates to Accumulate and Retain Tritium in Structural OH-Groups", Mineral Journal, 26, No. 2, pp. 59–65.
14. Torok, P. (1979), "Effects of a Single Injection of Tritiated Water During Organogeny on the Prenatal and Postnatal Development of Mice", International Atomic Energy Agency Symposium, Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries, Vienna, V. 1, P. 241.
15. Upton, A. (1987), "Prevention of Work-Related Injuries and Disease: Lessons from Experience with Ionizing Radiation", Amer. Jour. Indust. Med., pp. 300–301.
16. Belovodskii, L.F., Gaevoi, V.K., Grishmanovskiy, V.I. (1985), "Tritium" [Tritii], Moscow, 247 p.
17. Poliakova, I.O. (2013), "Evaluation of Protective Properties of Container for the Storage of Spent Radiation Sources" [Otsinka zakhysnykh vlastivostei konteynera dlia zberihannia vidpratsiovanukh dzherel ionizuiuchoho vyprominiuvannia], Scientific Papers of the Institute of Environmental Geochemistry, Edition 22, pp. 179–187. (Ukr)
18. Kretinin, A.A., Zhivotenko, A.N., Necheporenko, L.G. (2005), "Revision of the Project on Minimizing Impact of Radiation Accident at Radioactive Waste Storage Facilities No. 5, 6, 7 of Kyiv SISE on the Environment. Volume 15. Environmental Impact Assessment" [Korrektyrovka proekta minimizatsii vlianiia radiatsionnoi avarii na khranilishchakh radioaktivnykh otkhodov No. 5, 6, 7 PZRO Kievskogo GMSK na okruzhaiushchiuu sredu. T. 15. Otsenka vozdeistviia na okruzhaiushchiuu sredu], Zhovti Vody, 93 p. (Rus)

Отримано 17.03.2016.