

<https://doi.org/10.15407/10.15407/geotech2021.33.100>

УДК 621.039.546

**Рудичев Є.В., Ольховик Ю.О.**

**Рудичев Є.В.**, к.ф.-м.н., с.н.с., Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут», Харківський національний університет ім. В.Н. Каразіна, ORCID:0000-0002-1453-2062, rudychew@kipt.kharkov.ua

**Ольховик Ю.О.**, д.т.н., завідувач відділу, Державна установа «Інститут геохімії навколишнього середовища Національної академії наук України», ORCID:0000-0001-5653-2370, yolkhovyk@ukr.net

## РАДІАЦІЙНО-ЗАХИСНІ ВЛАСТИВОСТІ УПАКОВКИ ДЛЯ КОНДИЦІОНУВАННЯ СОЛЬОВОГО ПЛАВУ АЕС УКРАЇНИ

З огляду на невирішеність проблеми поводження з рідкими радіоактивними відходами АЕС України з реакторами ВВЕР зазначено, що сучасний рівень наукових доробок дає підстави для створення технології захоронення сольового плаву (СП) без його переробки. Оскільки потужність експозиційної дози (ПЕД) для бочок із СП може помітно перевищувати значення 5 мЗв/год, розглянуто радіаційно-захисні властивості гіпотетичної упаковки для кондиціонування сольового плаву, утвореної шляхом розміщення радіоактивних відходів (РАВ) у залізобетонному контейнері та їх іммобілізації. Моделювання потужності експозиційної дози здійснювалося за допомогою програмного комплексу RHITS (Японія). Розрахунки виконано для упаковки у складі 4 бочок із СП, розміщених в універсальному захисному контейнері (УЗЗК). Розглянуто варіанти із різними радіонуклідним складом СП, обумовленим тривалістю витримки АВ – від 100%  $^{137}\text{Cs}$  до  $^{137}\text{Cs}$ -65%,  $^{134}\text{Cs}$ -15%,  $^{60}\text{Co}$ -20%. Питомою концентрацією радіонуклідів приймалася від  $5\text{E}7$  до  $1\text{E}9$  Бк/кг. Також розглянуто 2 варіанти заповнення пустот: перший варіант передбачає заповнення пустот продуктом кондиціонування кубового залишку у вигляді лужного цементу із соленаповненням 25%, тоді як другий варіант включення радіоактивних солей у лужний цемент не передбачав. Виконані розрахунки показали прийнятність запропонованого кондиціонування сольового плаву шляхом формування упаковки у складі 4 контейнерів типу КРО-200, універсального залізобетонного контейнера УЗЗК ТУ У 29.2-26444970-005 і заповнення пустот продуктом кондиціонування кубового залишку у вигляді лужного цементу із соленаповненням 25% з точки зору радіаційно-захисних властивостей. Необхідною умовою для реалізації практичних заходів з кондиціонування сольового плаву, накопиченого в сховищах АЕС з реакторами ВВЕР, з наступною передачею на захоронення стали відповідні зміни у ОСПУ-2005 у частині класифікації СП і віднесення його до твердих РАВ

**Ключові слова:** сольовий плав, кондиціонування, лужний цемент, потужність експозиційної дози, упаковка для захоронення.

Ситуація, що склалася із поводженням із так званим «сольовим плавом» (СП) на АЕС з реакторами ВВЕР в Україні, останнім часом привертає все більше уваги як фахівців, так і громадськості. Це пов'язано із постійним накопиченням зазначених радіоактивних відходів у сховищах АЕС, близької до вичерпання проектної потужності сховищ АЕС для зберігання СП, та відсутністю будь-яких дій оператора АЕС щодо розробки науково і економічно обґрунтованого вирішення зазначеної проблеми, хоча реалізація заходів щодо подальшого поводження з СП була і залишається нагальною потребою галузевого рівня.

З огляду на специфічні фізико-хімічні властивості СП ця речовина підлягає обов'язковому кондиціонуванню, що включає в себе операції з підготовки радіоактивних відходів для перевезення, зберігання та захоронення. Кондиціонування може здійснюватися шляхом розміщення РАВ у контейнері та їх іммобілізації.

Аналіз публікацій щодо можливих способів кондиціонування СП з метою забезпечення безпеки його

захоронення [1] приводить до висновку, що сучасний рівень наукових доробок дає підстави для створення технології захоронення сольового плаву без його переробки. Застосування ізолюючого геополімерного бар'єру є основною умовою формування на базі універсального залізобетонного контейнера УЗЗК (ТУ У 29.2-26444970-005) упаковки для безпечного і екологічно прийняттого захоронення сольового плаву у приповерхневих сховищах [1].

З огляду на необхідність забезпечення безпеки персоналу при зберіганні і транспортуванні такої упаковки необхідна оцінка притаманних їй радіаційно-захисних властивостей, оскільки ПЕД для бочок із СП може помітно перевищувати значення 5 мЗв/год [2].

Моделювання потужності експозиційної дози здійснювалося за допомогою програмного комплексу RHITS (Японія) [3].

Технічні характеристики контейнера УЗЗК наведено у таблиці. 1, а схема розташування заповнених СП 4 циліндричних контейнерів об'ємом 200 л із позначенням відстані між ними всередині контейнера

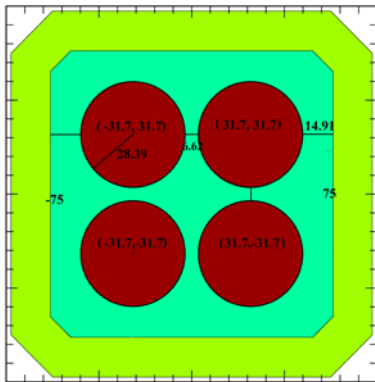
УЗЗК зображена на рис. 1. Також на рис. 2 та 3 представлено розташування детекторів, тобто областей

простору, де безпосередньо розраховувались потужності експозиційної дози.

**Таблиця 1.** Технічні характеристики контейнера УЗЗК

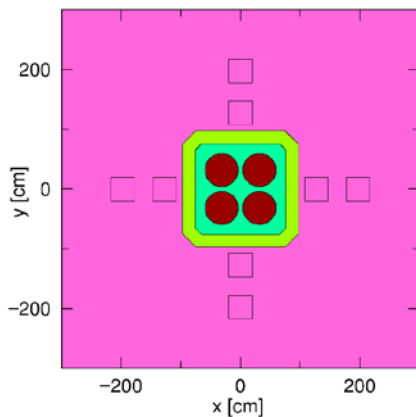
**Tabl.1** Characteristics of the UZZK container

Габаритні розміри контейнера, мм	1950×1950×1505
Внутрішні розміри контейнера, мм	1500×1500×1000
Габаритні розміри кришки, мм	1580×1580×200
Маса порожнього контейнера, т	8,0
Маса кришки, т	1,2
Товщина стінок, мм	200
Марка бетону	B40W6-8P200
Густина бетону, кг/м <sup>3</sup>	2300



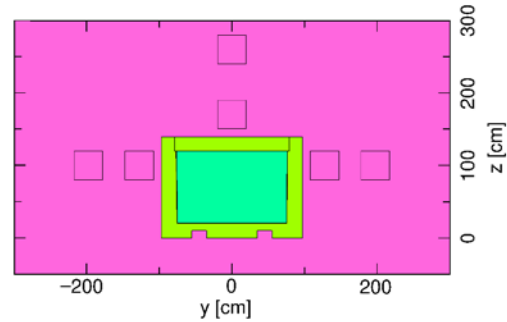
**Рис. 1.** Схема розташування 4 циліндричних контейнерів об'ємом 200 л із позначенням відстані між ними всередині контейнера УЗЗК

**Fig. 1.** Scheme of placing of 4 cylindrical 200-litre containers with indication of the distance between them inside the UZZK container



**Рис. 2.** Схема УЗЗК з розташуванням детекторів розріз у площині Z на висоті 100 см

**Fig. 2.** Scheme of the UZZK container with detectors. Section in the Z plane at a height of 100 cm



**Рисунок 3.** Схема УЗЗК з розташуванням детекторів розріз у площині X на X=0

**Fig. 3.** Scheme of the UZZK container with detectors. Section in the X plane at X = 0

У моделі враховувались 4 металеві бочки зі сталі товщиною 3,9 мм, які заповнені сольовим плавом з густиною 2,0 кг/дм<sup>3</sup> і розташовані у середині УЗЗК. Залишок внутрішнього простору було заповнено матеріалом лужного цементу (див рис. 1), де розглянемо 2 варіанти: перший варіант передбачає заповнення пустот продуктом кондиціонування кубового залишку у вигляді лужного цементу із соленаповненням 25%, тоді як другий варіант включення радіоактивних солей у лужний цемент не передбачав.

При розрахунках дози на стінках УЗЗК детектори розташовані на висоті 100 см на відстані 30 см та 1 м від стінок контейнеру та на відстані 30 см та 1 м від кришки контейнеру. Детектори представлені у вигляді кубічних об'ємів 40×40×40 см, і доза розраховується як середнє значення потужності експозиційної дози у цих об'ємах.

Беручи до уваги, що СП почав утворюватися на АЕС України з 1987 року, виконано декілька варіантів розрахунків з огляду на відмінність у радіонуклідному складі «свіжого» і «втриманого» соляного плаву внаслідок помітної різниці у швидкості напіврозпаду основних радіонуклідів.

**Таблиця 2.** Характеристика основних радіоізотопів, присутніх у СП

**Table 2.** Characteristics of the main radioisotopes present in the salt melt

Ізотоп	Середня енергія $\gamma$ -кванта, Мев	Період напіврозпаду, роки
$^{137}\text{Cs}$	0,66	30
$^{134}\text{Cs}$	0,70	2,06
$^{60}\text{Co}$	1,25	5,27

Слід відзначити можливість значних варіацій щодо питомої активності СП і співвідношення радіонуклідів подільного ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ) і корозійного ( $^{60}\text{Co}$ ) генезису, що обумовлюється індивідуальними особливостями режиму експлуатації. При розрахунках ми користувалися даними щодо радіонуклідного складу СП, наведеними у [2,4,5].

Усього виконано 4 варіанти розрахунків, які охоплюють можливі діапазони питомої активності і ізотопного складу, притаманні реальному СП, що утворюється на АЕС.

**Варіант 1.** Ізотопний склад СП - 100% Cs-137, питома активність  $5\text{E}7$  Бк/кг.

а) Сумарна активність СП у 4 бочках складає  $6,5\text{E}10$  Бк, пустоти усередині УЗЗК заповнені лужним цементом з густиною  $2,3$  кг/дм<sup>3</sup>. У такому разі ПЕД від кришки складає  $2,38$  мкЗв/год і  $1,2$  мкЗв/год на відстані  $30$  см і  $100$  см відповідно. Для бокових стінок УЗЗК ПЕД складає  $1,26$  мкЗв/год і  $0,68$  мкЗв/год на відстані  $30$  см і  $100$  см відповідно.

б) Сумарна активність СП у 4 бочках складає  $6,5\text{E}10$  Бк, пустоти усередині УЗЗК заповнені продуктом кондиціонування кубового залишку у вигляді лужного цементу густиною  $2,3$  кг/дм<sup>3</sup> із соленаповненням  $25\%$  ( $800$  кг солей) сумарною активністю  $4,0\text{E}10$  Бк. Для цієї упаковки ПЕД від кришки складає  $34,14$  мкЗв/год і  $17,91$  мкЗв/год на відстані  $30$  см і  $100$  см відповідно, тоді як для бокових стінок УЗЗК ПЕД складає  $22$  мкЗв/год і  $9,78$  мкЗв/год на відстані  $30$  см і  $100$  см.

**Варіант 2.** Базуючись на результатах вимірювань активності реальних зразків СП, отриманих у 1991-1992 роках на ХАЕС [2], розраховано величини ПЕД у разі наступного ізотопного складу:  $75,2\%$  Cs-137,

$24\%$  Cs-134,  $0,8\%$  Co-60 і сумарній питомій активності  $6,65\text{E}7$  Бк/кг.

а) Активність соляного плаву у 4 бочках складає  $8,65\text{E}10$  Бк, пустоти усередині УЗЗК заповнені лужним цементом з густиною  $2,3$  кг/дм<sup>3</sup>.

б) Активність соляного плаву у 4 бочках складає  $8,65\text{E}10$  Бк ( $1300$ кг), пустоти усередині УЗЗК заповнені продуктом кондиціонування кубового залишку у вигляді лужного цементу густиною  $2,3$  кг/дм<sup>3</sup> із соленаповненням  $25\%$  ( $800$  кг солей) сумарною активністю  $5,33\text{E}10$  Бк. Розраховані значення ПЕД наведено у таблиці 3.

**Варіант 3.** Згідно з даними [5], доля Co-60 у сумарній активності свіжого СП може досягати до  $20\%$ , тому розраховано величини ПЕД у разі наступного ізотопного складу:  $65\%$  Cs-137,  $15\%$  Cs-134,  $20\%$  Co-60 і питомій активності  $6,65\text{E}7$  Бк/кг. Як і в попередніх варіантах виконано розрахунки у разі заповнення пустот чистим лужним цементом та продуктом кондиціонування кубового залишку з аналогічним ізотопним складом (таблиця 3).

**Варіант 4.** Необхідно зазначити, що згідно роботи [4], питома активність соляного плаву може досягати екстремальних значень  $10^9$  Бк/кг, тобто у  $15$  разів більше, ніж у вищенаведених розрахунках, і якщо брати найбільш небезпечний його склад, а саме  $65\%$  Cs-137,  $15\%$  Cs-134,  $20\%$  Co-60, то отримано наступні результати:

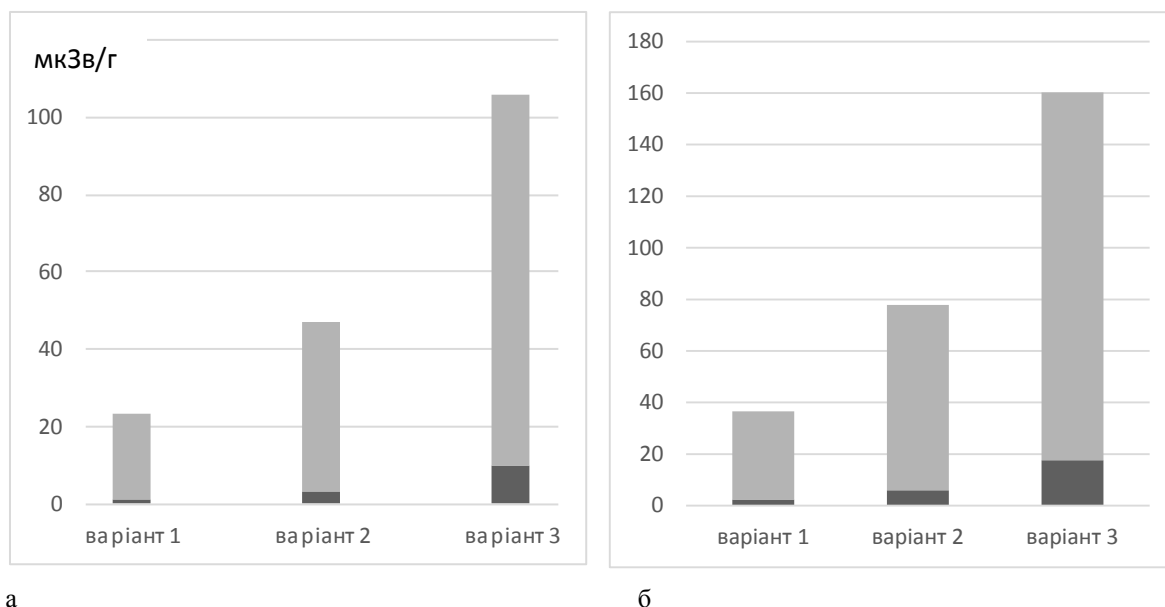
а) Сумарна активність СП у 4 бочках складає  $1,3\text{E}12$  Бк. У разі заповнення пустот усередині УЗЗК чистим лужним цементом з густиною  $2,3$  кг/дм<sup>3</sup> максимальні значення ПЕД від кришки і від бокової стінки на відстані  $30$  см не перевищують  $265$  мкЗв/год і  $144,25$  мкЗв/год відповідно, що відповідає нормам безпечного перевезення радіоактивних матеріалів. Водночас у разі заповнення пустот упаковки продуктом кондиціонування кубового залишку з аналогічним ізотопним складом розраховане значення ПЕД на відстані  $30$  см від кришки складає  $2138$  мкЗв/год, що неприйнятно з точки зору безпеки зберігання і транспортування (таблиця 3). Вимога неперевикнення ПЕД  $2$  мЗв/год накладає жорстке обмеження на питому активність СП, яка для зазначеного ізотопного складу не повинна перевищувати  $9,3\text{E}8$  Бк/кг.

Помітно, що незважаючи на те, що більша частина активності зосереджена у бочках всередині залізобетонного контейнера, значення ПЕД як для кришки, так і для бокової стінки переважно визначаються активністю, розподіленою в об'ємі лужного цементу, який заповнює пустоти упаковки (рис.4).

**Таблиця 3.** Розрахована потужність дози упаковки із сольовим плавом, мкЗв/год (кришка/бокова стінка)**Table 3.** Calculated dose rate of the package with salt melt,  $\mu\text{Sv} / \text{h}$  (lid / side wall)

Відстань, см	Ізотопний склад сольового плаву, %					
	$^{137}\text{Cs} - 100$		$^{137}\text{Cs}-75,2$ $^{134}\text{Cs}-24$ $^{60}\text{Co}-0,8$		$^{137}\text{Cs}-65$ $^{134}\text{Cs}-15$ $^{60}\text{Co}-20^*$	
	Соленоповнення, %					
	0	25	0	25	0	25
30	2,38 / 1,26	34,14 / 22	5,93 / 3,11	71,93 / 43,8	17,67 / 9,62	142,6 / 96,05
					<i>265 / 144,2</i>	<i>2138/1441</i>
100	1,2 / 0,68	17,91 / 9,78	2,88 / 1,64	37,52 / 19,26	8,27 / 4,85	72,87 / 42,99
					<i>124,1/72,8</i>	<i>1093/644,9</i>

\* - курсивом наведено розрахункові дані для питомої активності  $10^9$  Бк/кг

**Рис. 4.** Розраховані значення ПЕД на відстані 30 см. А – бокова стінка, Б – кришка**Fig. 4.** Calculated EDR values at a distance of 30 cm,  $\mu\text{Sv}/\text{h}$ . A – side wall, B – cover

Таким чином, виконані розрахунки показали прийнятність запропонованого кондиціонування сольового плаву шляхом формування упаковки у складі 4 контейнерів типу КРО-200, універсального залізобетонного контейнера УЗЗК ТУ У 29.2-26444970-005 і заповнення пустот продуктом кондиціонування кубового залишку у вигляді лужного цементу із соленоповненням 25% з точки зору радіаційно-захисних властивостей.

З огляду на зміни у ОСПУ-2005 у частині класифікації СП і віднесення його до твердих РАВ [6], представлені результати свідчать про можливість імплементування реальний дій і заходів, спрямованих на звільнення заповнених сольовим плавом сховищ АЕС з передачею кондиціонованого продукту на захоронення.

#### Література

1. Ю.О. Ольховик Перспективні схеми кондиціонування рідких радіоактивних відходів АЕС України. Ядерна енергетика та довкілля. 2020. №3(18). С.48 – 56. doi:10.31717/2311-8253.20.3.6
2. Я.А. Жигалов, В.А. Пшеничний. Визначення коефіцієнта ослаблення потужності еквівалентної дози гамма-випромінювання матеріалом оболонки циліндричних контейнерів для тимчасового зберігання рідких радіоактивних відходів. Ядерна та радіаційна безпека. 2014. №1. С. 34-44.
3. Iwase H., Niita K., Nakamura T. Development of general-purpose particle and heavy ion transport Monte-Carlo code. J. Nucl. Sci. and Technol. 2002. V.39. p. 1142-1151. doi.org/10.1080/18811248.2002.9715305
4. С.В. Росновский, С.К. Булка Методология кондиционирования отвержденных радиоактивных отходов с применением контейнеров НЗК с хранением в легких хранилищах ангарного типа. Сборник трудов 8-й Международ-

ной научно-технической конференции "Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР" (28-31 мая 2013 г., ОАО ОКБ "ГИДРОПРЕСС") [Электронный ресурс] URL: <http://www.gidropress.podolsk.ru/files/proceedings/mntk2013/autorun/article136-ru.htm>

5. Rudychev V.G., Azarenkov N.A., Girka I.O., Rudychev D.V., Rudychev Y.V Combined calculation of radiation from large-sized ground RW storage facilities on the basis of Monte-Carlo method. Problems of Atomic Science and Technology. 2019. #5, p. 69-74.

6. Наказ МОЗ України від 17.12.2020 № 2935 "Про внесення змін до Основних санітарних правил забезпечення радіаційної безпеки України"

2. Y.A. Zhyhalov, V.A Pshenychnyy (2014). Yaderna ta radiatsiyna bezpeka. V 1. pp. 34-44

3. Iwase H., Niita K., Nakamura T. Development of general-purpose particle and heavy ion transport Monte-Carlo code. J. Nucl. Sci. and Technol. 2002. V.39. p. 1142-1151.

4. S.V. Rosnovskiy, S.K. Bulka (2013). Available at: <http://www.gidropress.podolsk.ru/files/proceedings/mntk2013/autorun/article136-ru.htm>

5. V.G.Rudychev, N.A Azarenkov., I.O. Girka, D.V. Rudychev, Y.V. Rudychev. Problems of Atomic Science and Technology (2019). 5. pp. 69-74.

6. Order of the Ministry of Health of Ukraine dated 17.12.2020 № 2935 "On Amendments to the Basic Sanitary Rules for Radiation Safety of Ukraine"

## References

1. Y. Olkhoviyk (2020). Yaderna enerhetyka ta dovkillya. V 3(18). pp. 48-56

## RADIATION AND PROTECTIVE PROPERTIES OF CONTAINERS FOR NPPS' SALT MELT CONDITIONING IN UKRAINE

*Y. Rudychev, Yu. Olkhoviyk*

**Y. Rudychev**, PhD (Physics and Mathematics), Senior Researcher, National Science Center "Kharkiv Institute of Physics and Technology", V.N. Karazin Kharkiv National University, Kharkiv, Ukraine, ORCID:0000-0002-1453-2062, [rudychev@kipt.kharkov.ua](mailto:rudychev@kipt.kharkov.ua)

**Yu. Olkhoviyk**, D.Sc. (Technical Sciences), Head of Department, State Institution «The Institute of Environmental Geochemistry of National Academy of Sciences of Ukraine», ORCID:0000-0001-5653-2370, [yolkhoviyk@ukr.net](mailto:yolkhoviyk@ukr.net)

*Considering that the problem of liquid radioactive waste management of Ukrainian nuclear power plants with WWER reactors is still unresolved, it is noted that the current level of scientific achievements provides grounds for creating a technology for the salt melt (SM) disposal without its processing. Since the exposure dose rate (EDR) for barrels with SM can significantly exceed the value of 5 mSv/h, the radiation-protective properties of the hypothetical packaging for conditioning of the salt melt formed by placing radioactive waste (RW) in a reinforced concrete container and its immobilization are considered. Exposure dose rate simulation was performed using the PHITS software package (Japan). The calculations were performed for a packaging consisting of 4 barrels of SM, placed in a universal protective container UZZK. Variants with different radionuclide composition of the SM, due to the duration of exposure of the SM - from 100%  $^{137}\text{Cs}$  to  $^{137}\text{Cs}$ -65%,  $^{134}\text{Cs}$ -15%,  $^{60}\text{Co}$ -20%, are considered. The specific concentration of radionuclides was taken from  $5\text{E}7$  to  $1\text{E}9$  Bq/kg. There are also 2 options for filling the voids: the first option involves filling the voids with the conditioning product of the bottom residue in the form of alkaline cement with a saline content of 25%, while the second option does not include radioactive salts in alkaline cement. The calculations showed the acceptability of the proposed conditioning of the salt melt by forming a package of 4 KRO-200 containers, universal reinforced concrete container UZZK TU U 29.2-26444970-005 and filling voids with the product of conditioning of the bottom residue in the form of alkaline cement with salinity-protective properties. A necessary condition for the implementation of practical measures for the conditioning of the salt melt accumulated in WWER reactors, followed by transfer to landfills is the corresponding changes in OSPU-2005 in terms of classification of the SM and its classification as solid radwaste.*

**Keywords:** salt melt, conditioning, alkaline cement, exposure dose rate, disposal packaging