

ВОПРОСЫ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ РЕГЕНЕРИРОВАННОГО УРАНА В ИЗГОТОВЛЕНИИ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА НА ЗАВОДЕ В ЭЛЕКТРОСТАЛИ

*Андрей Кислов, Александр Титов, Александр Дмитриев,
Андрей Синцов и Александр Романов*

АННОТАЦИЯ

Опасения потенциальной нехватки природного урана и возрастания его стоимости, так же, как и накопление запасов регенерированного урана, породили интерес к использованию регенерированного урана в процессе изготовления топливных сборок для энергетических реакторов. Однако, использование регенерированного урана в процессе изготовления топлива создает значительные проблемы с точки зрения радиационной безопасности, поскольку такой уран содержит радиоактивные изотопы, связанные с ураном-232. Для изучения возможности применения регенерированного урана в процессе изготовления топлива на Машиностроительном заводе в Электростали была исследована возможность использования урана с концентрацией урана-232 до 5 частей на миллиард. Результаты опытного проекта позволяют предположить, что крупномасштабное производство реакторного топлива с высокими концентрациями урана-232 потребует существенного изменения технологических процессов и процедур обращения и хранения топлива, изготовленного из такого урана.

Андрей Кислов и Александр Титов работают в Федеральной службе по экологическому, технологическому и атомному надзору (Ростехнадзор), Москва, Россия.

Александр Дмитриев и Андрей Синцов работают в Научно-техническом центре ядерной и радиационной безопасности, Москва, Россия.

Александр Романов работает на Электростальском машиностроительном заводе, Электросталь, Московская область, Россия.

Почтовый адрес для корреспонденций: Александр М. Дмитриев, Научно-технический центр ядерной и радиационной безопасности, Малая Красносельская ул., 2/8, строение 5, 107140, Москва, Россия.

Адрес электронной почты: dmitriev@secnrs.ru

Статья получена 18 апреля 2012 года и принята к публикации 22 мая 2013 года.

Опасения потенциальной нехватки природного урана и возрастания его стоимости, так же, как и накопление запасов регенерированного урана, породили интерес к использованию регенерированного урана в процессе изготовления топливных сборок для энергетических реакторов. В России доля природного урана (сорт «Н») в изготовлении топлива исторически была относительно малой. Большая часть урана сначала проходила через реакторы для производства плутония. Такой уран, извлеченный во время переработки и обогащенный, называется ураном сорта «РС». В его состав входят изотопы уран-236 и уран-232, отсутствующие в природном уране. Оба изотопа влияют на процесс изготовления топлива. Уран-236 влияет на реактивность топлива, что требует большего обогащения ураном-235. Присутствие урана-232 значительно увеличивает радиационный фон материала, что создает проблемы во время изготовления сборок свежего топлива и последующего обращения с этими свежими топливными сборками на атомных электростанциях. Основной вклад в радиационный фон вносят продукты распада урана-232 (торий-228, радон-220, свинец-212, таллий-208 и т.п.), которые включают в себя источники жесткого гамма-излучения с энергиями до 2,6 МэВ.

Обращение с гексафторидом урана сорта «РС», также как и с топливными элементами, изготовленными с ним, требуют принятия мер, которые ограничили бы содержание урана-232 в сырьевом материале изготавливающих топливо заводов. Содержание урана-232 было ограничено на уровне около $1 \cdot 10^{-7}$ процента (1 часть на миллиард) на тех производящих топливо заводов, на которых выполнялись ручные операции по шлифованию и сортировке таблеток из диоксида урана, контроля их формы, подгонки топливных элементов, а также операций по изготовлению диоксида урана из гексафторида урана. На эти операции приходится существенная часть

накопленной дозы¹.

Открытие перерабатывающего завода РТ-1, который перерабатывал отработавшее топливо реакторов ВВЭР-440, создало запасы переработанного урана, который был получен из топлива, подвергшегося воздействию более высокого выгорания с более жестким нейтронным спектром, по сравнению с топливом промышленных реакторов. Уран, выделенный из облученного топлива энергетических реакторов, обозначается как уран сорта «РТ». Следует отметить, что завод РТ-1 обрабатывает не только отработавшее топливо реакторов ВВЭР-440, но также и топливо исследовательских, транспортных и военно-морских реакторов, реактора БН-600, и топливных элементов высокого обогащения из промышленных реакторов. Поэтому уран сорта «РТ» включает в себя довольно широкий ассортимент урановых материалов.

В России есть два завода, производящих свежее топливо для реакторов атомных электростанций – это машиностроительный завод в Электростали (МСЗ) и Новосибирский завод химических концентратов (НЗХК). Начиная с 1996 года, завод в Электростали стал использовать в своем производственном процессе некоторое количество регенерированного урана сорта «РТ».

Для того, чтобы увеличить количество регенерированного урана, используемого в изготовлении топлива, в 2002 году ОАО «ТВЭЛ» утвердило «Программу радиационно-гигиенического обоснования перехода предприятий ОАО «ТВЭЛ» регенерированный уран с содержанием урана-232 до $2,2 \cdot 10^{-7}$ массовых процентов». Эта программа потребовала также провести оценку возможности использования регенерированного урана с содержанием урана-232 до $5 \cdot 10^{-7}$ массовых процентов (5 частей на миллиард).

На первом этапе этой работы Государственный научный центр «Институт биофизики» (ГНЦ ИБФ) разработал прогноз радиационной обстановки на главных технологических участках производства топлива в предположении содержания урана-232 до $2 \cdot 10^{-7}$ массовых процентов. Результаты этой работы позволили экспериментальное применение регенерированного урана с содержанием урана-232 до 2,2 частей на миллиард².

В 2002 году завод в Электростали получил лицензию для использования регенерированного урана с содержанием урана-232 до 2 частей на миллиард в процессе изготовления сборок³. Когда началась работа, эффективная годовая доза для персонала, непосредственно вовлеченного в производство (персонала категории А), не показала существенного увеличения. В 2004 году средняя годовая доза составляла 3 мЗв, и большая часть персонала категории А (около 85 процентов) накапливала эффективную годовую дозу менее 5 мЗв. Для примерно 15% персонала категории А была обнаружена эффективная доза в диапазоне 5 – 20 мЗв (верхний предел дозы для персонала категории А равен 20 мЗв в год).

На основании этого опыта, завод в Электростали и ее материнская компания ТВЭЛ предприняли исследования возможности увеличения концентрации урана-232 в сырьевых материалах до 5 частей на миллиард. Переход к более высоким концентрациям урана-232 потребовал от регуляторов перед выпуском лицензии рассмотреть несколько дополнительных факторов. Ключевыми факторами были повышение уровня гамма-излучения на производственных участках и более высокие уровни загрязнения воздуха аэрозолями. Другими факторами, пренебрежительно малыми при низких концентрациях урана-232, которые также нужно было принимать во внимание, – это облучение кожи (в частности, кистей рук и линз хрусталика), и дозы радиации, относящиеся к активности радона-220. В качестве условия процесса лицензирования, завод в Электростали должен был установить приборы и разработать процедуры для точного измерения эффективных доз радиации для персонала и для населения в целом⁴. Регулирующее агентство, Ростехнадзор, потребовало от завода провести измерения эквивалентных доз для линз хрусталика, ладоней рук, ступней и кожи персонала. Кроме того, оно потребовало мониторинга альфа-активности для каждого радиоактивного нуклида в жидких радиоактивных отходах, содержания радионуклидов в почве, строительных материалов, в воздухе на производственных участках, буферной зоне и в окружающих завод жилых районах⁵.

В 2004 году завод в Электростали провел оценку радиационной обстановки на основных технологических участках, вовлеченных в обработку урана сортов «РС» и «РТ». В качестве части этой оценки завод и регуляторы сравнили внешние дозы облучения во время производства порошка диоксида урана по двум технологиям, технологии «Сатурн» и сухой конверсии. Технология «Сатурн», основанная на восстановлении в газовом пламени, была основным процессом конверсии, используемым на заводе в Электростали до внедрения новой технологии сухой конверсии в 2002 году. Эта технология запатентована компанией «Сименс», и она используется на заводе в Лингене, Германия. Процесс сухой конверсии в высокой степени автоматизирован, что позволяет использовать регенерированный уран с более высоким содержанием урана-232 без увеличения радиационной нагрузки на персонал.

Радиационные измерения, проведенные на различных частях тела: голове, груди, нижней части живота, ступнях и кистях рук, показали, что за исключением кистей рук, тело облучается однородно. Средние мощности доз на установках технологии «Сатурн» были равны $2,4 \pm 0,4$ мкЗв/час, а на участках процесса сухой конверсии средние мощности доз были равны $0,5 \pm 0,08$ мкЗв/час.

Сравнительно однородное облучение персонала было также зарегистрировано на рабочих местах, где работали с топливными таблетками и с материалами, возвращенными для переработки. Средняя по всем операциям мощность дозы была равна $3,3 \pm 2,6$ мкЗв/час. Мощности доз вблизи от контейнеров с гексафторидом урана были в два-три раза больше. Мощности доз на кистях рук были в полтора раза выше.

На линии производства топливных таблеток значения мощности доз измерялись в характеристических точках головы, груди, нижней части живота, ступней и кистей рук. Самые высокие уровни мощности дозы гамма-излучения были зарегистрированы на участках накопления сырьевых материалов, промежуточных продуктов и конечных продуктов: в контейнерах с порошком диоксида урана и топливными таблетками, и на складе промежуточного хранения конечной продукции. Особенно высокие уровни были зарегистрированы в хранилище забракованной продукции поблизости от контейнеров с бракованными таблетками. Мощности доз гамма-излучения могли достигать 200 мкЗв/час. Среди технологических операций самая высокая радиационная нагрузка наблюдалась в пункте монтажа топливныхборок. Облучение персонала на этих рабочих местах было неоднородным; наибольшие дозы облучения получали голова, грудь и кисти рук.

Следует отметить, что облучение во время технологических операций не было единственным источником радиационной нагрузки персонала. Другим важным источником была объемная активность радионуклидов в воздухе. Ранние исследования, проведенные в 1996 году с ураном сорта РТ, показали присутствие в воздухе как тория-228, так и плутония. В исследовании 2004 года с ураном сорта РС, все образцы, взятые на рабочих местах, вовлеченных в конверсию и производство таблеток, показали постоянное присутствие тория-228. Концентрация плутония была ниже порога обнаружения.

Измерения радиационных доз, выполненных в ходе работ с ураном, содержащим 2 части на миллиард урана-232, были использованы для оценки доз радиации для содержания урана-232 в 5 частей на миллиард. При оценке предполагалось, что уран был обогащен ураном-235 до уровня 2,6%, что соответствовало обогащению топлива реакторов РБМК. В зависимости от сорта урана, выбранного в качестве базового (от сортов Н и РС до сорта РТ), переход к урану с содержанием 5 частей на миллиард урана-232 должен был приводить к:

- увеличению мощности дозы гамма-излучения в 1,2 – 2,1 раза;
- увеличению активности радиоактивных аэрозолей в 1,9 – 3,8 раза;
- увеличению активности излучений за пределами производственных участков в 1,9 – 3,8 раза.

На основании этих оценок регуляторы определили, что для продолжения процесса лицензирования следует получить экспериментальные данные по радиационным нагрузкам при обработке партии регенерированного урана с содержанием урана-232 в 5 частей на миллиард с массой не менее 150 тонн. Кроме того, было решено, что обработка урана с содержанием урана-232 в 5 частей на миллиард потребует выполнения ряда условий:

- Время между производством гексафторида урана и получением топлива на реакторе не должно превышать полутора лет, чтобы ограничить накопление продуктов распада урана-232.
- Процесс производства топлива должен включать мониторинг тория-228 в гексафториде урана, порошке диоксида урана и топливных таблетках, так же как и в воздухе на рабочих участках и за их пределами.

Решение о начале переработки экспериментальной партии в 150 тонн урана с содержанием урана-232 в 5 частей на миллиард было принято в декабре 2004 года⁶. Гексафторид урана должен быть поставлен Сибирским химическим комбинатом (СХК) в Северске. Было принято решение использовать на стадии конверсии урана обе технологии («Сатурн» и «сухая конверсия»). Производственный процесс должен был включать изготовление таблеток из диоксида урана, топливных элементов и топливныхборок реакторов РБМК-1000, также как и топливныхборок легководных реакторов для «Фраматома»⁷.

В 2005 году Министерство здравоохранения формально утвердило опытный проект для переработки 150-тонной партии гексафторида урана сорта «Фм» с содержанием урана-232 до 5 частей на миллиард для изготовления топливныхборок для реакторов РБМК-1000⁸. Гексафторид урана сорта «Фм» производился на СХК при обработке регенерированного урана, поставляемого «Фраматомом». Этот уран извлекался из облученного топлива легководных реакторов со степенью выгорания до 40 МВт-день/кг. Средняя концентрация индивидуальных радионуклидов и их полной активности в гексафториде урана сорта «Фм», полученном в 2005 году, представлены в таблице 1. Материал, поставленный в форме закиси-окиси урана (U_3O_8), был очищен, преобразован в гексафторид, и слегка обогащен до 3% урана-235. Обогащение было больше 2,8%, обычно используемых в топливе РБМК из-за компенсации поглощения нейтронов ураном-236.

Таблица 1. Средние концентрации радионуклидов и их активности в гексафториде урана сорта «Фм», полученного ГХК в 2005 году. Полная активность испускающих гамма-лучи нуклидов равна $1,78 \cdot 10^5$ Бк/грамм урана.

Радионуклид	Среднее содержание радионуклида в массовых процентах	Процентная доля удельной активности	Удельная активность в Бк/грамм урана
Уран-232	$(4,82 \pm 0,05) \cdot 10^{-7}$	2,2	3987
Уран-234	$0,061 \pm 0,001$	79,1	140780
Уран-235	$2,96 \pm 0,01$	1,4	2136
Уран-236	$0,79 \pm 0,02$	10,6	18868
Уран-238	96,19	6,7	11944
Торий-228	–	0,08 – 0,11	140
Нептуний-237	–	$1,7 \cdot 10^{-5}$	0,03
Плутоний-238	–	$0,8 \cdot 10^{-5}$	0,015
Плутоний-239	–	$0,8 \cdot 10^{-5}$	0,015

Первый вопрос, возникший в опытном проекте с ураном сорта «Фм», относился к мощности дозы от контейнеров с гексафторидом урана. Анализ данных по гамма- и нейтронному излучению контейнеров показал, что:

- Мощность дозы гамма-излучения от полных контейнеров с гексафторидом урана сорта «Фм» прямо пропорционален времени, прошедшему с момента изготовления гексафторида урана.
- Мощность дозы гамма-излучения от опорожненных контейнеров выше, чем от контейнеров с гексафторидом урана, поскольку излучение от нелетучих изотопов, оставшихся в контейнере, больше не экранируется ураном.
- Мощность дозы нейтронного излучения от полных контейнеров с гексафторидом урана сорта «Фм» равна 15,5 мкЗв/час. Это в среднем в три раза больше, чем мощность дозы от опорожненных контейнеров.
- Нейтронное излучение во время работы с контейнерами с обогащенным гексафторидом урана образуется в (α, n) -реакции на ядрах фтора, и оно может возрасти при большом скоплении контейнеров в хранилище и при работе с ними.

Для уменьшения дозовой нагрузки на персонал во время работы с ураном, содержащим 5 частей на миллиард урана-232, завод в Электростали провел расширенную модернизацию своих производственных линий. Реализованные мероприятия включали:

- Минимизацию времени хранения контейнеров с гексафторидом урана.
- Уменьшение времени обработки топлива.
- Уменьшение времени хранения материала в промежуточном хранилище в цехах завода.
- Исключение некоторых операций контроля качества и оптимизация других.
- Модификация оборудования для уменьшения концентрации радиоактивных изотопов в воздухе.
- Модификация рабочих участков с целью исключения контакта рук с топливными таблетками.
- Выделение отдельных линий и участков для работы с ураном, содержащим 5 частей на миллиард урана-232.
- Оборудование персонала и рабочих участков новыми радиационными мониторами, позволяющими непрерывное измерение мощностей радиационной дозы.

Среди существенных результатов опытного проекта можно отметить относительно низкую концентрацию тория-228 в уране, загружаемом на линию производства топлива. Наблюдаемое значение было порядка величины ниже, чем оценки, сделанные во время предварительных исследований, которые предполагали, что содержание тория-228 будет соответствовать 140 Бк/грамм урана. Наиболее вероятно, что различие объясняется отсутствием переноса тория из баллонов во время испарения гексафторида урана в современном технологическом процессе. Кроме того, измерения не обнаружили накопления урана-232, тория-228 и их продуктов распада в оборудовании линии производства топлива. Реальные значения эффективных доз для персонала категории А равнялись 1,7, 1,68 и 1,66 мЗв/год в 2008, 2009 и 2010 годах соответственно.

Существенные модификации процессов, внедренные на заводе МСЗ, и результаты опытного проекта позволили регулятору, Ростехнадзору, дополнить действующую лицензию МСЗ разрешением обработки урана с концентрацией урана-232 до 5 частей на миллиард⁹.

В то же время, опытный проект продемонстрировал, что увеличение пропускной способности переработанного урана с высоким содержанием урана-232 потребует существенной модификации технологического процесса, поскольку относительно простые и непосредственные мероприятия, реализованные в опытном проекте, такие, как защитные экраны, герметическое уплотнение оборудования и сокращение времени присутствия персонала на рабочих участках в основном достигли своего предела.

Обращение с необлученным топливом, изготовленным из регенерированного урана, также представляет потенциальную проблему. Экспериментальная партия топливных сборок, изготовленных во время опытного проекта, была доставлена на Ленинградскую атомную электростанцию, на которой работают реакторы РБМК. Уран-эрбиевое топливо с обогащением в три процента было утверждено для применения в реакторе и для хранения на площадке реактора. Однако, применение урана с 5 частями урана-232 на миллиард значительно увеличило радиационную нагрузку на персонал, работающий с топливом на площадке реактора. Доза, связанная с топливом из регенерированного урана, может достигать примерно половины от максимально допустимой дозы. Ее доля будет увеличиваться при хранении топлива на площадке реактора. Например, для топлива, находящегося в хранилище в течение четырех лет, персонал на площадке хранения может достичь предела допустимой дозы в течение операций по приемке и доставке топлива, которые обычно занимают очень малую долю рабочего времени.

В целом, хотя завод МСЗ в Электростали продемонстрировал возможность ограниченного использования регенерированного урана с концентрацией урана-232 до 5 частей на миллиард, его опыт также показал, что мероприятия, принятые во время опытного проекта, по-видимому, достигли предела того, что может быть принято без существенной модификации завода. Переход к крупномасштабному производству реакторного топлива из урана с высокими концентрациями урана-232 потребует значительного изменения в процессе и процедурах хранения и обращения с топливом, изготовленном из такого урана.

ПРИМЕЧАНИЯ И ССЫЛКИ

1. Б.В. Никипелов, В.Б. Никипелов, «Судьбы уранового регенерата», Бюллетень по атомной энергии, 9 (2002): 34.
2. Эта работа проводилась в соответствии с положениями лицензии Госатомнадзора, заключениями санитарно-эпидемиологического аудита № 21 Центра государственного санитарно-эпидемиологического надзора (ЦГСЭН) Федерального медико-биологического агентства России с поддержкой ГНЦ ИБФ.
3. Лицензии Госатомнадзора № ГН-03-115-0885, ГН-03-115-0799.
4. Письмо от заместителя председателя Ростехнадзора № 7–48/451 от 8 июля 2004 года вице-президенту ОАО «ТВЭЛ».
5. «Стандарты радиационной безопасности», НРБ-99 СП 2.6.1.758–99 (Государственный главный санитарный инспектор Российской Федерации, 1999); «Сбор, обработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов, требования по безопасности», НП-019-2000 (Госатомнадзор, 2000); «Сбор, обработка, хранение и кондиционирование твердых радиоактивных отходов, требования по безопасности», НП-020-2000 (Госатомнадзор, 2000).
6. Техническое совещание представителей ОАО «ТВЭЛ», ФГУП «НИКИЭТ», ФГУП «ВНИИНМ», ОАО «ГХК», РНЦ «КИ», ФГУП «КПИ», ГНЦ «ИБФ», ФГУП «Росэнергоатом», «Ростехнадзор», ФУ «Медбиоэкстрем», проведенное 14 декабря 2004 года.
7. International Atomic Energy Agency, "Management of Reprocessed Uranium Current Status and Future Prospects", IAEA-TECDOC-1529, (February 2007), 50.
8. Разрешение № 32-028, датированное 21 декабря 2005 года.
9. Дополнение лицензии ОАО «ТВЭЛ» для работы ОАО «МСЗ» положениями с включением модификации № 3 было исполнено 19 октября 2009 года.