

О возврате в Украину высокоактивных отходов от переработки отработанного ядерного топлива ВВЭР-440 Ривненской АЭС

Рассмотрены процессы формирования остеклованных высокоактивных отходов при переработке отработанного ядерного топлива на ПО «Маяк» (РФ). Показано, что применяемые технологии остекловывания приводят к формированию алюмофосфатной матрицы, вмещающей смешанный состав продуктов деления и трансурановых нуклидов, которые образовались в отработанном ядерном топливе энергетических реакторов ВВЭР-440, реакторов на быстрых нейтронах, исследовательских реакторов и ядерных энергетических установок атомных подводных лодок.

Ключевые слова: отработанное ядерное топливо, высокоактивные отходы, продукты деления, остекловывание.

Г. В. Лисиченко, Ю. О. Ольховик

Щодо повернення в Україну високоактивних відходів від переробки відпрацьованого ядерного палива ВВЕР-440 Рівненської АЕС

Розглянуто процеси формування остеклованих високоактивних відходів від переробки відпрацьованого ядерного палива на ВО «Маяк» (РФ). Показано, що технології остекловування призводять до формування алюмофосфатної матриці, яка містить змішаний склад продуктів поділу і трансуранових нуклідів, що утворились у відпрацьованому ядерному паливі енергетичних реакторів ВВЕР-440, реакторів на швидких нейтронах, дослідницьких реакторів і ядерних енергетичних установок атомних підводних човнів.

Ключові слова: відпрацьоване ядерне паливо, високоактивні відходи, продукти поділу, остекловування.

© Г. В. Лисиченко, Ю. А. Ольховик, 2014

Ривненская АЭС (РАЭС) с 1986 по 2008 год осуществляла вывоз отработанных тепловыделяющих сборок (ОТВС) водо-водяных реакторов ВВЭР-440 на переработку на ФГУП «ПО «Маяк»». Всего в период эксплуатации РАЭС в рамках Советского Союза было вывезено около 172,5 т отработанного ядерного топлива (ОЯТ) в пересчете на «тяжелый металл»* [1]. Все продукты, возникавшие при переработке ОЯТ — рафинированный уран, плутоний и высокоактивные отходы, — оставались в ответственности ПО «Маяк».

С обретением Украиной независимости, ОТВС ВВЭР-440 вывозились и перерабатывались по контрактам РАЭС и НАЭК «Энергоатом» (с украинской стороны) и хозяйствующими объектами Российской Федерации.

Всего с 1993 по 2008 год из Украины на ФГУП «ПО «Маяк»» было вывезено почти 3000 ОТВС, содержащих более 300 т «тяжелого металла». В этот же период на ПО «Маяк» поступило на переработку 331,5 т «тяжелого металла» в составе ОЯТ реакторов ВВЭР, которые эксплуатировались на АЭС Болгарии, Финляндии, Словакии и Венгрии [1].

Начало поставок в Украину остеклованных высокоактивных отходов (ВАО), образовавшихся при переработке ОЯТ ВВЭР-440 Ривненской АЭС, не определено, однако действующей Общегосударственной целевой экологической программой по обращению с радиоактивными отходами (приложение 2, задача 3) завершение строительства приповерхностного хранилища для размещения остеклованных ВАО от переработки ОЯТ ВВЭР-440 предусматривалось в 2010 году [2]. Эта же задача включена в обновленную Общегосударственную программу, проект которой проходит согласование в установленном порядке и предполагает ввод хранилища в эксплуатацию в 2016 году.

Известно, что радиохимическое производство химического комбината «Маяк» создано в 1948 году с целью наработки оружейного плутония. Со временем отрасль столкнулась с задачей безопасного обращения с энергетическим ОЯТ. Генеральным направлением была принята стратегия замыкания ядерно-топливного цикла (ЯТЦ), в результате чего было создано производство по переработке (регенерации) ОЯТ энергетических реакторов, а также транспортных и исследовательских реакторов [3].

Технология завода РТ-1 (регенерация топлива, рис. 1) использует многие апробированные в мировой практике процессы (промежуточное хранение ОЯТ под водой, механическое измельчение ОТВС, извлечение ценных элементов с помощью пурекс-процесса, или процесса жидкостной экстракции, остекловывание жидких высокоактивных отходов), но имеет и ряд особенностей, среди которых, прежде всего, — широкий спектр перерабатываемого облученного ядерного топлива:

- энергетических реакторов (легководных ВВЭР-440 и на быстрых нейтронах БН-600);
- реакторов транспортных судовых установок ледокольного флота и ВМФ;
- промышленных реакторов;
- исследовательских реакторов.

К особенностям технологии РТ-1 с точки зрения формирования остеклованных ВАО, подлежащих возврату в Украину, относятся:

универсальность технологических цепочек, позволяющая реализовывать схемы *совместной переработки разных ОТВС*;

* Общепринятая единица измерения количества ОЯТ, отражающая общее количество содержащихся в ОЯТ изотопов урана и плутония, — тонны тяжелого металла.

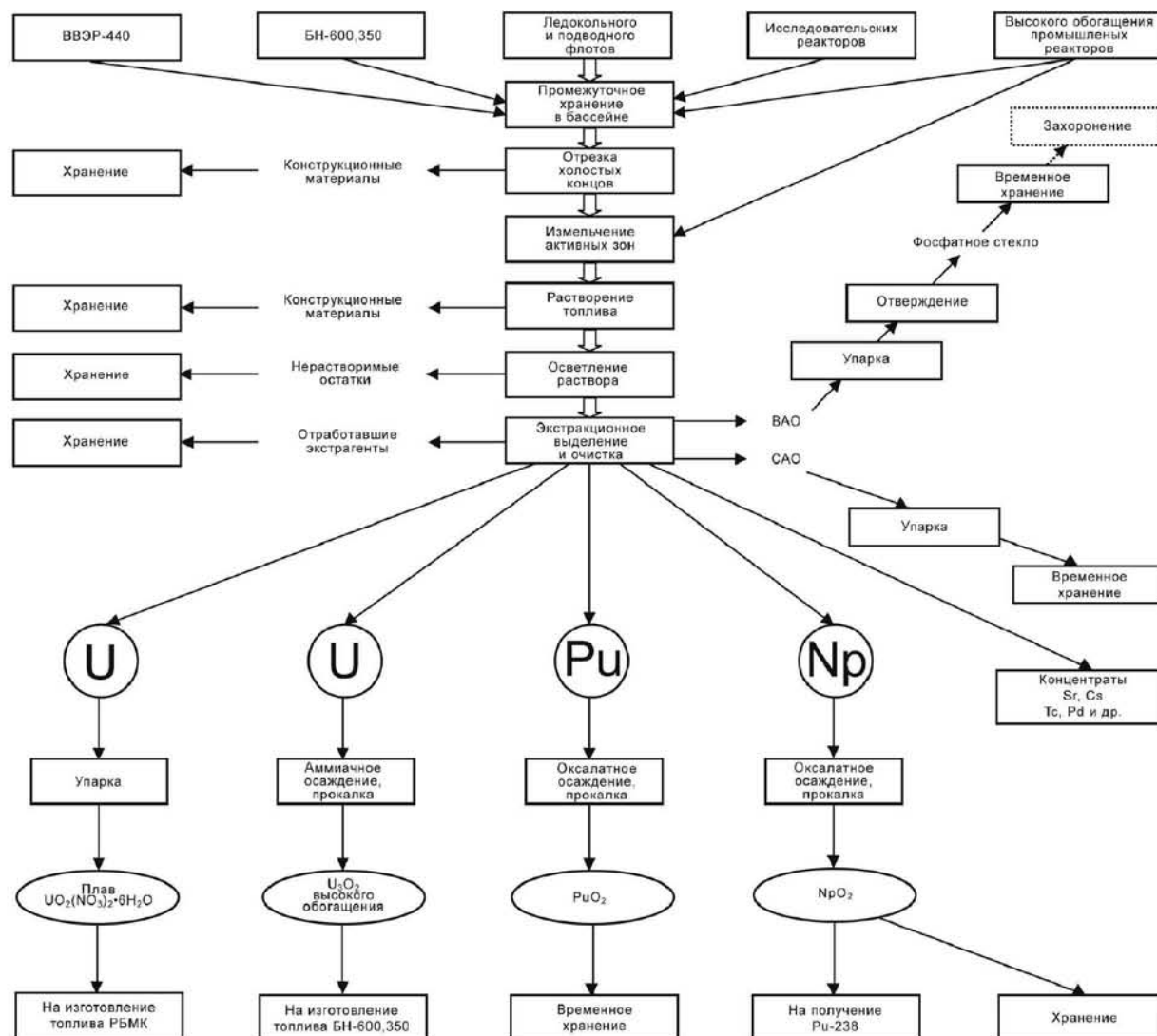


Рис. 1. Технологическая схема [3]

получение уранового регенерата как товарной продукции с целевым обогащением по урану-235 путём смешения урана от переработки различных видов ОЯТ.

Целевыми продуктами переработки ОЯТ являются:

- гексагидрат уранилнитрата с номинальным обогащением по урану-235 до 3,1 % для изготовления топлива реакторов РБМК;
- закись-окись урана с обогащением по урану-235 от 10 до 76 % для изготовления топлива быстрых реакторов;
- диоксид плутония, который планируется для производства МОКС-топлива для быстрых реакторов.

При этом о возврате в Украину (или компенсации стоимости) указанных продуктов переработки партий ОЯТ, отправленных с 1993 по 2008 год, в контрактах на вывоз и переработку ОЯТ ВВЭР-440 Ривненской АЭС не упоминается. Приведенная на рис. 1 технологическая схема не предусматривает выделение регенерата урана и диоксида плутония, извлекаемых от переработки только ОЯТ ВВЭР-440.

Выбор технологии включения радионуклидов в стекло не случаен. Еще в 1951 году было впервые предложено включать окислы продуктов деления в стекловидную матрицу, так как стекло, будучи нестехиометрическим соединением, при нагревании способно растворять, а при последующем охлаждении — прочно удерживать сложную смесь продуктов деления. Получаемый продукт изотропен и обладает высокой химической и радиационной стойкостью [4].

В отличие от других стран, выполняющих остекловывание ВАО, в России используется в качестве матрицы натрий-алюмофосфатное стекло, что связано с особенностями химического состава исходного ОЯТ, подвергаемого переработке (табл. 1).

Установка по остекловыванию концентратов жидких радиоактивных отходов (ЖРО) производительностью 500 л/ч эксплуатируется в ПО «Маяк» с 1987 года. Технология остекловывания основана на включении концентратов ЖРО в фосфатное стекло, при этом на 1 т

Таблица 1. Состав стекол с ядерными отходами, %

Страна	SiO ₂	P ₂ O ₅	B ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	CaO	MgO	Na ₂ O	Другие, включая продукты деления и актиниды
Франция (R7/T7)	47,2	—	14,9	4,4	4,1	—	10,6	18,8
США (DWPF)	49,8	—	8,0	4,0	1,0	1,4	8,7	27,1
Великобритания (отходы Magnox)	47,2	—	16,9	4,8	—	5,3	8,4	17,4
Германия и Бельгия (PAMELA)	52,7	—	13,2	2,7	4,6	2,2	5,9	18,7
Россия, ПО «Маяк» (высокоактивные отходы)	—	52,0	—	19,0	—	—	21,2	7,8

«тяжелого металла» ОЯТ образуется 0,6—0,65 м³ стекла плотностью 2650±50 кг/м³. Физико-химические характеристики фосфатного стекла:

Объемная активность, не более 6,29·10¹² Бк/кг
 Тепловыделение стекла
 в бидоне 200 л, не более 0,55 кВт
 Выщелачивание по отношению
 к Na, Cs, Sr 1·10⁻⁵ г/(см²·сут)
 Массовое содержание основных компонентов:
 оксидов натрия и других
 одновалентных металлов 24±2 %
 оксида алюминия и других
 металлов с валентностью +2 и более 21±2 %
 оксида фосфора 55±2 %

Обращает на себя внимание низкая степень включения продуктов деления в фосфатное стекло, формируемое на РТ-1 ПО «Маяк» (см. табл. 1), хотя стеклообразная система Na₂O—Al₂O₃—P₂O₅ обладает гораздо большей емкостью включения продуктов деления [5]. Объяснение этому феномену неэффективного использования свойств матрицы следует искать в технологии приготовления стекла — в качестве стеклообразующего компонента добавляется только фосфорная кислота, т. е. алюминий в выпариваемом растворе находится в достаточном количестве, и продукты деления распределяются в том объеме стекла, которое определяется количеством алюминия. Алюмофосфатное стекло выбрано именно для того, чтобы совместно остекловывать ВАО от переработки как ОЯТ ВВЭР-440, так и ОЯТ атомных подводных лодок (АПЛ) и исследовательских реакторов, которое изготовливали с использованием алюминиевых сплавов. Еще одним источником алюминия могут быть

блоки облученного урана, выгруженного из промышленных реакторов АДЭ. При экстракции урана и плутония из азотнокислых растворов образуются жидкие высокоактивные отходы с высоким содержанием алюминия. Эти растворы объединяются с жидкими РАО с высоким содержанием натрия, которые образуются при очистке экстрагента (рис. 2).

Традиционный метод очистки экстрагента от продуктов радиолитиза и их соединений с продуктами деления заключается в промывке его водными растворами карбоната натрия, гидроокисью натрия или их смесью. Недостатком метода является образование значительного количества солесодержащих среднеактивных отходов, которые могут содержать и α-активные изотопы [6].

Таким образом, технология остекловывания на ПО «Маяк» основана на использовании в качестве стеклообразующих компонентов соединений натрия и алюминия, содержащихся в отходах, которые образуются на разных стадиях переработки ОЯТ. Фактически происходит иммобилизация нерадиоактивных макрокомпонентов отходов с включением в стекло продуктов деления, что приводит к незначительному наполнению стекла продуктами деления и к образованию больших объемов остеклованных ВАО — около 1,6 т на 1 т облученного урана.

Известно, что в первом поколении ядерных энергетических установок (ЯЭУ) АПЛ использовались такие типы активных зон, как ВМ-А, ВМ-АЦ, ВМ-1А, ВМ-1АМ, ВМ-2А, ВМ-2Аг и др. В качестве топливной композиции применялся состав UO₂ + UAl₃, хорошо зарекомендовавший себя и применявшийся впоследствии в активных зонах реакторов следующих поколений [7].

Хотя перечень радионуклидов, образующихся в водородных реакторах различных типов, совпадает, особенности ядерных процессов, протекающих в реакторах с низким и высоким содержанием урана-235, неизбежно

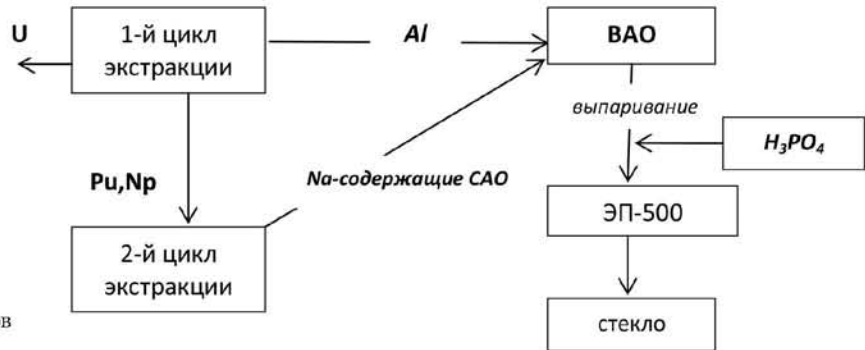


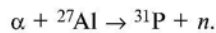
Рис. 2. Источники макрокомпонентов стекла на РТ-1

приводят к различиям в образовании и накоплении в ОЯТ в первую очередь трансурановых радионуклидов.

Начальный нуклидный состав топлива реакторов ВВЭР-440 и реакторов АПЛ сильно различается: обогащение по урану-235 в твэлах ВВЭР составляет 3–5 %, тогда как по мере роста мощности реакторов АПЛ менялось и обогащение ядерного топлива: от 6, 7,5 и 21 % в первом поколении до 36–45 % во втором и третьем поколениях. Степень обогащения сильно влияет на накопление в топливе нуклидов — эмиттеров нейтронов. Еще одна причина различий — применение алюминия в качестве матричного материала в твэлах реакторов АПЛ. Сечение реакции (α , n) на алюминии относительно велико и в 7 раз превышает этот параметр для кислорода [8]. Выход нейтронов на 10^6 частиц с энергией 5,2 Мэв при (α , n)-реакциях составляет:

Элемент	Ве	С	О	Ф	АI
Выход нейтронов	65±5	0,078±0,004	0,0059±0,002	5,9±0,6	0,41±0,01

Тяжелые ядра испытывают распады с испусканием α -частиц, под действием которых происходят реакции на легких ядрах, имеющих низкий кулоновский барьер отражения. Для алюминия указанная реакция выглядит так:



Образующиеся нейтроны участвуют в формировании цепочки изотопов трансурановых элементов по реакциям ${}^{238}\text{U} + n \rightarrow {}^{239}\text{U} \rightarrow {}^{239}\text{Np} \rightarrow {}^{239}\text{Pu} + n \rightarrow {}^{240}\text{Pu} + n \rightarrow {}^{241}\text{Pu} + n \rightarrow {}^{242}\text{Pu} + n \rightarrow {}^{243}\text{Pu} \rightarrow {}^{243}\text{Am} + n \rightarrow {}^{244}\text{Am} \rightarrow {}^{244}\text{Cm}$ и вносят дополнительный вклад в различие изотопного состава трансурановых элементов в соответствующих видах ОЯТ.

При растворении в азотной кислоте ОЯТ энергетических реакторов, исследовательских реакторов и ЯЭУ АПЛ происходит смещение осколочных нуклидов (как стабильных, так и радиоактивных) и накопленных в топливе изотопов трансурановых элементов. Также вносит свой вклад в формирование смеси нуклидов переработка ОЯТ реакторов БН, для которого характерно намного более высокое содержание плутония, чем для ОЯТ легководных реакторов. Основная масса осколочных нуклидов и остатки неизвлеченных при экстракции изотопов урана, нептуния и плутония концентрируются в остеклованных ВАО, радионуклидный состав которых не может быть идентифицирован с каким-либо конкретным источником ОЯТ.

Таким образом, в формировании остеклованных ВАО при переработке ОЯТ ВВЭР-440 Ривненской АЭС неизбежно участвуют другие источники радионуклидов — ОЯТ АПЛ, исследовательских и промышленных реакторов, что приводит к невозможности изготовления и последующей отправки в Украину отходов, полученных в результате переработки конкретных партий поставленного на ПО «Маяк» отработанного топлива РАЭС. В остеклованных ВАО находятся осколочные и трансурановые радионуклиды, образование которых не связано с эксплуатацией реакторов ВВЭР-440 Ривненской АЭС.

Это означает, что ПО «Маяк» не имеет возможности обеспечить возврат в Украину остеклованных радиоактивных отходов, образовавшихся в результате переработки отработанного топлива только ВВЭР-440 Ривненской АЭС, ввезенного в РФ по контрактам с НАЭК «Энергоатом». При этом Украина не может принять «чужие» РАО, поскольку

согласно Закону Украины [9] разрешается ввоз на территорию государства только тех РАО, которые образовались при переработке ОЯТ реакторов именно АЭС Украины.

В НАЭК «Энергоатом» разработана и введена «Методика расчета количества высокоактивных отходов, возвращаемых Украине после технологического хранения и переработки партии ОТВС ВВЭР-440» СОУ-Н ЯЕК 1.027:2010 (далее — Методика). Методика основана на так называемой радиационной эквивалентности активности вывезенных ОТВС и активности возвращаемых продуктов переработки с учетом природного распада радионуклидов, поскольку «... получить кондиционированные РАО, которые по относительному радионуклидному составу и полному содержанию радионуклидов в точности отвечают конкретной партии ОТВС, ...невозможно» [10]. В качестве критерия эквивалентности принимается следующее положение: «Радиоактивные отходы с различным радионуклидным составом можно считать эквивалентными, если влияние этих отходов на человека будет одинаковым на всех этапах обращения с ними» [10].

Однако задекларированный в Методике принцип равенства эквивалентов активности, допускающий возможность ввоза на территорию Украины чужих ВАО, не соответствует положениям статьи 53 «Трансграничная перевозка радиоактивных отходов» Закона Украины [9], которая запрещает ввоз на территорию Украины РАО из других государств, кроме тех РАО, которые образуются в результате услуг по переработке ОЯТ АЭС Украины.

Наиболее общим методом установления эквивалентности отходов предложен метод мультифакторного анализа с использованием различных радиологических и ценовых факторов, а также весовых коэффициентов, учитывающих важность этих факторов [11]. В то же время понятие эквивалентности активности радионуклидов в контексте оценки долговременной безопасности захоронения в законодательных и нормативных документах Украины отсутствует и правомочность его применения в Методике вызывает сомнения.

Согласно законодательству Украины ВАО относятся к долгоживущим РАО и подлежат захоронению исключительно в геологических формациях [12]. Ввиду отсутствия в Украине геологического хранилища предлагаемые к возврату остеклованные ВАО предполагается разместить на долговременное хранение (до 100 лет) в поверхностное хранилище на территории зоны отчуждения [2]. Стоимость строительства хранилища оценивается в 370 млн грн.

В то же время Украина может избежать этих затрат, если учесть как чужеродное происхождение остеклованных ВАО, так и стоимость ценных продуктов переработки, полученных из ОЯТ ВВЭР-440 Ривненской АЭС и использованных ПО «Маяк». Выходом из ситуации могло бы быть принятие на межправительственном уровне решения об оставлении в РФ остеклованных ВАО в качестве компенсации стоимости ценных продуктов (регенерированный уран, нептуний и плутоний), извлеченных из ОЯТ Ривненской АЭС и использованных в Российской Федерации.

Выводы

1. Остеклованные ВАО от переработки ОЯТ на РТ-1 ПО «Маяк», предполагаемые к поставке в Украину, включают в себя продукты деления и трансурановые нуклиды, не связанные с выгоранием ядерного топлива

при эксплуатации ВВЭР-440 РАЭС. ПО «Маяк» не может изготовить остеклованные ВАО, сформированные только от переработки поставленных партий ОЯТ ВВЭР-440 Ривненской АЭС.

2. Ввиду особенностей переработки ОЯТ и остекловывания ВАО на РТ-1 степень включения продуктов деления в алюмофосфатное стекло незначительна, что приводит к образованию большого объема отходов.

3. Согласно действующему законодательству, Украина не может принять на хранение и последующее захоронение ВАО, образование которых не связано с предоставлением услуг на переработку ОЯТ ВВЭР-440 Ривненской АЭС.

4. Проблема возврата остеклованных ВАО в Украину требует принятия решений на межправительственном уровне.

5. Проблема по обращению с продуктами переработки ОЯТ ВВЭР-440 Ривненской АЭС между заказчиком и предприятием-переработчиком должна быть урегулирована по схеме, аналогичной принятой схеме обращения с продуктами переработки ОЯТ ВВЭР-440 АЭС стран Восточной Европы, — путём «нулевого возврата» продуктов переработки в страну-поставщик ОЯТ.

Список использованной литературы

1. Анализ организации и эффективности работ по выполнению действующих международных обязательств Российской Федерации, связанных с ввозом, хранением и переработкой облученного ядерного топлива зарубежных ядерных реакторов : Подготовлен Правительством Российской Федерации во исполнение поручения Президента Российской Федерации от 14.02.2002 года № Пр-251. — [Электронный ресурс]. — Режим доступа: // <http://nuclearno.ru/text.asp?3317>.
2. Про Загальнодержавну цільову екологічну програму поводження з радіоактивними відходами : Закон України від 17.09.2008 № 516 // Відомості Верховної Ради України (ВВР). — 2009. — № 5. — Ст. 8.
3. Горн В. Ф. Перспективы развития технологий завода РТ-1 / В. Ф. Горн, С. Н. Кириллов, Д. Н. Колупаев // Безопасность окружающей среды. — 2010. — № 1. — С. 29—33.
4. Ожован М. И. Применение стекол при иммобилизации радиоактивных отходов / М. И. Ожован, П. П. Полуэктов // Безопасность окружающей среды. — 2010. — № 1. — С. 112—115.
5. Сравнение физико-химических свойств матриц для иммобилизации радиоактивных отходов и технологических процессов их получения / Б. Г. Ершов, А. А. Минаев, И. Б. Попов, Т. К. Юрик, Д. Г. Кузнецов, В. В. Иванов, С. И. Ровный, В. И. Гужавин // Вопросы радиационной безопасности. — 2005. — № 1. — С. 13—22.
6. Радиохимическая переработка ядерного топлива. [Электронный ресурс]. — Режим доступа: http://profbeckman.narod.ru/RH0.files/26_6.pdf
7. Лебедев В. А. Ядерная энергетика и атомный подводный флот. [Электронный ресурс]. — Режим доступа: <http://www.proatom.ru/modules.php?name=News&file=print&sid=1813>
8. Основы теории экспериментов на подкритических сборках со стационарным нейтронным полем. [Электронный ресурс]. — Режим доступа: <http://vlr.mephi.ru/labs/theory/lr-4.pdf>
9. Про використання ядерної енергії та радіаційну безпеку : Закон України від 08.02.1995 № 40/95 // Відомості Верховної Ради України (ВВР). — 1995. — № 12. — Ст. 8.

10. Методика расчета количества высокоактивных отходов, возвращаемых Украине после технологического хранения и переработки партии ОТВС ВВЭР-440 : СОУ-Н ЯЕК 1.027:2010. — К.: Минтопэнерго, 2010. — 61 с.

11. Elements for assessment the equivalence between radioactive waste materials. Final report / Titsley J. G., Mobbs S. F., Carey A. D. and Penfold J. S. S. — Luxembourg : Commission of the European Communities, 1996. — 84 p.

12. Про поводження з радіоактивними відходами : Закон України від 30.06.1995 № 256/95-ВР // Відомості Верховної Ради України (ВВР). — 1995. — № 27. — Ст. 198.

References

1. The analysis of the organization and efficiency of works on implementation of existing international obligations of the Russian Federation connected with import, storage and processing of the irradiated nuclear fuel of foreign nuclear reactors: It is prepared by the Government of the Russian Federation in pursuance of an order of the President of the Russian Federation of 14.02.2002 No. Pr-251. [Electronic resource]. — Mode of access: <http://nuclearno.ru/text.asp?3317>
2. On the State Environmental Program for Radioactive Waste : Law of Ukraine, dated 17 September 2008 N 516. (Ukr) // Bulletin of the Verkhovna Rada of Ukraine (BVR). — 2009. — № 5. — Art. 8.
3. Horn V. F., Kirillov S. N., Kolupayev D. N. Prospect of development of technologies of RT-1 plant // Safety of environment. — 2010. — No. 1. — P. 29—33. (Rus).
4. Ozhovan M. I., Poluektov P. P. Use of glasses at an immobilization of radioactive waste // Safety of environment. — 2010. — No. 1. — P. 112—115. (Rus).
5. Ershov B. G., Minaev A. A., Popov I. B., Yurik T. K., Kuznetsov D. G., Ivanov V. V., Rovnyy S. I., Guzhavin V. I. Comparison of physical and chemical properties of matrixes for an immobilization of radioactive waste and technological processes of their receiving // Questions of radiation safety. — 2005. — No. 1. — P. 13—22. (Rus).
6. Radiochemical nuclear fuel reprocessing. [Electronic resource]. — Mode of access: http://profbeckman.narod.ru/RH0.files/26_6.pdf
7. Lebedev V. A. Nuclear power and nuclear underwater fleet. [Electronic resource]. — Mode of access: <http://www.proatom.ru/modules.php?name=News&file=print&sid=1813> (Rus).
8. Bases of the theory of experiments on subcritical assemblies with a stationary neutron field. [Electronic resource]. — Mode of access: <http://vlr.mephi.ru/labs/theory/lr-4.pdf>. (Rus).
9. On Nuclear Energy and Radiation Safety : Law of Ukraine on February 8, 1995, N 40/95-VR // Bulletin of the Verkhovna Rada of Ukraine (BVR). — 1995. — № 12. — Art. 8. (Ukr).
10. Method of calculation of quantity of the highly level waste returned to Ukraine after technological storage and processing of OTVS VVER-440 party : SOU-N YaEK 1.027:2010. — Kiev : Ministry of Fuel and Energy, 2010. — 61 p. (Ukr).
11. Elements for assessment the equivalence between radioactive waste materials. Final report / Titsley J. G., Mobbs S. F., Carey A. D. and Penfold J. S. S. — Luxembourg : Commission of the European Communities, 1996. — 84 p.
12. On Radioactive Waste Management : The Law of Ukraine on June 30, 1995 № 256/95-VR // Bulletin of the Verkhovna Rada of Ukraine (BVR). — 1995. — № 27. — Art. 198.

Получено 07.04.2014.