

О. В. Михайлов, В. М. Безмилов

Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, вул. Кірова, 36а, Чорнобиль, 07270, Україна

Кондиціювання високоактивних твердих радіоактивних відходів у ядерному паливному циклі. Огляд методів та технологій. Частина 1

Ключові слова:

АЕС,
радіоактивні відходи,
МАГАТЕ,
кондиціювання,
іммобілізація,
форма відходів,
матричні матеріали

Наведено огляд світового досвіду кондиціювання радіоактивних відходів (РАВ) у частині організаційних та методичних підходів застосування цього методу переробки РАВ, узагальнених у документах Міжнародного агентства з атомної енергії (МАГАТЕ), у різних аналітичних матеріалах і наукових публікаціях. На підставі аналізу доступних інформаційних матеріалів встановлено, що в різних країнах із розвинутим ядерним паливним циклом кондиціювання є невід'ємною частиною системи комплексного поводження з РАВ, яка включає операції, у процесі яких вони мають бути переведені у форму, що забезпечує їхню стабільну хімічну, термічну й радіаційну стійкість для подальшого їхнього транспортування, зберігання та захоронення. Перелік РАВ, що утворюються під час експлуатації АЕС і належать до кондиціювання, об'єднує різноманітні матеріали, що розрізняються за формою, концентрацією активності нуклідів та видом забруднення. Рівні питомої активності нуклідів у складі РАВ варіюються від дуже низьких до надзвичайно високих, притаманних відпрацьованому ядерному паливу, яке потребує забезпечення умов їхньої підкритичності під час виконання технологічних операцій. Зроблено висновок, що найбільш відпрацьованим методом кондиціювання РАВ у промислових масштабах є іммобілізація, що реалізується в трансформації відходів у тверду форму за допомогою процесів їхнього затвердіння після включення в будь-яку матрицю або включення в герметичні оболонки. Радіоактивні компоненти можуть бути іммобілізовані в матеріал матриці на основі бітуму, полімерів, цементу, скла, кераміки і склокераміки за допомогою двох основних процесів: зв'язування їх у матеріал на атомному рівні (хімічне включення) або фізичне оточення та ізоляція (інкапсуляція).

Вступ

Відповідно до положень Енергетичної стратегії України на період до 2035 р. [1], безпечне поводження з радіоактивними відходами (РАВ) є одним із найважливіших чинників сталого розвитку ядерної енергетики держави. У процесі експлуатації енергоблоків АЕС утворюються три основні види РАВ [2]:

газоаерозольні, рідкі та тверді. Поводження з газоподібними РАВ зводиться фактично до їхнього розсіювання в довкіллі (викиди) після очищення (фільтрації). Досвід експлуатації АЕС показав, що системи очищення, що існують на вітчизняних АЕС, в умовах нормальної експлуатації обладнання забезпечують рівні викидів, нижчі за міжнародні та національні норми. Що стосується генерації рідких і твердих

© О. В. Михайлов, В. М. Безмилов, 2023

РАВ, у середньому на 1 МВт потужності реакторної установки типу ВВЕР на АЕС України за рік може утворюватися від 0,15 до 0,35 м³ рідких РАВ (РРВ) і від 0,1 до 0,3 м³ твердих РАВ (ТРВ) [3]. За даними [4], станом на 31.12.2021 р. у сховищах середньоактивних РРВ накопичено 8 783 м³ кубового залишку, 1 642 м³ відпрацьованих фільтруючих матеріалів та зневодненого шламу. Накопичені ТРВ оцінюються в 39 347 м³ низькоактивних відходів (НАВ), 2 163 м³ середньоактивних (САВ), 225 м³ високоактивних (ВАВ), а також 14 498 м³ сольового плаву з огляду на зміну його класифікації і зарахування до ТРВ.

Основним джерелом утворення ТРВ у процесі експлуатації АЕС є технічне обслуговування та ремонт енергоблоків [2]. Під час проведення ремонтних робіт на устаткуванні АЕС радіоактивними стають частини або деталі заміненого устаткування й трубопроводів, інструмент, що застосовувався в роботах, електро- і теплоізоляційні матеріали, одяг, протиральне ганчір'я тощо.

Система поводження з ТРВ на АЕС містить: збирання відходів у первинну тару на місцях їхнього утворення; сортування за активністю; транспортування відходів до централізованих місць збирання чи переробки; переробку РАВ; пакування первинної тари з ТРВ у транспортні контейнери; транспортування контейнерів із твердими РАВ до сховища ТРВ на спецавтомобілях; приймання відходів та їхнього вивантаження до секцій сховища; ведення обліку та звітності щодо РАВ.

Після переробки ТРВ зберігають у сховищах, спеціально споруджених на території АЕС. Сховища ТРВ — це заглиблені бетоновані вмістища, гідроізольовані від підземних і атмосферних вод. Вони перебувають під суворим дозиметричним контролем, для чого навкруги сховищ споруджені спостережні свердловини, з яких періодично відбирають проби води для аналізу на вміст радіоактивних речовин. Зберігання передбачає можливість вилучення РАВ для їхньої переробки та транспортування.

Під переробкою ТРВ розуміють будь-яку операцію, що змінює їхні характеристики. Головними цілями переробки є: підвищення безпеки на подальших етапах поводження з ними, зменшення негативного впливу на довкілля, економія коштів на зберігання та захоронення ТРВ. На шляху поводження з РАВ використовують різні методи та технології кондиціонування, які є основним об'єктом цього огляду, проведеного під час виконання науково-дослідницької роботи за темою «Дослідження стану паливовмісних

матеріалів об'єкта «Укриття» в умовах нового безпечного конфайнмента та розробка методичних і технологічних підходів до їхнього кондиціювання».

Для висвітлення досвіду застосування кондиціювання ТРВ використовувались нижчезазначені інформаційні матеріали:

документи МАГАТЕ, які регламентують організацію робіт із кондиціювання РАВ як складову та невід'ємну частину національної системи поводження з РАВ у ядерному паливному циклі;

публікації МАГАТЕ та інші аналітичні матеріали, присвячені узагальненню даних наукових досліджень та розробок стосовно методології кондиціювання РАВ із застосуванням різних технологій обробки РАВ;

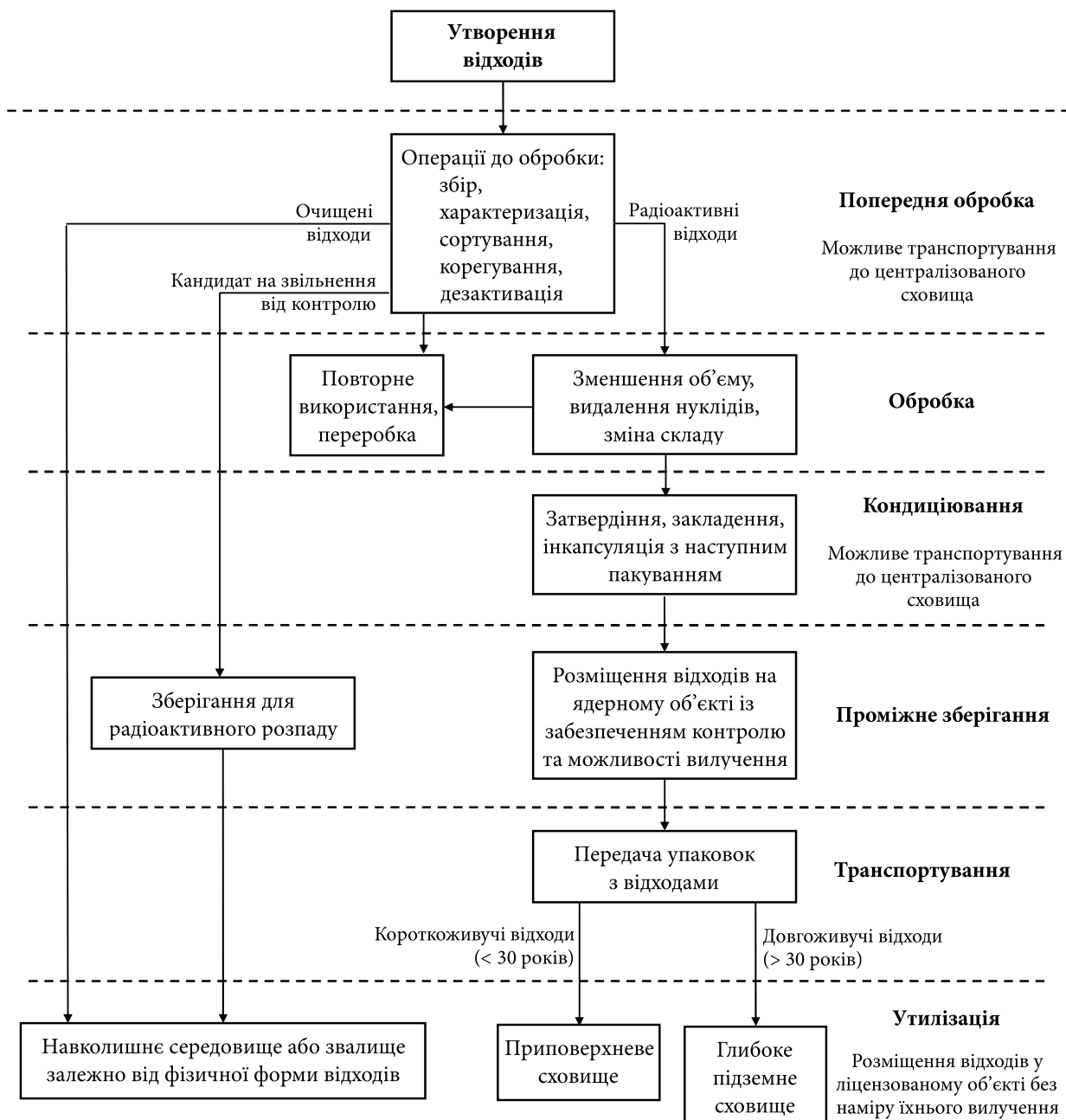
опубліковані результати розробки технологій іммобілізації радіонуклідів, яка є найбільш поширеним методом кондиціювання РАВ, що направляються на зберігання або захоронення, і використання різного матеріального складу матриць з урахуванням специфічних властивостей радіоактивно забруднених матеріалів.

Кондиціювання як невід'ємна складова системи поводження з РАВ

Міжнародний досвід свідчить про те, що в системі поводження з РАВ мають існувати дві складові, нерозривно пов'язані одна з одною, — політика, яка встановлює принципи поводження з РАВ, і стратегія, яка передбачає методичні та технологічні підходи для здійснення цієї політики [5]. Для надання допомоги фахівцям у галузі управління відходами МАГАТЕ випустило серію технічних документів, присвячених питанням пошуку та впровадження надійних та ефективних технічних рішень для комплексного управління всіма потоками відходів. Детальний огляд різних способів кондиціювання РАВ шляхом їхньої іммобілізації викладено в публікації [6], яка за спектром висвітлених питань може розглядатися як довідникове видання. Методичні й організаційні аспекти застосування кондиціювання ВАВ, що утворюються на АЕС, на етапі їхньої утилізації, переробки й підготовки упаковок для тимчасового зберігання або захоронення, викладено у [7, 8]. Для висвітлення досвіду застосування окремих технологій, розроблених для кондиціювання тих чи інших типів відходів, у рамках цього огляду розглянуто також інші документи МАГАТЕ та результати наукових досліджень [9–39].

Для однозначного розуміння термінології, яка застосовується в англomовній літературі, ми скористалися глосарієм [9]. За визначенням МАГАТЕ, кондиціювання РАВ (radioactive waste conditioning) — це один з етапів комплексного поводження з РАВ, який включає операції, у процесі яких вони переводяться у форму, що забезпечує хімічну, термічну та радіаційну стійкість, а також є стабільною для подальшого їхнього переміщення, перевезення, зберігання та захоронення.

Ілюстрація, наведена на рисунку, наочно демонструє, що в системі поводження з РАВ кондиціювання є проміжною, але обов'язковою ланкою на шляху руху відходів від місця їхнього утворення (waste generation) або тимчасового місця сховища (landfill) до спеціально призначеного для безпечного зберігання утилізованих відходів, що утворюються на АЕС (storage facility), або до могильника, де відбувається їхнє остаточне захоронення й безпечне зберігання (repository).



Типова схема комплексу з поводження з РАВ [7]

Важливим моментом, що впливає на застосування різних методів переробки і кондиціонування в системі поводження з РАВ, є рівень їхнього радіоактивного забруднення. Універсальної системи класифікації РАВ не існує, незважаючи на багаторічні спроби її створити, об'єднуючи зусилля різних країн у цьому напрямі. Уніфікованість систем класифікації значно спростила б і полегшила взаємодію, обмін інформацією та досвідом у цій сфері діяльності, особливо на міжнародному рівні. За діючими документами МАГАТЕ [10–12], залежно від рівня активності та періоду напіврозпаду радіонуклідів, РАВ поділяють на шість класів.

1. Exempt waste (EW) — звільнені від контролю відходи (ЗВ), на які поширюється вилучення. До цього класу належать відходи, що відповідають критеріям виведення з-під регулюючого контролю, звільнення або вилучення відповідно до документа [10].

2. Very short-lived waste (VSLW) — дуже короткоживучі відходи (ДКЖВ). Ці відходи можуть перебувати на зберіганні протягом обмеженого часу для розпаду короткоживучих радіонуклідів (до декількох років), а потім виводитися з-під регулюючого контролю відповідно до порядку, затвердженого національним органом регулювання. Цей клас включає також відходи, що містять радіонукліди з дуже коротким періодом напіврозпаду, які часто використовуються для дослідницьких і медичних цілей.

3. Very low-level waste (VLLW) — дуже низькоактивні відходи (ДНАВ). До цього класу належать РАВ, які орган регулювання визначає придатними для дозволеного захоронення за дотримання певних умов разом зі звичайними відходами в установках, не призначених спеціально для захоронення РАВ. Такі відходи не обов'язково відповідають критеріям віднесення до ЗВ і не вимагають високого рівня локалізації та ізоляції. Отже, ДНАВ підходять для приповерхневого захоронення (траншеї із земляним засипанням) з обмеженим регулюючим контролем. Вони можуть містити також інші небезпечні відходи. Типові відходи, що належать до цього класу, включають ґрунт і щебінь із низьким рівнем активності. Питома активність довгоживучих радіонуклідів у ДНАВ, як правило, дуже обмежена. Ця категорія РАВ у деяких державах-членах МАГАТЕ не застосовується, оскільки будь-які види РАВ, яким би низьким не був рівень їхньої активності, не можна піддавати захороненню таким способом.

4. Low-level waste (LLW) — низькоактивні відходи (НАВ). До цього класу належать відходи, що

перевищують рівень виведення з-під регулюючого контролю, але з обмеженим об'ємом довгоживучих радіонуклідів. Такі відходи вимагають надійної ізоляції та локалізації на термін до кількох сотень років, вони придатні для захоронення в приповерхневих пунктах з інженерно-технічними бар'єрами. Клас (категорія) НАВ охоплює дуже широкий спектр відходів. Вони можуть включати в себе короткоживучі радіонукліди з більш високими рівнями питомої активності, а також довгоживучі радіонукліди, але тільки за відносно низьких рівнів питомої активності.

5. Intermediate-level waste (ILW) — середньоактивні відходи (САВ). Ці відходи за вмістом довгоживучих радіонуклідів вимагають більшою мірою локалізації та ізоляції, ніж це передбачено умовами приповерхневого захоронення. Проте САВ не потребують або ж потребують тільки в обмежених масштабах відведення тепла в процесі їхнього зберігання та захоронення. Вони можуть містити довгоживучі радіонукліди, зокрема альфа-випромінюючі радіонукліди, що не розпадаються до рівня питомої активності, прийнятної для приповерхневого захоронення протягом періоду, в який можна розраховувати на заходи відомчого контролю. За усталеною світовою практикою САВ потребують захоронення на глибинах від десятків до декількох сотень метрів.

У деяких країнах НАВ і САВ на окремі класи не розділяють і об'єднують в один за критерієм перевищення рівнів активності, що не дозволяє звільнення їх від контролю за умови їхньої теплотворної здатності нижче 2 кВт/м^3 .

6. High-level waste (HLW) — високоактивні відходи (ВАВ). Це відходи з високими рівнями питомої активності радіонуклідів і значним виділенням тепла (понад 2 кВт/м^3) або відходи з великим об'ємом довгоживучих радіонуклідів. Звичайно до ВАВ належать такі відходи: радіоактивна рідина, яка містить велику частину продуктів радіоактивного поділу та актинідів, присутніх у відпрацьованому паливі, і являє собою залишок від першого циклу екстракції розчинником у процесі переробки; матеріали, що утворюються після затвердіння РАВ; відпрацьоване паливо або будь-які інші відходи з аналогічними радіологічними характеристиками. Такі відходи мають бути ізольовані від біосфери зі створенням екрануючої оболонки (біологічного захисту) і системи охолодження. Відповідно до загальноновизнаної у світі практики ВАВ захо-ронюють у стабільних глибоких геологічних формаціях (на глибині від кілька сотень метрів від поверхні), доповнених інженерно-технічними бар'єрами.

Вищенаведена класифікація МАГАТЕ з розділенням РАВ на шість класів заснована передусім на забезпеченні довгострокової безпеки утилізованих відходів і, отже, орієнтована на найбільш придатні шляхи утилізації ТРВ або РРВ після спеціальної обробки для затвердіння.

Виробництво атомної енергії призводить до утворення кількох видів ВАР, включаючи відпрацьоване паливо (якщо воно віднесено до відходів) і кондиціоновані продукти хімічної переробки відпрацьованого палива, ДНАВ, НАВ і САВ, які утворюються в результаті експлуатації реакторів, переробки, дезактивації, виведення з експлуатації та інших видів діяльності в ядерному паливному циклі. Зазвичай ВАР мають рівні питомої активності в діапазоні 104–106 ТБк/м³ (як приклад, для свіжого відпрацьованого палива енергетичних реакторів) [12]; РРВ зазвичай зберігаються в ємностях до остаточного затвердіння (оскловування).

Одним із видів кондиціювання РАВ є іммобілізація — трансформація відходів у тверду форму за допомогою процесів їхнього затвердіння (solidification) і включення в будь-яку матрицю або в герметичні оболонки (embedding or encapsulation) [9]. Як відомо, матричний матеріал (метод кондиціювання) залежить від характеристик і властивостей відходів [6–8]. Такий матеріал повинен мати високі ізоляційні властивості (стійкість до вилугування), гарну сумісність із компонентами відходів, що забезпечує мінімальний об'єм кінцевого продукту. При цьому радіоактивні компоненти у відходах можуть бути іммобілізовані в матеріал матриці за допомогою двох основних процесів: зв'язування їх на атомному рівні — хімічне включення (chemical incorporation) або фізичне оточення та ізоляція — інкапсуляція (encapsulation).

Для іммобілізації РАВ використовують такі матричні матеріали: органічні (бітум, полімери); неорганічні (цемент, скло, кераміка, склокераміка); металеві та композиційні, що складаються з декількох матричних матеріалів. У технологічному циклі поводження з РАВ іммобілізовані відходи у свою чергу упаковують у різні контейнери, починаючи від звичайних 200-літрових сталевих бочок до товстостінних контейнерів складної конструкції. Найвищу стійкість мають гомогенні форми кондиціонованих РАВ, у яких компоненти відходів входять у структуру матеріалу на молекулярному рівні. Такими є керамічні форми кондиціонованих РАВ. Менш стійкими є гетерогенні форми відходів, у матриці яких частки РАВ розпо-

ділені механічно (бітумно-сольовий компаунд, бітумовані, цементовані ТРВ та ін.). Найбільш поширеними методами іммобілізації є: затвердіння РРВ із низькими й середніми рівнями активності нуклідів шляхом включення їх у цементну матрицю (цементування) і бітумну (бітумування) або в скляну матрицю (оскловування), якщо РРВ належать до ВАР. На сьогодні кондиціювання РАВ шляхом іммобілізації в матрицю — найбільш технологічно відпрацьований метод, який забезпечує відповідність кінцевого продукту жорстким вимогам стійкості, радіаційної безпеки та екологічним нормам забруднення довкілля.

Методи та технології кондиціювання РАВ

Технічний документ МАГАТЕ [7] містить рекомендації, які висвітлюють аспекти з безпеки під час поводження з ВАР, у тому числі на етапі кондиціювання. Кінцевий результат кондиціювання має забезпечити виготовлення таких форм відходів і упаковок із РАВ, які могли бути придатними для маніпулювання, транспортування, зберігання та захоронення. У цьому аспекті проблеми вибору методів і технологій мають виходити зі специфіки типу відходів та можливостей виготовлення кінцевого продукту, що відповідає вимогам приймання РАВ для конкретного підприємства, яке здійснює його захоронення. МАГАТЕ акцентує увагу також на небезпеку, пов'язану з технологією стабілізації відходів, і намагання в процесі кондиціювання зменшити об'єм та сумарну активність вторинних відходів, що утворюються під час поводження з ВАР. Остання вимога є досить актуальною, бо кожна з відомих сьогодні технологій іммобілізації РАВ супроводжується утворенням певного обсягу вторинних відходів, що також потребують утилізації. Це має бути враховане й заплановане під час проектування заходів щодо кондиціювання РАВ.

Вибір форми відходів, у яку необхідно перевести РАВ, залежить не тільки від рівня радіологічної небезпеки, а й від фізичної та хімічної природи відходів, а також критеріїв прийнятності для сховищ і установок для захоронення, до яких будуть відправлятися відходи. Залежно від того, до якого класу належать РАВ після їхньої характеристики, застосовують різні типи матричних матеріалів. У таблиці наведено найбільш поширені та технологічно відпрацьовані кінцеві форми відходів (waste forms), такі як скло, кераміка, цемент, полімер і бітум. Металевідходи виділяють в окрему групу кінцевих форм відходів, які отримують під час утилізації як чорних (вуглецева

Кінцеві форми відходів та основні характеристики технології виготовлення [6, 7, 13–35]

Кінцева форма відходів	Характеристика	Обмеження	Вторинні відходи
Скло	Перевірений метод кондиціонування рідких ВАР, а також САВ і НАВ Висока гнучкість з погляду асортименту скла Висока надійність іммобілізації Висока пропускна здатність установок оскловування Висока міцність відходів Невеликий об'єм форми відходів, що утворюється	Високі початкові інвестиції та експлуатаційні витрати Складні технології, що вимагають висококваліфікованого персоналу Вважається неекономічним для НАВ і САВ Необхідний контроль подачі відходів і газових викидів Висока питома енергоємність	Гази, фільтри, розчини для очищення, використані плавители
Кераміка	Можливе включення більш високих рівнів активності актинідів, ніж скло Форма відходів більш стабільна й довговічніша, ніж скло Очікується придатність для довгострокової ізоляції, оскільки імітує природні породи	Обмежений досвід у рамках дослідницьких робіт Вважається неекономічним для НАВ і САВ Форма відходів для кераміки Synroc повинна бути адаптована до конкретних характеристик РАВ	Гази, фільтри, розчини для очищення
Скло-композитні матеріали (полімери)	Поєднання властивостей кристалічних і склоподібних матеріалів Більш високе завантаження Більш висока сумісність Більш висока стабільність у порівнянні зі склом	Обмежений досвід	Гази, фільтри, розчини для очищення, використані плавители
Цемент	Широко застосовується для різних видів НАВ і САВ Висока гнучкість Низька вартість Простота процесу Низька температура процесу запобігає утворенню летких викидів Висока стійкість до радіації, ударо- і вогнестійкість	Збільшення об'єму (мале завантаження відходів) Слабке утримання деяких продуктів радіоактивного поділу та активації Погана сумісність з органічними матеріалами і матеріалами з високим вмістом солі	Немає
Бітум	Використовується для НАВ і САВ, продуктів хімічного осадження, негорючих і низькоальфа-активних відходів Висока гнучкість Висока сумісність з органічними матеріалами Високе завантаження відходів Низька швидкість вилугування в порівнянні з цементуванням	Високотемпературний процес Чутливість до деяких компонентів Низька вогнестійкість	Фільтри
Метал	Широко перевірена технологія кондиціонування металевих відходів Кінцевий продукт може бути добре класифікований Кінцевий продукт зазвичай гомогенний і стабільний	Потрібне попереднє сортування зазвичай через відмінності в температурах плавлення різних металів	Гази, шлак

сталь і нержавіюча сталь), так і кольорових металів (алюміній, свинець, мідь і латунь). При цьому досягається максимальне зменшення початкового об'єму (від 5 до 20 разів). Кінцевий продукт кондиціювання зазвичай є гомогенним із залишковою активністю, пов'язаною з металом, і може бути направлений на повторне використання в ядерній промисловості після його дезактивації або у звичайній металургії.

Під час вибору матричного матеріалу для іммобілізації РАВ у [19–21] рекомендують враховувати такі фактори.

Завантаження відходів (waste loading). Форма відходів, які направляються на зберігання або захоронення, повинна бути здатною вмістити значну кількість відходів (зазвичай 25–45 мас. %) і при цьому, мінімізуючи їхній обсяг, максимально зменшити простір, необхідний для зберігання, транспортування та утилізації.

Простота виробництва (ease of production). Виготовлення необхідної форми відходів повинно здійснюватися в прийнятних умовах, у тому числі за низьких температур і, в ідеалі, у повітряній атмосфері, використовуючи методи, що дозволяють мінімізувати дозу опромінення персоналу та капітальні витрати на реалізацію технології іммобілізації.

Довговічність (durability). Кінцевий продукт (форма відходів), що виготовляється, повинен мати низьку швидкість розчинення під час контакту з водою, щоб мінімізувати можливий вихід радіоактивних і хімічних компонентів.

Радіаційна стабільність (radiation stability). Форма відходів повинна мати високу стійкість до ефекту самоопромінення, включаючи балістичні (ballistic) ефекти від альфа-розпаду й ефекти іонізації від розпаду продуктів радіоактивного поділу.

Хімічна гнучкість (стійкість) (chemical flexibility). Форма відходів, що виготовляється, повинна бути здатною вмістити суміш радіоактивних і хімічних компонентів із мінімальним утворенням вторинних фаз, які можуть знизити її довговічність.

Наявність природних аналогів (availability of natural analogues). Оскільки лабораторне тестування форм відходів упродовж періоду часу, що відповідає тривалості захоронення (зазвичай 10^3 – 10^6 років), практично недосяжне. Наявність природних мінеральних або скляних аналогів може дати необхідні відомості (прогноз) про довговічність застосованих матричних матеріалів і можливість екстраполювати відомі дані на поведінку форми відходів після захоронення.

Сумісність із середовищем, що передбачається для захоронення (compatibility with the intended disposal environment). Форма відходів повинна бути сумісною з навколишнім середовищем навколо об'єкта (facility) для захоронення. Навколишнє середовище в найближчому оточенні забезпечує фізичні й хімічні умови, сприятливі для збереження цілісності форми відходів протягом тривалих періодів, що допомагає уповільнити вихід складових за межі об'єкта (сховища).

Дані в таблиці підсумовують відомі за даними літератури характеристики форм відходів та особливості їхнього виготовлення з урахуванням вищенаведених факторів, у тому числі й перелік видів вторинних відходів, сумарний об'єм яких зазвичай знаходиться в прямій пропорційності до обсягів кінцевого продукту.

Серед ВАР є окрема група відходів зі специфічними особливостями, які необхідно враховувати до початку та після кондиціювання. Це відпрацьоване ядерне паливо (ВЯП), для якого в першу чергу повинна бути проведена попередня підготовка та його характеристика [8]. До цієї групи включають такі види ВАР: некондиційоване й кондиційоване ядерне паливо; рідкі ВАР; кондиційовані ВАР після переробки ВЯП. Залежно від обраного методу захоронення елементи ВЯП можуть бути зібрані безпосередньо в контейнері без будь-якого подальшого кондиціювання. У цілому кондиціювання включає механічні процеси, такі як розбирання паливних елементів до паливних стрижнів та упакування їх або повністю, або розрізаними на частини в контейнер для захоронення. Кондиціювання ВЯП може альтернативно включати розчинення ВЯП та іммобілізацію одержуваної рідини у відповідній матриці або укладання форми відходів у контейнери. Процеси переробки та кондиціювання ВЯП схожі з процесами іммобілізації рідких ВАР (див. таблицю). У документах МАГАТЕ [36–38] особлива увага приділяється заходам із забезпечення безпеки щодо критичності ВАР. Рекомендується перевірити оцінки вигорання і теплотворної здатності ВЯП, обов'язково враховувати геометричну конфігурацію матеріалів, що діляться, їхні концентрації, загальну інвентарну кількість і присутність відбивачів і сповільнювачів. Слід також оцінювати наслідки подій, що можуть під час виконання робіт призвести до порушення конфігурації палива, перерозподілу або зміни геометричної конфігурації матеріалу сповільнювача, введення матеріалу сповільнювача або змін конфігурації нейтронних поглиначів у результаті

внутрішніх або зовнішніх вихідних подій, таких як надходження води. Якщо в цих умовах підкритичність не може бути забезпечена, МАГАТЕ рекомендує передбачати запобіжні заходи, такі як встановлення експлуатаційних меж щодо кількості матеріалів, що оброблюються одночасно.

У таблиці не відображені методи кондиціювання дуже специфічного ВАВ, яким є реакторний графіт і який становить переважну частину накопичених у світі ТРВ. Радіоактивність графітової кладки реактора, що знімається з експлуатації, визначається продуктами активації графіту і його домішок, а також елементами ядерного палива та продуктів його поділу, що проникають у графітову кладку. Це наслідок позаштатних подій, пов'язаних із порушенням герметичності твелів і руйнуванням тепловидільних збірок, що призводить до утворення дрібних частинок і фрагментів палива, що залишаються в графітовій кладці. Ділянки графітової кладки, що знаходяться на відстані від аварійно пошкоджених місць, належать, як правило, до САВ. Для кондиціювання їх рекомендують обмежитися консервацією поверхонь графітових блоків, їхньою контейнеризацією з подальшою ізоляцією від навколишнього середовища. Відходи графіту у вигляді незруйнованих блоків і втулок містять тільки продукти активації і є хімічно стійким матеріалом, що міцно утримує в своїй решітці ізотоп ^{14}C .

У роботі [39] наведено основні технологічні операції з кондиціювання ВАВ, які містять реакторний графіт, під час яких мають бути надійно ізольовані від навколишнього середовища такі радіонукліди, як ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{243}Am , ^{244}Cm , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{14}C і актиніди. Це досягається шляхом іммобілізації їх у структуру довговічних сполук, придатних для екологічно безпечного захоронення. У роботі [39] розглянуті наукові та технологічні аспекти застосування карбідоксидного металокерамічного матричного матеріалу та показано, що синтезований композит надійно ізолює радіонукліди ВАВ від навколишнього середовища, а запропонована технологія може мати високі техніко-економічні показники. Тестування отриманого кінцевого продукту продемонструвало високі показники стійкості до вилугування радіонуклідів (^{137}Cs — 10^{-5} – 10^{-6} г/(см 2 · добу); актиніди — 10^{-7} г/(см 2 · добу)) як результат їхньої міцної фіксації в структурі карбідоксидної матриці.

Підсумовуючи огляд методів і технологій кондиціювання РАВ, необхідно підкреслити таке. До сьогодні проведено величезний обсяг дослідницьких робіт,

метою яких була розробка надійних кінцевих форм відходів, що направляються на тимчасове зберігання або захоронення. Попередня класифікація матричних матеріалів, що застосовуються для іммобілізації РАВ, за результатами проведеного в роботі аналізу опублікованих інформаційних матеріалів подана в таблиці. Але не менш важливим завданням, що вирішувалося під час розробки такої технології кондиціювання, було визначення оптимального матеріального складу матриць, у тому числі для вітрифікації (оскловування) РАВ. Цей важливий аспект проблеми не є темою цієї роботи, але її планується розглянути в наступній публікації, присвяченій аналізу відомих технічних рішень, що не увійшли до цього огляду.

Висновки

Відповідно до вимог і рекомендацій МАГАТЕ в системі поводження з РАВ повинні існувати дві складові, нерозривно пов'язані одна з одною, — політика, яка встановлює принципи поводження з РАВ, і стратегія, яка має передбачати методи та підходи для здійснення цієї політики. У різних країнах кондиціювання РАВ є невід'ємною частиною системи комплексного поводження з РАВ, що включає операції, у процесі яких вони мають бути переведені у форму, яка забезпечує хімічну, термічну і радіаційну стійкість і є стабільною для подальшого їхнього транспортування, зберігання та захоронення.

Серед відомих на сьогодні методів кондиціювання РАВ найбільш відпрацьованим у промислових масштабах є метод іммобілізації, що реалізується в трансформації відходів у тверду форму за допомогою процесів їхнього затвердіння після включення в будь-яку матрицю або в герметичні оболонки. Радіоактивні компоненти можуть бути іммобілізовані в матеріал матриці за допомогою двох основних процесів: зв'язування їх у матеріал на атомному рівні (хімічне включення) або фізичне оточення та ізоляція (інкапсуляція). Для іммобілізації РАВ відпрацьовано технології з використанням таких типів матричних матеріалів, як органічні (бітум, полімери); неорганічні (цемент, скло, кераміка, склокераміка); металеві й композиційні.

Список використаної літератури

1. Енергетична стратегія України на період до 2035 року «Безпека, енергоефективність, конкурентоспроможність» [Схвалено розпорядженням Кабінету Міністрів]

- України від 21 квітня 2023 р. № 373-р]. Режим доступу: https://www.nas.gov.ua/siaz/Ways_of_development_of_Ukrainian_science/article/15036.3.012.pdf)
2. Снятие с эксплуатации ядерных энергетических установок / А. В. Носовский, В. Н. Васильченко, А. А. Ключников, Я. В. Яценко; под ред. А. В. Носовского. — Киев : Техника, 2005. — 288 с.
3. Енергія для розвитку України. Нефінансовий звіт 2020. — Київ: ДП «НАЕК «Енергоатом», 2020. — 162 с. — Режим доступу: <https://old.energoatom.com.ua/parts/pdf-file/nonfinreport2020.pdf>).
4. Ольховик Ю. О. Сольовий плав як визначальний чинник розвитку системи кондиціонування рідких радіоактивних відходів // Ядерна енергетика та довкілля. — 2022. — Вип. 24 (2). — С. 37–42. doi.org/10.31717/2311-8253.22.2.4.
5. Политика и стратегии обращения с радиоактивными отходами. NW-G-1.1. — Вена : МАГАТЭ, 2012. — 96 с.
6. Технологические и организационные аспекты обращения с радиоактивными отходами. IAEA-TCS-27. — Вена : МАГАТЭ, 2005. — 230 с.
7. Selection of technical solution for the management of radioactive waste. IAEA-TECDOC-1817. Vienna : IAEA, 2017. — 114 p.
8. Обращение с радиоактивными отходами высокого уровня активности перед их захоронением. Руководство по безопасности. WS-G-2.6. — Вена : МАГАТЭ, 2005. — 80 с.
9. Терминология, используемая в области ядерной безопасности и радиационной защиты. Глоссарий МАГАТЭ по вопросам безопасности. — Вена : МАГАТЭ, 2007. — 303 с.
10. Применение концепций исключения, изъятия и освобождения от контроля. Руководство по безопасности № RS-G-1.7. — Вена : МАГАТЭ, 2006. — 47 с.
11. Classification of radioactive waste. General safety guide. IAEA Safety Standard No. GSG-1. — Vienna : IAEA, 2009. — 68 p.
12. Классификация радиоактивных отходов. Общее руководство по безопасности GSG-1. — Вена: МАГАТЭ, 2014. — 75 с.
13. Handbook of advanced radioactive waste conditioning technologies No. 12 / ed. by M. I. Ojovan. — Cambridge : Woodhead Publishing Limited, 2011. — 512 p.
14. Conditioning of low- and intermediate-level radioactive wastes. Technical Report No. 222. — Vienna : IAEA, 1983. — 201 p.
15. Improved cement solidification of low and intermediate level radioactive wastes. Technical Report No. 350. — Vienna : IAEA, 1993. — 121 p.
16. Immobilization of low and intermediate level radioactive wastes with polymers. Technical Report No. 289. — Vienna : IAEA, 1988. — 115 p.
17. Bituminization Processes to Condition Radioactive Wastes. Technical Report No. 352. — Vienna : IAEA, 1993. — 96 p.
18. Radioactive waste management and contaminated site clean-up: Processes, technologies and international experience / ed. by W. Lee, M. Ojovan, C. Jantzen. — Cambridge : Woodhead Publishing Limited, 2013. — 912 p.
19. Forms Technology and Performance: Final Report. Committee on Waste Forms Technology and Performance. National Research Council. Washington : National Academies Press, 2011. — 340 p.
20. An introduction to nuclear waste immobilisation. 3rd edition / M. I. Ojovan, W. E. Lee, S. N. Kalmykov. — Amsterdam : Elsevier, 2019. — 512 p.
21. Immobilisation of radioactive waste in glasses, glass composite materials and ceramics / W. E. Lee, M. I. Ojovan, M. C. Stennett, N. C. Hyatt // Advances in Applied Ceramics. — 2006. — Vol. 105 (1). — P. 3–12.
22. Ojovan M. I. Glassy wasteforms for nuclear waste immobilisation / M. I. Ojovan, W. E. Lee // Metallurgical and Materials Transactions A. — 2011. — Vol. 42A. — P. 837–851. — doi.org/10.1007/s11661-010-0525-7.
23. Burakov B. E. Crystalline materials for actinide immobilisation / B. E. Burakov, M. I. Ojovan, W. E. Lee. — London : Imperial College Press, 2010. — 198 p.
24. Donald I. W. The immobilization of high level radioactive wastes using ceramics and glasses. Review / I. W. Donald, B. L. Metcalfe, R. N. J. Taylor // J. Mat. Science. — 1997. — Vol. 32. — P. 5851–5887.
25. Cementitious materials for nuclear waste immobilization / A. R. O. Rahman, R. Z. Rahimov, N. R. Rahimova, M. I. Ojovan. — Chichester : Wiley, 2015. — 258 p.
26. Современные методы получения матричных материалов для иммобилизации радиоактивных отходов / Д. Г. Демянюк, О. Ю. Долматов, Д. С. Исаченко [и др.] // Изв. высш. учеб. заведений. — 2013. — Т. 56, № 4/2. — С. 124–128.
27. Materials for Nuclear Waste Immobilization / ed. by M. I. Ojovan, N. C. Hyatt. — 2019. — Basel : MDPI. — 220 p. — doi.org/10.3390/books978-3-03921-847-9.
28. Glasses for immobilization of low and intermediate level radioactive waste / N. P. Laverov, B. I. Omel'yanenko, S. V. Yudinsev, [et al.] // Geology of Ore Deposits, 2013. — Vol. 55, No. 2. — P. 71–95.
29. Модификация состава алюмофосфатных стекол с имитаторами ВАО для повышения их устойчивости. 1. Влияние модификаторов на вязкость и кристаллизационную способность расплавов / П. В. Козлов,

- М. Б. Ремизов, К. В. Мартынов [и др.] // Вопросы радиационной безопасности. — 2019. — № 1. — С. 3–15.
30. Кононенко О. А. Имобилизация кубовых остатков АЭС в алюминатные и гипсоалюминатные матрицы / О. А. Кононенко, А. Д. Алиев, Ю. С. Павлов [и др.] // Вопросы радиационной безопасности. — 2016. — Вып. 4 (84). — С. 46–56.
 31. Похитонов Ю. А. Перспективы полимерных материалов для ЖРО / Ю. А. Похитонов // Радиоактивные отходы. — 2019. — Вып. 3 (8). — С. 53–60. — doi.org/10.25283/2587-9707-2019-3-53-60.
 32. Похитонов Ю. А. Применение полимеров в процессах имобилизации жидких органических радиоактивных отходов / Ю. А. Похитонов // Радиоактивные отходы. — 2019. — Вып. 4 (9). — С. 91–100. — doi.org/10.25283/2587-9707-2019-4-91-100.
 33. Immobilization of radioactive waste in cement: Iodine binding by cementitious materials under highly alkaline conditions / R. Druteikienė, J. Šapolaitė, Ž. Ežerinskis, [et al.] // Lith. J. Phys. — 2015. — Vol. 55, No. 1. — P. 54–62.
 34. Glasses, glass-ceramics and ceramics for immobilization of highly radioactive nuclear wastes / ed. by D. Caurant. — Paris: Nova Science Publishers, 2009. — 445 p.
 35. Wang Li. Ceramics for high level radioactive waste solidification / Li Wang, T. Liang // Journal of Advanced Ceramics. — 2012. — Vol. 1 (3). — P. 194–203. — doi.org/10.1007/s40145-012-0019-8.
 36. Design of spent fuel storage facilities. Safety Series No. 116. — Vienna : IAEA, 1994. — 50 p.
 37. Operation of spent fuel storage facilities. Safety Series No. 117. — Vienna : IAEA, 1994. — 68 p.
 38. Safety assessment for spent fuel storage facilities. Safety Series No. 118. — Vienna : IAEA, 1994. — 84 p.
 39. Коновалов Э. Е. Кондиционирование высокоактивных отходов реакторного графита с использованием самораспространяющегося высокотемпературного синтеза / Э. Е. Коновалов, В. С. Наумов, А. И. Ластов // Известия вузов. Ядерная энергетика. — 2014. — № 4. — С. 82–91.

O. V. Mykhailov, V. M. Bezmylov

*Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants,
NAS of Ukraine, 36a, Kirova st., Chornobyl, 07270, Ukraine*

Conditioning of High-Level Solid Radioactive Waste in Nuclear Fuel Cycle. Review of Methods and Procedures. Part 1

This article provides an overview of global experience of radioactive waste (RAW) conditioning in terms of organizing and methodological approaches in using this RAW processing method, which were generalized in the documents of International Atomic Energy Agency (IAEA), in various analytical materials and scientific publications. Based on the analysis of available information materials, in different countries with developed nuclear fuel cycle, the conditioning is an integral part of the system of integrated RAW management, which includes the operations, during which they have to be transferred to a form ensuring their stable chemical, thermal and radiation resistance for further transportation, storage and burial. The list of RAW produced during NPP operation and belonging to the conditioning, combines a variety of materials, which differ in their shape, concentration of nuclide activities and contamination type. The levels of specific activity of nuclides in the RAW vary from very low levels to extremely high levels inherent to spent nuclear fuel, which requires providing conditions of their subcriticality underway technological operations. It is stated that the most worked out method of RAW conditioning within the industrial scale is immobilization, which is aimed at wastes transformation into a solid form using the processes of their solidification after inclusion in any matrix, or inclusion in sealed casings. Radioactive components can be immobilized into a matrix material based on bitumen, polymers, cement, glass, ceramics, and glass ceramics by using two main processes: binding them into a material at atomic level — chemical inclusion or physical environment and isolation — encapsulation.

Keywords: NPP, radioactive wastes, IAEA, conditioning, immobilization, waste form, matrix materials.

References

1. *Energy strategy of Ukraine for the period up to 2035 “Security, energy efficiency, competitiveness”*. Approved by the Order of the Cabinet of Ministers of Ukraine, dated 21.04.2023, no. 373-p. Available at: www.nas.gov.ua/siaz/Ways_of_development_of_Ukrainian_science/article/15036.3.012.pdf. (in Ukr.)
2. Nosovskyi A. V., Vasilchenko V. N., Klyuchnikov A. A., Yashchenko Ya. V. (2005). *Snyatiye s ekspluatatsii yadernykh energeticheskikh ustanovok* [Decommissioning of nuclear power plants]. Kyiv: Tekhnika, 288 p. (in Rus.)
3. *Energy for the development of Ukraine. Non-financial world 2020*. SE NNEGC “Energoatom”, 162 p. (in Ukr.)
4. Olkhoviyk Yu. O. (2022) [Salt melt as a determining factor in the conditioning system development of liquid radioac-

- tive waste of NPPs in Ukraine]. *Nuclear Power and the Environment*, vol. 2 (24), pp. 37–42. (in Ukr.)
5. *Policies and strategies for radioactive waste management*. NW-G-1.1. Vienna : IAEA, 2012, 96 p. (in Rus.)
6. *Technological and organizational aspects of radioactive waste management*. IAEA-TCS-27. Vienna: IAEA. 2005. 230 p. (in Rus.)
7. *Selection of technical solution for the management of radioactive waste*. IAEA-TECDOC-1817. Vienna: IAEA, 2017, 114 p.
8. *Management of high level radioactive waste before disposal. General safety guide*. IAEA Safety Standard No. WS-G-2.6. Vienna : IAEA, 2005, 80 p. (in Rus.)
9. *Terminology used in the field of nuclear safety and radiation protection*. IAEA Safety Glossary. Vienna: IAEA, 2007, 303 p. (in Rus.)
10. *Application of the concepts of exception and release from control. General safety guide*. IAEA Safety Standard No. RS-G-1.7. Vienna: IAEA, 2006, 47 p. (in Rus.)
11. *Classification of Radioactive Waste. General safety guide*. IAEA Safety Standard No. GSG-1. Vienna: IAEA, 2009, 68 p.
12. *Classification of radioactive waste. General safety guide*. IAEA Safety Standard No. GSG-1. Vienna: IAEA, 2014, 75 p. (in Rus.)
13. Ojovan M. I. (ed.) (2011). *Handbook of advanced radioactive waste conditioning technologies No 12*. Cambridge: Woodhead Publishing Limited, 512 p.
14. *Conditioning of low- and intermediate-level radioactive wastes*. Technical Report No. 222. Vienna: IAEA, 1983, 201 p.
15. *Improved cement solidification of low and intermediate level radioactive wastes*. Technical Report No. 350. Vienna: IAEA, 1993, 121 p.
16. *Immobilization of low and intermediate level radioactive wastes with polymers*. Technical Report No. 289. Vienna: IAEA, 1988, 115 p.
17. *Bituminization processes to condition radioactive wastes*. Technical Report No. 352. Vienna: IAEA, 1993, 96 p.
18. Lee W., Ojovan M., Jantzen C. (2013). *Radioactive waste management and contaminated site clean-up: Processes, technologies and international experience*. Cambridge: Woodhead Publishing Limited, 912 p.
19. Committee on Waste Forms Technology and Performance. National Research Council (2011). *Forms technology and performance: Final Report*. Washington: National Academies Press, 340 p.
20. Ojovan M. I., Lee W. E., Kalmykov S. N. (2019). *An introduction to nuclear waste immobilization*. 3rd Edition. Amsterdam: Elsevier, 512 p.
21. Lee W. E., Ojovan M. I., Stennett M. C., Hyatt N. C. (2006). Immobilisation of radioactive waste in glasses, glass composite materials and ceramics. *Advances in Applied Ceramics*, vol. 105 (1), pp. 3–12.
22. Ojovan M. I., Lee W. E. (2011). Glassy wasteforms for nuclear waste immobilization. *Metallurgical and Materials Transactions A.*, vol. 42A, pp. 837–851. doi.org/10.1007/s11661-010-0525-7.
23. Burakov B. E., Ojovan M. I., Lee W. E. (2010). *Crystalline materials for actinide immobilisation*. London: Imperial College Press, 198 p.
24. Donald I. W., Metcalfe B. L., Taylor R. N. J. (1997). The immobilization of high level radioactive wastes using ceramics and glasses. *Review. J. Mat. Science*, vol. 32, pp. 5851–5887.
25. Rahman A. R. O., Rahimov R. Z., Rahimova N. R., Ojovan M. I. (2015). *Cementitious materials for nuclear waste immobilization*. Chichester: Wiley, 258 p.
26. Demyanyuk D. G., Dolmatov O. Yu., Isachenko D. S., Kuznetsov M. S. (2013). [Modern methods for obtaining matrix materials for immobilization of radioactive waste]. *Izvestiya Vysshikh Uchebnykh zavedeniy* [News of Higher Educational Institutions], vol. 56, no. 4/2, pp. 124–128. (in Rus.)
27. Ojovan M. I., Hyatt N. C. (eds). (2019). *Materials for nuclear waste immobilization*. Basel: MDPI, 220 p. doi.org/10.3390/books978-3-03921-847-9.
28. Laverov N. P., Omel'yanenko B. I., Yudinsev S. V., Stefanovsky S. V., Nikonov B. S. (2013). Glasses for immobilization of low and intermediate level radioactive waste. *Geology of Ore Deposits*, vol. 55, no. 2, pp. 71–95.
29. Kozlov P. V., Remizov M. B., Martynov K. V. (2019). [Modification of the composition of aluminophosphate glasses with HLW simulators to increase their stability. 1. The influence of modifiers on the viscosity and crystallization ability of melts]. *Voprosy radiatsionnoi bezopasnosti* [Radiation Safety Problems], no. 1, pp. 3–15. (in Rus.)
30. Kononenko O. A., Aliev A. D., Pavlov Ju. S. (2016). [Immobilization of NPP bottom residues into aluminate and gypsum-aluminate matrices]. *Voprosy radiatsionnoi bezopasnosti* [Radiation Safety Problems], vol. 84, no. 4, pp. 46–56. (in Rus.)
31. Pokhitonov Yu. A. (2019). [Perspectives of using polymer materials for liquid radioactive solutions treatment purposes]. *Radioaktivnye othody* [Radioactive waste], vol. 8, no. 3, pp. 53–60. doi.org/10.25283/2587-9707-2019-3-53-60. (in Rus.)
32. Pokhitonov Yu. A. (2019). [Application of polymer materials for organic liquid radioactive waste immobilization]. *Radioaktivnye othody* [Radioactive waste], vol. 9, no. 4, pp. 91–100. doi.org/10.25283/2587-9707-2019-4-91-100. (in Rus.)

33. Druteikienė R., Šapalaitė J., Ežerinskis Ž., Naujalis E., Puzas A. (2015). Immobilization of radioactive waste in cement: Iodine binding by cementitious materials under highly alkaline conditions. *Lith. J. Phys.*, vol. 55, no. 1, pp. 54–62.
34. Caurant D., Loiseau P., Majérus O., Aubin-Chevaldonnet V., et al. (2009). *Glasses, glass-ceramics and ceramics for immobilization of highly radioactive nuclear wastes*. Paris: Nova Science Publishers, 445 p.
35. Wang Li, Liang T. (2012). Ceramics for high level radioactive waste solidification. *Journal of Advanced Ceramics*, vol. 1(3), pp. 194–203. doi.org/10.1007/s40145-012-0019-8.
36. *Design of Spent Fuel Storage Facilities*. Safety Series No. 116. Vienna: IAEA, 1994, 50 p.
37. *Operation of Spent Fuel Storage Facilities*. Safety Series No. 117. Vienna: IAEA, 1994, 68 p.
38. *Safety Assessment for Spent Fuel Storage Facilities*. Safety Series No. 118. Vienna: IAEA, 1994, 84 p.
39. Konovalov E. E., Naumov V. S., Lastov A. I. (2014). [Conditioning of high level reactor core graphite waste using self-propagating high temperature synthesis]. *Izvestija vuzov. Jadernaja energetika* [News from universities. Nuclear power energy], no. 4, pp.82–91 (in Rus.)

Надійшла 11.12.2023

Received 11.12.2023