

УДК 621.039.73

Тритиевые проблемы при эксплуатации ядерных энергетических установок

Э. П. Магомедбеков, И. Л. Растунова

Российский химико-технологический университет им. Д. И. Менделеева,
г. Москва, Россия
eldar@muctr.ru

В последние годы в связи с планами ГК «Росатом» по строительству АЭС за рубежом проблема образования трития в реакторных установках различного типа и его возможного поступления в окружающую среду становится все более и более актуальной. В статье представлен анализ литературных данных и собственных исследований, посвященных проблемам образования трития на ядерных энергетических установках различного типа, способам его извлечения и хранения. Представлена универсальная концепция комплексной технологии обращения с тритийсодержащими отходами, способы извлечения трития из газовых и водных потоков, методы иммобилизации тритийсодержащих РАО. На основе проведенного анализа предложена концепция извлечения трития из тяжеловодного теплоносителя методом ректификации воды с последующим долговременным хранением тритиевого концентрата в виде DTO. Основными преимуществами данной концепции является безопасность процессов очистки и хранения тритийсодержащей тяжелой воды.

Введение

В последние годы в связи с планами ГК «Росатом» по строительству атомных электростанций (АЭС) за рубежом проблема образования трития в реакторных установках различного типа и его возможного поступления в окружающую среду становится все более и более актуальной.

Выделение проблемы трития в качестве отдельного направления обращения с техногенными радионуклидами обусловлено его специфическими особенностями, в первую очередь тем, что, являясь радиоактивным изотопом водорода, он в составе практически любых водородсодержащих веществ мо-

жет поступать в окружающую среду и организм человека. Вследствие своей генетической значимости, тритий отнесен к основным дозообразующим радионуклидам, его вклад в суммарную эффективную дозу облучения населения оценивается на уровне нескольких процентов. В связи с этим проводится мониторинг его содержания в водных ресурсах, атмосфере и биологических объектах на территориях стран, эксплуатирующих ядерные установки, уже введен или вводится контроль содержания трития в выбросах 99 % АЭС европейских стран.

При распаде тритий (${}^3\text{H}$, Т) испускает мягкие β -частицы ($E_{\text{макс}} = 18,6$ кэВ; $E_{\text{сред}} = 5,71$ кэВ; его период полураспада $\tau_{1/2} = 12,32$ года; удельная активность 356,3 ТБк/г); он образует стабильный изотоп ${}^3\text{He}$, при этом удельное тепловыделение составляет порядка 0,312 Вт/г. Средний свободный пробег β -частиц в воздухе равен 4,6 мм, в воде 0,9 мкм, в тканях организма человека 0,6 мкм [1–3]. Это означает, что тритий не представляет опасности, когда находится во внешней среде, однако при вдыхании, пероральном поступлении с пищей и водой, либо при проникновении через кожу он представляет опасность за счет внутреннего воздействия излучения. Скорость подкожного проникновения тритий-содержащей воды составляет $(1 \pm 0,3) \cdot 10^4$ Бк/(см²·мин), что значительно выше скорости поглощения газообразного трития, равной $2,7 \pm 0,6$ Бк/(см²·мин) [4]. В связи с этим, наибольшую опасность представляет тритий, входящий в состав воды, так как за счет водородных связей он может обмениваться с водородом воды и клеточных соединений организма, может быть усвоен молекулами ДНК и за счет внутреннего облучения повредить генетический аппарат клеток, провоцируя онкологические и некоторые другие заболевания [1–2, 4, 5]. Вследствие подвижности трития в виде НТО и значительного периода его полураспада, радионуклид при попадании в окружающую среду может мигрировать и распространяться на территориях, находящихся на значительном удалении от источника его поступления. Поэтому в странах, имеющих ядерные объекты, проводится обязательный мониторинг содержания трития в атмосфере, гидросфере и биологических объектах [2, 6–8].

Тритий бывает естественного и техногенного происхождения. При этом вклад различных источников поступления трития в его общее количество на Земле неодинаков (см. рис. 1).

В природе тритий образуется в верхних слоях атмосферы в результате взаимодействия космического излучения с ядрами кислорода и азота в количестве порядка $7,4 \cdot 10^4$ ТБк/год [2]. Возникающие при этом атомы трития образуют молекулы НТ, которые за счет реакции радиационного окисления и изотопного обмена переходят в НТО и в виде осадков попадают на поверхность земли, распределяясь между гидро-, страто- и литосферами [10]. С учетом распада, равновесное содержание трития оценивается в пределах от $1,2 \cdot 10^6$ до $4,5 \cdot 10^6$ ТБк, что при его удельной активности $0,96 \cdot 10^4$ Ки/г соответствует общему содержанию радионуклида 3,5–12,5 кг [1, 2, 8–11].

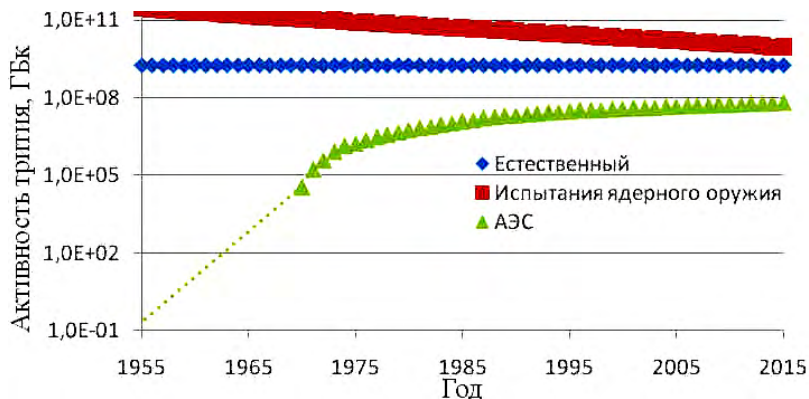


Рис. 1. Сравнение активности фонового и техногенного трития [9]

К техногенным источникам образования трития относят ядерные установки гражданского и военного назначения. По данным Агентства по ядерной энергии Организации экономического развития и сотрудничества, в развитых странах в начале 80-х годов XX века ежегодное количество выбросов трития гражданских ядерных энергетических и перерабатывающих установок достигало или несколько превышало данное значение, а основной причиной повышения содержания трития в окружающей среде стала оборонная деятельность. Так, за счет наземных испытаний ядерного оружия в 1954–1962 гг. поступление трития в окружающую среду существенно возросло и к началу 1970 г. составляло по данным различных источников от $1,6 \cdot 10^8$ до $2,4 \cdot 10^8$ ТБк, причем практически все это количество приходилось на северное полушарие [1, 2, 8, 10]. Другим источником являлись предприятия по производству ядерного оружия, за счет которых на пике холодной войны в 70-х и 80-х годах XX века ежегодные выбросы трития составляли до $2,8 \cdot 10^6$ ТБк [2]. После окончания «гонки вооружений» и прекращения наземных ядерных испытаний к 2007 г. содержание трития в окружающей среде сократилось примерно в 16 раз за счет естественного распада радионуклида [1–2, 8, 10]. Из рис. 1 видно, что, наряду со снижением уровня тритиевого загрязнения за счет испытаний ядерного оружия, наблюдается рост его поступления за счет атомных электростанций (АЭС).

В работе [11] приводятся результаты моделирования изменения содержания трития в окружающей среде к 2050 году с учетом увеличения мощности АЭС по оптимистическому, пессимистическому и усредненному сценариям (см. рис. 2).

Исходя из представленных на рис. 2 данных, авторы делают заключение о том, что к 2050 году глобальное содержание трития в окружающей среде может увеличиться примерно в 6 раз. При этом, если современный средний уровень трития в воде составляет 10–20 Бк/л, а годовая доза от такой воды оценивается на уровне примерно $0,3 \cdot 10^{-3}$ мЗв/год, то к 2050 году доза достигнет $2 \cdot 10^{-3}$ мЗв/год [11].

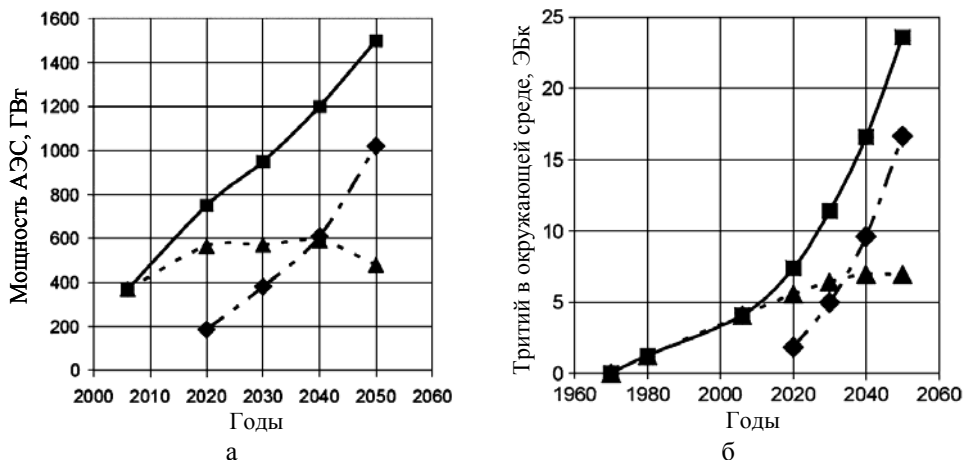


Рис. 2. Прогноз роста мощности АЭС (а) и накопления трития в окружающей среде (б) [11]

Таким образом, следует отметить, что, хотя вклад АЭС в общее содержание радионуклида в атмосфере примерно на 2 порядка меньше, чем за счет остальных источников (рис. 1), проблемы обращения с тритием для ядерных установок являются актуальными.

Образование трития на ядерных энергетических установках

В настоящее время основными источниками поступления техногенного трития в окружающую среду являются ядерные реакторы и заводы по переработке облученного ядерного топлива.

На рис. 3 представлены значения уровней концентраций трития на различных объектах ядерной индустрии и в окружающей среде по данным Департамента энергетики США (U.S. Department of Energy) на 2008 г. [12] Из рисунка видно, что концентрации трития в тяжеловодных реакторах на несколько порядков выше, чем в легководных. При этом следует отметить, что для американских тяжеловодных установок характерный уровень трития в десятки раз ниже, чем для канадских. Количество выбросов трития зависит от типа реактора, его параметров, мощности и т. п. В табл. 1 представлены значения суммарных газовых и жидких сбросов трития в виде НТО (по данным United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR)) для различных типов АЭС [2]. Из таблицы видно, что наибольшее выделение трития происходит на тяжеловодных реакторных установках. Следует отметить, что установленные нормативные пределы в Канаде на несколько порядков выше норм для стран Европы. При этом установленные предельные значения выбросов НТО существенно превышают приведенные в табл. 1. Так, в Германии установленный предел выбросов трития составляет 70 ТБк/год на каждый

ядерный объект, а для реактора Брюс в Канаде – 826000 ТБк/год [2]. Следовательно, установленные предельные значения фактически не ограничивают количество трития, сбрасываемого в окружающую среду при нормальной работе реакторов, т. к. в десятки, а в Канаде и в тысячи раз превышают реальные выбросы.

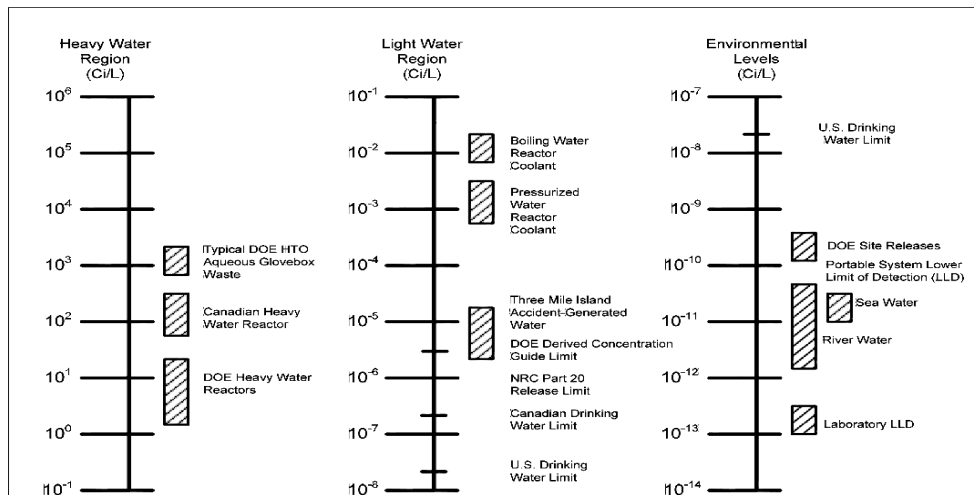


Рис. 3. Сравнение уровней концентрации трития в воде на объектах ядерной индустрии и окружающей среде [12]

Значительное превышение количества образующегося трития в тяжеловодных реакторах обусловлено прохождением в замедлителе и теплоносителе реакции радиационного захвата нейтрона дейтроном $D(n, \gamma)T$. Кроме того, если из замедлителя не удаляется радиогенный ${}^3\text{He}$, который в свою очередь является продуктом распада трития, то его реакция ${}^3\text{He}(n, p)t$ с нейтронами любых энергий будет воспроизводить тритий. Другие реакции, характерные для реакторов всех типов (тройное деление, ${}^{14}\text{N}(n, t){}^{12}\text{C}$ и др.), вносят существенно меньший вклад. [1, 10, 13]. В других типах реакторов в качестве охлаждающего агента используются различные материалы, например, в реакторах с водой под давлением и реакторах с кипящей водой используется обычная вода, а в усовершенствованных реакторах с газовым охлаждением используется CO_2 и графит в качестве охладителя и замедлителя соответственно. В данных типах реакторов тритий формируется по большей части как продукт деления третьего порядка; т. е. он образуется из U-235 и Pu-239, когда они подвергаются делению.

За счет постоянного облучения нейтронами в замедлителе и теплоносителе тяжеловодных реакторов происходит увеличения содержания трития в течение работы реактора до достижения равновесных значений. До внедрения систем детритизации сдерживание роста концентрации трития в тяжеловодных реакторах происходило двумя путями – за счет естественного распада трития и компенсации потерь теплоносителя и замедлителя тяжелой водой, полученной из природного сырья и практически не содержащей трития. Это приводило к увеличению выбросов трития. В качестве примера на рис. 4 пред-

ставлена динамика роста тритиевых выбросов для реакторов CANDU-6 в течение первых 12 лет эксплуатации [2].

Таблица 1

Газообразные и жидкие выбросы и сбросы трития в виде НТО
для различных типов реакторов [2]

Тип реактора	Выбросы в 1985 г. (данные UNSCEAR за 1993 г.), ТБк/год	Тип реактора	Выбросы в 1997 г. (данные UNSCEAR за 2000 г.), ТБк/год
Реактор на тяжелой воде (HWR) (АЭС Брюс, блоки 1–4, Канада)	600	Реактор на тяжелой воде (HWR) (АЭС Брюс, блоки 1–4, Канада)	600
Реактор с водой под давлением (PWR) (АЭС Дьябло-Каньон, США)	17	Реактор с водой под давлением (PWR) (АЭС Дьябло-Каньон, блоки 1 и 2, США)	55
Усовершенствованный реактор с газовым охлаждением (AGR) (АЭС Хинкли-Поинт, очередь В, Великобритания)	12	Усовершенствованный реактор с газовым охлаждением (AGR) (АЭС Хинкли-Поинт, очередь В, Великобритания)	18,7
Реактор с кипящей водой (BWR) (АЭС Вюргассен, Германия)	2	Реактор с кипящей водой (BWR) (АЭС Филиппсбург, Германия)	1,6

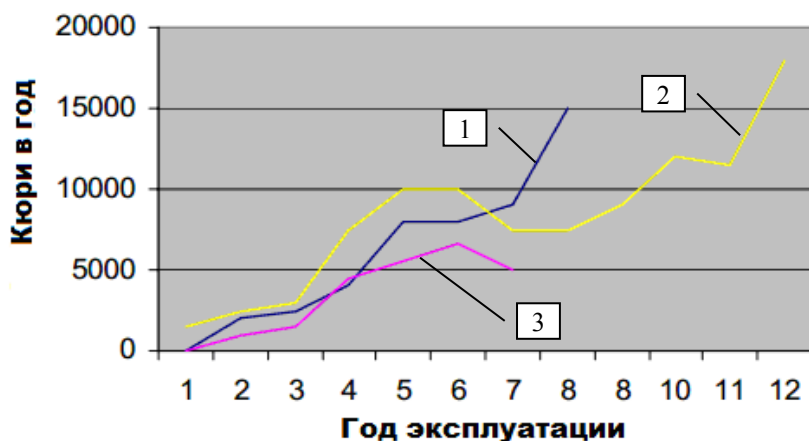


Рис. 4. Темпы роста выбросов трития для реакторов CANDU-6 [2]:
1 – Pt Lepreau; 2 – Wolsong-1; 3 – Gentilly-2

За счет большого количества тяжелой воды в реакторе CANDU и выведения трития только за счет его распада и компенсации потерь, время накопления трития до равновесного значения в теплоносителе по расчетам составляло около 30 лет [2]. В ряде работ приводятся расчетные значения равновесного содержания трития в замедлителе и теплоносителе тяжеловодных реакторов без систем детритизации. Так, в работе [14] при начальной скорости роста содержания трития в замедлителе CANDU на уровне 4–5 Ки/кг в год его стационарная концентрация оценивается на уровне 95 Ки/кг. В работе [15] также для реактора CANDU приводятся значения стационарных концентраций трития в замедлителе 3100 ГБк/кг и теплоносителе 75 ГБк/кг, что соответствует 84 и 2 Ки/кг соответственно. Румынские специалисты также отмечали, что за 10 лет эксплуатации реактора типа CANDU-6 концентрация трития достигла 36 Ки/кг, а при средней скорости накопления $\sim 3,7$ Ки/кг в год к 15 годам эксплуатации она возрастет до 54 Ки/кг [16]. По данным корейских специалистов, за 20 лет эксплуатации реактора CANDU-6 (Wolsong Unit-1) уровень трития в замедлителе достиг 2,22 ТБк/кг (60 Ки/кг), что согласуется с приведенными выше данными [17, 18]. Рост концентрации трития при работе тяжеловодных реакторов других типов отмечался также в работах [19, 20].

Постоянный рост объема накопленного трития приводит к постепенному увеличению количества выбросов и сбросов трития, что влечет за собой увеличение воздействия ионизирующего излучения на персонал и население посредством перорального и ингаляционного поступления в организм тритиевой воды. Для снижения техногенного воздействия трития на окружающую среду допустимые нормы его поступления изменялись по мере развития науки и техники с учетом международных рекомендаций.

Нормирование техногенного трития

Отношение к тритию с точки зрения его опасности на протяжении развития ядерной отрасли было неоднозначным. Так, считалось, что тритий является «слабым» радионуклидом, поскольку обладает крайне низкой энергией частиц распада, вследствие чего для него устанавливались низкие значения дозового коэффициента [2]. В качестве примера интересны данные по изменению допустимых норм по тритию в СССР и в России, которые изменялись как в сторону ужесточения, так и ослабления за период с середины XX века до последнего времени, приведенные в табл. 2.

Из таблицы видно, что за 50 лет допустимые концентрации трития существенно различались, причем не всегда в сторону ужесточения нормативных значений. Для сбросных тритийсодержащих вод установленный в России уровень вмешательства в настоящее время составляет 7600 Бк/л [22]. Следует отметить, что уровень вмешательства различается в странах мира. Так, в Канаде нормативные показатели близки к российским – концентрация трития в виде воды в жидких промышленных отходах не должна превышать 7000 Бк/л; однако в США, согласно рекомендациям Американского агентства по охране

окружающей среды (ЕРА US), установленный предел на порядок ниже – 740 Бк/л, а нормы Евросоюза предусматривают еще более жесткие требования – не более 100 Бк/л [2]. При этом для строящегося во Франции Международного экспериментального термоядерного реактора ITER установленные нормы по тритию для сбросных вод составляют 7400 Бк/л [23]. Таким образом, из вышеизложенного видно, что наиболее жесткие требования к уровню содержания трития предъявляются именно к тритийсодержащей воде (НТО или DTO) как в жидком состоянии, так и в виде пара. При этом следует отметить, что уровень требований к радиационной безопасности обслуживающего персонала и к сбросам в окружающую среду в последнее время повышается и требует совершенствования методов обращения с тритием.

Таблица 2

Эволюция нормирования трития (цит. по [21])

Нормы радиационной безопасности НРБ		Персонал, Бк/кг		Население, Бк/кг			
		Допустимая среднегодовая объемная активность	Предел годового поступления	Допустимая среднегодовая объемная активность	Предел годового поступления, воздух	Вода питьевая	Предел годового поступления. Продукты питания
НРБ-333-60		$7,4 \cdot 10^2$	$1,85 \cdot 10^9$	7,0	$1,9 \cdot 10^7$	$1,1 \cdot 10^4$	$0,9 \cdot 10^7$
НРБ-76		$1,8 \cdot 10^2$	$4,4 \cdot 10^8$	11,0	$4,4 \cdot 10^7$	$1,2 \cdot 10^5$	$9,6 \cdot 10^7$
НРБ-76/87		$3,7 \cdot 10^2$	$7,4 \cdot 10^8$	5,9	$7,4 \cdot 10^7$	$1,5 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^8$
НРБ-96	НТО пар	$4,4 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^9$	$7,6 \cdot 10^3$	$5,6 \cdot 10^7$	$3,0 \cdot 10^4$	$2,4 \cdot 10^7$
	газ	$4,4 \cdot 10^9$	$1,1 \cdot 10^{13}$				
НРБ-99	НТО пар	$4,4 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^9$	$1,9 \cdot 10^3$	$3,7 \cdot 10^6$	$7,7 \cdot 10^3$	$2,1 \cdot 10^7$
	газ	$4,4 \cdot 10^9$	$1,1 \cdot 10^{13}$				
НРБ-99/2009	НТО пар	$4,4 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^9$	$1,9 \cdot 10^3$	$3,7 \cdot 10^6$	$7,6 \cdot 10^3$	$2,1 \cdot 10^7$
	газ	$4,4 \cdot 10^9$	$1,1 \cdot 10^{13}$				

Для выполнения нормативных требований на ядерных объектах необходимо предусматривать системы очистки газовых и жидких потоков от трития, в результате чего происходит образование жидких (ЖРО) и твердых (ТРО) радиоактивных отходов (РАО). Вопрос обращения с тритийсодержащими отходами заслуживает отдельного внимания.

Основные принципы обращения с радиоактивными отходами, разрабатываемые на международном уровне, сформулированы в документах Международного агентства по атомной энергии (МАГАТЭ) и включают в себя следующие пункты: охрана здоровья людей; охрана окружающей среды; обеспечение безопасности за пределами национальных границ; защита будущих поколений; предотвращение необоснованного бремени на будущие поколения; наличие национальной правовой структуры; контроль образования радиоактивных отходов; взаимосвязь между этапами обращения с радиоактивными отходами; безопасность установок для обращения с РАО на протяжении

всего срока их службы. Руководствуясь данными принципами, способы обращения с конкретными РАО должны включать в себя их кондиционирование, т. е. перевод в химически устойчивую форму, которая сохраняет стабильность в течение времени хранения РАО (периода, необходимого для уменьшения активности до уровня естественного фона); минимизацию объемов; обеспечение радиационной безопасности на всех стадиях обращения с РАО, а также максимальную простоту, надежность и безопасность технологий транспортировки, хранения, переработки и захоронения [8, 24].

В России политика обращения с РАО закреплена Федеральным законом «Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации» [25], Постановлениями Правительства и рядом подзаконных актов, норм и правил [22, 26, 27]. Принятие Федерального закона позволило разработать долгосрочные системные решения, направленные на создание в России современной системы обращения с радиоактивными отходами. Одним из наиболее значимых решений является создание единой государственной системы обращения с РАО (ЕГС РАО) с целью разработки нормативной базы и обеспечения экологической, социальной, финансовой и международной приемлемости российской практики обращения с РАО. В рамках ее реализации в 2012 году была создана новая организация – ФГУП «Национальный оператор по обращению с РАО», являющееся ключевым элементом системы, которая должна обеспечивать организацию работ по всему жизненному циклу пунктов захоронения РАО [28].

В рамках совершенствования системы обращения с радиоактивными отходами ранее существовавшая классификация радионуклидов по активности, предполагавшая три основных класса – низкоактивные (НАО), среднеактивные (САО) и высокоактивные (ВАО), была дополнена еще одной категорией – очень низкоактивных отходов (ОНАО). Совершенствование подходов к категорированию РАО отражено в Постановлении Правительства Российской Федерации от 19 октября 2012 г. № 1069 [27], где было введено понятие «удаляемые радиоактивные отходы» и их деление на 6 классов, основанное на технологических особенностях обращения с ними. Исходя из данного документа, удаляемые РАО подлежат переработке и захоронению в соответствии с критериями приемлемости, установленными федеральными нормами и правилами, регулирующими обращение с РАО [27, 29]. Первые 4 класса включают в себя твердые и отвержденные жидкие радиоактивные отходы (ЖРО), к пятому относят ЖРО, а к шестому – РАО, образующиеся при добыче и переработке урановых руд, а также при осуществлении не связанных с использованием атомной энергии видов деятельности по добыче и переработке минерального и органического сырья с повышенным содержанием природных радионуклидов. Для тритийсодержащих удаляемых ЖРО, отнесенных к 5 классу, устанавливается принадлежность к среднеактивным РАО при активности от 10^4 до 10^8 кБк/кг и к низкоактивным – до 10^4 кБк/кг. Тритийсодержащие отвержденные ЖРО в зависимости от их активности относят к высокоактивным 1 или 2 классов (более 10^{11} кБк/кг), к среднеактивным 2 и 3 классов (10^8 – 10^{11} кБк/кг), к низко-

активным 3 и 4 классов ($10^7 - 10^8$ кБк/кг). Также следует отметить, что в данном документе в 4 классе РАО вводится дополнительный вид отходов – очень низкоактивные РАО, к которым относятся, в частности, отвержденные тритийсодержащие РАО с активностью до 10^7 кБк/кг [27].

На основании [27] в 2013 г. были внесены изменения в «Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010)» [26], где категорирование отходов прописано отдельно для ЖРО и ТРО (см. табл. 3). Этот подход принципиально отличается от предыдущей редакции [30], которая устанавливала единые пороговые значения концентраций радионуклидов в НАО, САО и ВАО для жидких и твердых РАО.

Таблица 3

Классификация жидких и твердых радиоактивных отходов [26]

Категория отходов	Удельная активность, кБк/кг			
	Тритий	Бета-излучающие радионуклиды (исключая тритий)	Альфа-излучающие радионуклиды (исключая трансурановые)	Трансурановые радионуклиды
Твердые отходы				
Очень низкоактивные	до 10^7	до 10^3	до 10^2	до 10^1
Низкоактивные	от 10^7 до 10^8	от 10^3 до 10^4	от 10^2 до 10^3	от 10^1 до 10^2
Среднеактивные	от 10^8 до 10^{11}	от 10^4 до 10^7	от 10^3 до 10^6	от 10^2 до 10^5
Высокоактивные	более 10^{11}	более 10^7	более 10^6	более 10^5
Жидкие отходы				
Низкоактивные	до 10^4	до 10^3	до 10^2	до 10^1
Среднеактивные	от 10^4 до 10^8	от 10^3 до 10^7	от 10^2 до 10^6	от 10^1 до 10^5
Высокоактивные	более 10^8	более 10^7	более 10^6	более 10^5

Отдельно стоит остановиться на категорировании тритийсодержащих отходов, которые впервые были вынесены в отдельную группу в редакции ОСПОРБ 99/2010 [30]. Для тритийсодержащих отходов были установлены отдельные граничные значения удельной активности, причем, на 3–4 порядка выше, чем для прочих бета-активных излучателей (НАО – от 10^6 до 10^7 кБк/кг; САО – от 10^7 до 10^{11} кБк/кг; ВАО – более 10^{11} кБк/кг) [30]. При этом следует отметить, что уровень вмешательства (7,6 кБк/кг) [22] и нижняя граница НАО отличались более, чем на 5 порядков величин, образуя зону некатегорируемых тритийсодержащих веществ, которые, с одной стороны, не подпадали под систему обращения с РАО, а с другой – не могли сбрасываться в окружающую среду. Введение новой нормативной базы по категорированию ЖРО позволило разрешить данное противоречие путем отнесением к РАО тритийсодержащих жидких отходов с любой удельной активностью трития, превышающей уровень вмешательства [26].

В большинстве стран мира концепция снижения воздействия техногенного трития на окружающую среду включает в себя использование систем детритизации водных и газовых потоков с последующим безопасным хранением или захоронением тритийсодержащих отходов. В настоящее время наиболее остро проблема обращения с РАО вообще и с тритийсодержащими водными отходами в частности стоит перед Японией, где в результате аварии на АЭС «Фукусима-дайити» в марте 2011 года, сопровождавшейся разрушением активной зоны реактора, произошел выброс радионуклидов в окружающую среду. По данным МАГАТЭ, наряду с ^{131}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{85}Kr и ^{133}Xe и др. в выбросах присутствовал также тритий, который вместе с другими радионуклидами поступил в атмосферу, почву и воду. Попадание радионуклидов в морскую воду было обусловлено как прямыми выбросами, так и сбросами с технологической площадки [31]. Образование радиоактивных отходов на Фукусиме происходит до сегодняшнего дня. По данным [31], для охлаждения остатков ядерного топлива через реакторы энергоблоков 1–3 циркулировало примерно 400 м^3 воды в сутки, которая смешивалась с проникающими в здания подземными водами. В результате этого в зданиях происходило накопление около $800 \text{ м}^3/\text{сутки}$ загрязненной воды, половина из которой оставалась в циркулирующем охлаждающем контуре, а оставшаяся вода направлялась в баки для хранения загрязненной радионуклидами воды (см. рис. 5) [31, 32]. Предварительно вода подвергалась дистилляционной и фильтрационной очистке от радионуклидов, «кроме трития, который невозможно удалить», как прозвучало в докладе в МАГАТЭ г-на Юкии Аmano, Генерального директора АЭС «Фукусима-дайити» [31].



Рис. 5. Хранилища тритийсодержащей воды на АЭС «Фукусима-1»:
а – аэроснимок: Asahi Shimbun [33]; б – вид резервуаров [34]

Это привело к тому, что на площадке АЭС к 2017 году было накоплено около 900 тысяч м^3 воды с концентрацией трития на уровне $4 \cdot 10^6 \text{ Бк/кг}$ [32],

а 25 марта 2019 года оператор АЭС «Фукусима-1» Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO), сообщил, что объем прошедшей очистки радиоактивной воды превысил 1 миллион м³. По словам представителя TEPCO, «...На АЭС не осталось места для новых цистерн, поэтому хранение воды стало проблематичным» (цит по [33]). При этом прогнозируется, что при дальнейшем сохранении политики сбора и хранения таких ЖРО, к концу 2020 г. их объем составит уже 1,37 миллионов м³ воды [34]. В настоящее время рассматриваются различные варианты решения проблемы накопленных отходов, одним из которых является их непосредственный сброс в океан [33, 34]. Вторым вариантом, отвечающим принципам МАГАТЭ по обращению с РАО, но влекущим за собой значительные экономические затраты, является переработка ЖРО для снижения содержания в них трития до уровня, соответствующего сбросным нормам, с последующим сбросом очищенной воды в окружающую среду. Поиск наиболее экономичных и технологичных методов детритизации больших объемов низкоактивной воды проводится в ряде стран мира.

Методы обращения с тритием

В большинстве стран мира концепция обращения с тритийсодержащими водными отходами предполагает минимизацию объемов ЖРО с последующим переводом тритийсодержащих отходов в твердую фазу для захоронения или долговременного хранения. Так, например, в Канаде и США предпочтение отдается первому варианту [2, 12], а, например, во Франции рассматривается вариант промежуточного хранения НТО в течение 50 лет с последующим захоронением отходов [35]. В случае образования больших технологических потоков тритийсодержащей воды проводится их детритизация для возврата в технологический цикл или сброса в окружающую среду. Образующийся при этом концентрат с повышенным содержанием трития может рассматриваться как ЖРО и передаваться на хранение и захоронение в соответствии с принятой в стране концепцией [1, 2, 10]. При этом следует отметить, что применявшийся до недавнего времени способ разбавления очень низкоактивных тритийсодержащих водных отходов и потоков до сбросных норм с последующим сбросом в окружающую среду в настоящее время запрещен в большинстве стран мира, в том числе и в России [26].

В работе [36] предложена универсальная принципиальная схема комплексной технологии обращения с тритийсодержащими потоками (рис. 6).

Для улавливания трития из газовых потоков и воздуха используются различные физические и физико-химические методы, в зависимости от того, в какой химической форме он находится. Для улавливания трития в виде молекулярного водорода из небольших газовых потоков используются в основном сорбционные методы с использованием геттеров, а также мембранные с использованием мембран на основе палладия или его сплавов [37–39].

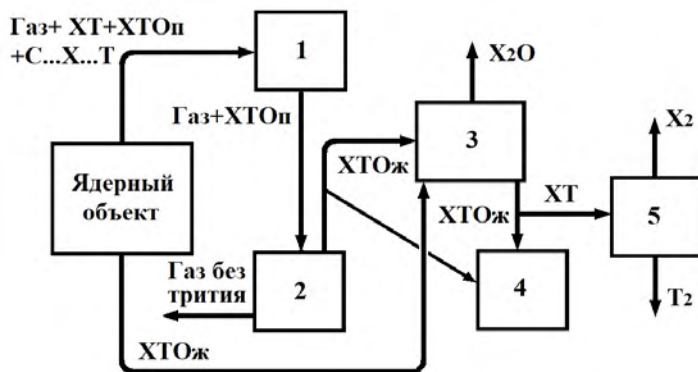


Рис. 6. Принципиальная схема процесса детритизации жидких и газовых потоков (X – протий или дейтерий) [36]: 1 – блок каталитического окисления; 2 – блок осушки; 3 – блок концентрирования тритийсодержащих ЖРО; 4 – блок долговременного хранения тритийсодержащих ЖРО; 5 – блок разделения

Газовые потоки, образующиеся на ядерных объектах, могут содержать тритий, находящийся в форме воды, водорода или органических соединений. В связи с этим первоначально газовые потоки направляются в блок 1, где происходит каталитическое окисление водорода и органических соединений до воды. Этот процесс обычно состоит из двух стадий – низкотемпературной (до $200\text{ }^{\circ}\text{C}$), где происходит окисление водорода, и высокотемпературной ($400\text{--}500\text{ }^{\circ}\text{C}$) для окисления органических соединений. Выходящий из блока 1 газ попадает в узел осушки 2, откуда очищенный от паров тритированной воды газ может возвращаться в технологический цикл или сбрасываться в окружающую среду. Обычно осушка газов проводится методом адсорбции паров воды на цеолитах. Собранная в блоке 2 вода может направляться в блок 4 на долговременное хранение или в блок 3 на дальнейшую переработку с целью концентрирования трития и сокращения объемов тритийсодержащих отходов. При рассмотрении вопроса о долговременном хранении тритиевого концентрата в виде жидкой воды следует учитывать, что в результате реакции автордиолиза воды образуются газообразные гелий-3, кислород и водород, следствием чего будет увеличение давления в закрытой емкости хранения [40]. По данным работы [41], полученным с использованием НТО с концентрацией трития 1800 Ки/л , рассчитанные константы скорости образования водорода и кислорода при автордиолизе воды были равны $1,44 \cdot 10^{-5}$ моль $\text{H}_2/(\text{л}\cdot\text{с})$ и $6,87 \cdot 10^{-6}$ моль $\text{O}_2/(\text{л}\cdot\text{с})$, а выход водорода и кислорода в реакции составил $0,51 \pm 0,05$ молекулы $\text{H}_2/100\text{ эВ}$ и $0,24 \pm 0,02$ молекулы $\text{O}_2/100\text{ эВ}$. Поскольку 1 г ($0,05$ моль) НТО соответствует активности трития 1500 Ки , то следует признать, что даже при высоких концентрациях радионуклида автордиолиз не будет приводить к значительному росту давления в емкости хранения даже с учетом образования гелия-3, не рассматриваемого в работе [41]. На основании этого можно сделать заключение о возможности рассматривать длительное хранение тритиевого концентрата в виде воды как безопасный способ обращения с ним.

В ряде случаев для улавливания тритийсодержащего водорода предлагается его каталитическое окисление с последующей очисткой газа от паров тритийсодержащей воды [36, 42–44]. Очистка воздуха от паров тритийсодержащей воды проводится либо путем сорбции их на цеолитах [36, 45, 46], либо в отмывочных колоннах методом фазового изотопного обмена воды [36, 47, 48]. Следует отметить, что технология удаления тритированных паров из газовых потоков в скрубберной колонне, заполненной высокоэффективной насадкой, разработанная в РХТУ им. Д. И. Менделеева, позволила снизить количество вторичных отходов по сравнению с сорбционными методами и была включена в проект ITER [48].

Для предотвращения роста концентрации трития на тяжеловодных реакторах создаются установки детритизации, которые работают, например, в Канаде, Корее, Румынии и т. д. [2, 6, 16–18, 49–50]. Что касается России, то здесь использование системы детритизации запроектировано только для исследовательского реактора ПИК [20, 51].

Изотопная очистка тяжелой воды может производиться как «на месте», так и на отдельных предприятиях. Это реализовано, например, в Канаде, где перерабатывающие установки, расположенные в Дарлингтоне и Чок-Ривере, обслуживают все тяжеловодные АЭС страны. При этом возникает проблема транспортировки больших количеств радиоактивной тяжелой воды на значительные расстояния [2]. Следует отметить, что источниками тритийсодержащих отходов являются также бассейны выдержки на АЭС и установки детритизации [2, 7, 52]. При этом тритиевые выбросы установок снижения концентрации трития достаточно высоки, и, например, для установки детритизации в Дарлингтоне в 2005 году они составили 790 ТБк [2]. Таким образом, работа установок очистки от трития практически не приводит к сокращению загрязнения окружающей среды, а их основным назначением является поддержание некоторого установленного уровня концентрации трития в тяжеловодных реакторах, который обеспечивает их непрерывную работу при обеспечении объема его выбросов в регламентированных пределах. Так, например, для реакторов типа CANDU допустимым считается поддержание уровня концентрации трития в замедлителе на уровне 10 Ки/кг, а в теплоносителе – 2–3 Ки/кг [14–17]. Одновременно с этим для некоторых тяжеловодных реакторов планируется довести очистку замедлителя до уровня 3–5 Ки/кг трития [14, 18, 52].

Наиболее перспективной технологией очистки тяжелой и легкой воды от трития в ряде стран мира считается химический изотопный обмен между жидкой водой и водородом (ХИО) с использованием гидрофобных катализаторов [1, 6, 10, 13, 15, 36, 42, 51–54]. В настоящее время реализован однотемпературный вариант технологии. На рис. 7 представлены принципиальные схемы детритизации легководных и тяжеловодных потоков с использованием метода ХИО водорода с водой.

Схема глубокой очистки (рис. 7,а) используется для детритизации открытого водного контура, например, сбросных потоков на заводах по переработке ОЯТ или потока воды, выводимого из первого контура АЭС. При этом водный поток подается в установку ХИО, из которой выводится два потока – поток, очищенный от трития до уровня вмешательства, который может сбрасываться в окружающую среду и тритиевый концентрат, количество которого во много раз меньше по сравнению с потоком, подаваемым в установку.

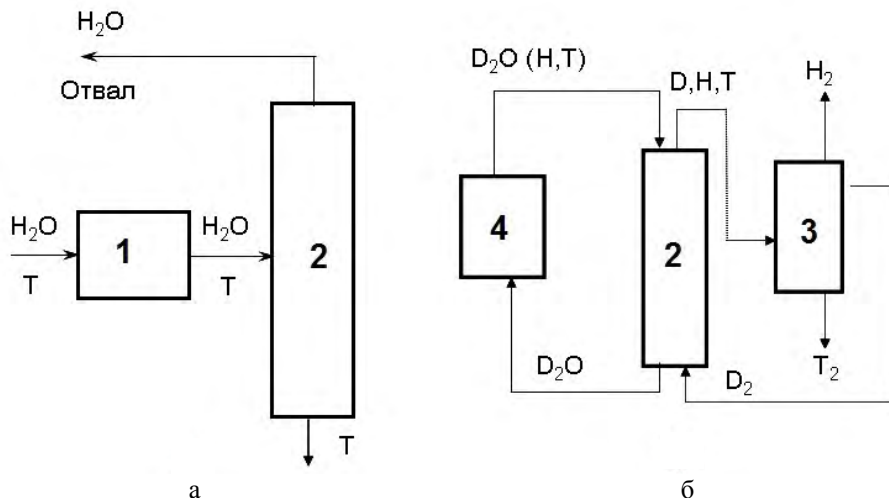


Рис. 7. Принципиальные схемы глубокой очистки легководных потоков (а) и изотопной очистки тяжеловодного теплоносителя (б): 1 – водный контур; 2 – колонна ХИО; 3 – колонна низкотемпературной ректификации водорода; 4 – тяжеловодный реактор [13]

Схема, представленная на рис. 7,б, предназначена для решения задачи комплексной очистки теплоносителя или замедлителя от образующихся в результате эксплуатации тяжеловодной реакторной установки протия и трития. Здесь в колонне ХИО происходит передача изотопов водорода из жидкой (очищаемой) фазы в газовую, а собственно процесс разделения изотопов проводится методом низкотемпературной ректификации водорода. Данная технология была реализована для изотопной очистки тяжеловодного замедлителя в Гренобле (Франция), а позже – в Дарлингтоне (Канада) для производства газообразного трития с концентрацией 98–99 % в количестве 1,7–2,5 кг/год [1].

К безусловным достоинствам системы вода-водород относится высокий коэффициент разделения (при $T = 328$ К для системы Н-Т $\alpha = 5,40$, а для D-Т $\alpha = 1,57$). Однако, вследствие гидрофобных свойств катализатора, колонны ХИО имеют небольшую пропускную способность (обычно линейная скорость водорода не превышает 30 см/с), при этом диаметр известных колонн ХИО обычно не более 100 мм. Типичные значения высоты эквивалентной теоретической ступени разделения (ВЭТС) для активных катализаторов в колоннах диаметром до 10 см при температурах 333–345 К лежат в диапазоне 20–30 см [10, 12, 51]. При этом значения ВЭТС очень сильно зависят как от активности катализатора, так и от диаметра колонны, а также от величины и соотношения потоков. По данным [55], в колоннах диаметром от 20 до 100 мм в зависимости от условий значения ВЭТС изменялись в диапазоне от 10 до 50 см. Следует отметить, что для снижения энергозатрат на электролитическое разложение воды, а также для уменьшения проблем, связанных с радиационной устойчивостью электролита, часто процесс ХИО водорода с водой используют без нижнего узла обращения потоков в сочетании с низкотемпературной ректификацией водорода. При этом колонна изотопного обмена служит только для

перевода трития из жидкой фазы в водород (НТ или DT), который для дальнейшего концентрирования дейтерия или трития направляется в блок низкотемпературной ректификации [16, 49, 53]. Такого типа установки депротизации и детритизации реализованы в Канаде, Франции, США и т. д. В России возможность использования такой схемы была предложена для системы изотопной очистки для реактора ПИК в ПИЯФ (Гатчина), однако целиком схема не была пущена в эксплуатацию. В настоящее время там работает только установка ХИО, которая находится в опытно-промышленной эксплуатации с 1995 г. и используется для кондиционирования тяжелой воды из тяжеловодных отходов [20, 51].

Еще одной проблемой метода ХИО водорода с водой является ее верхний узел обращения потоков, где необходимо безопасно и количественно осуществлять конверсию водорода в воду. При этом следует отметить, что пламенные горелки для окисления водорода кислородом являются ненадежными и взрывоопасными, что затрудняет их использование, особенно в случае осуществления процесса детритизации. В литературе имеются данные о разработке каталитических конверторов на основе как гидрофильных, так и гидрофобных катализаторов [43, 56–58]. Возможность применения таких конверторов описана в некоторых работах [57, 58], однако в большинстве случаев реализуется схема процесса ХИО со сбросом очищенного водорода в окружающую среду [44, 52–53]. В России, в опытно-промышленной установке «ЭВИО» а ПИЯФ (Гатчина) также реализован процесс ХИО водорода со сбросом водорода в окружающую среду [51].

Несмотря на большое количество публикаций, посвященных разработке и использованию метода химического изотопного обмена водорода с водой, необходимо отметить, что он является крайне взрыво- и пожароопасным, что в сочетании с наличием трития в установке создает дополнительные проблемы обеспечения радиационной безопасности. Кроме того, сложности реализации процесса в России также обусловлены отсутствием надежных литературных данных об использовании электролизеров отечественного производства в условиях высоких концентраций трития, а также отсутствием опыта в промышленном или опытно-промышленном масштабе разрабатываемых в стране каталитических конверторов водорода.

В связи с этим для решения задачи детритизации тяжелой воды представляет интерес метод ректификации воды под вакуумом, который несмотря на малые значения коэффициента разделения (при $T = 333 \text{ K}$ $\alpha_{\text{H-T}} = 1,056$, $\alpha_{\text{D-T}} = 1,010$), характеризуется следующими важными преимуществами – пожаро- и взрывобезопасностью процесса, простотой создания противотока и обращения потоков, осуществляемого путем испарения и конденсации, а также неагрессивностью рабочих веществ и умеренными энергозатратами. В рамках выполнения работ по совершенствованию технологии ректификации воды для решения задач депротизации и детритизации тяжеловодного теплоносителя реакторной установки ЛФ-2 на ФГУП «ПО «Маяк» РХТУ им. Д. И. Менделеева проводилась разработка высокоэффективных контактных устройств для реализации процесса [59].

В ходе работ были изготовлены и испытаны образцы нерегулярной спирально-призматической насадки (СПН) с размерами элемента от 2 до 10 мм в колоннах диаметром 60 и 120 мм, характеристики которых – предельная пропускная способность ($L_{уд}^*$) и высоты теоретической ступени разделения (ВЭТС) представлены на рис. 8 [60].

Было получено, что $L_{уд}^*$ практически не зависит от диаметра колонны и линейно зависит от размера насадки. Зависимость ВЭТС от размера элемента насадки, полученная при $P = 0,02$ МПа в колонне 120 мм, имеет вид $h = 0,6514Z^{1,3325}$ и возрастает с увеличением диаметра пропорционально $(D_2/D_1)^{0,15}$. Необходимо отметить, что достигнутая в настоящей работе высокая организация потоков в колонне и, как следствие, низкое значение коэффициента масштабного перехода были получены за счет использования оригинальных методик заполнения колонны насадкой и режима пуска колонны, разработанных в РХТУ им. Д. И. Менделеева [60].

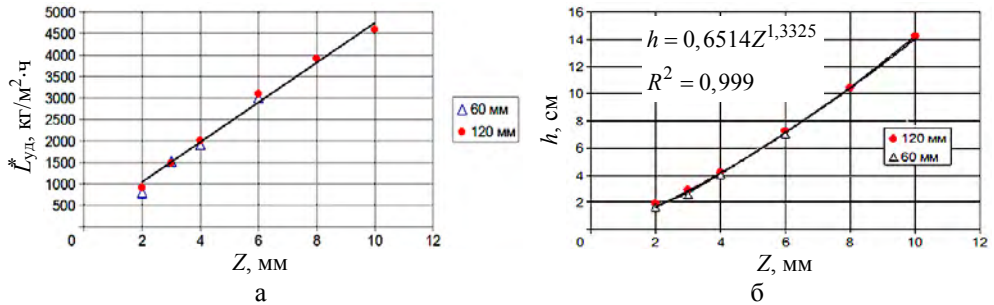


Рис. 8. Зависимость предельной пропускной способности (а) и ВЭТС (б) от размера элемента спирально-призматической насадки при давлении 0,2 атм

Для обеспечения большей производительности в РХТУ им. Д. И. Менделеева была разработана регулярная рулонная ленточно-винтовая насадка (РЛВН) из нержавеющей стали [61]. На рис. 9 представлен внешний вид насадки и зависимости предельной пропускной способности.

Значения ВЭТС для РЛВН при давлении 0,2 атм для колонны диаметром 60, 120 и 250 мм составили $16 \pm 0,2$ мм; $18 \pm 0,2$ мм и $20 \pm 0,2$ мм. Следует отметить, что при сравнении отечественной насадки с всемирно известной насадкой Sulzer Mellapak 750 CY значения ВЭТС, полученные для РЛВН в оказались примерно в 2 раза выше. Однако при этом следует отметить, что поток по колонне с РЛВН, составлявший 80 % от предельной нагрузки, не только в 1,5 раза превышал, но и был недостижим для насадки Sulzer [61].

Также в РХТУ им. Д. И. Менделеева для реализации данного процесса предложена и апробирована схема рекуперации энергии с помощью теплового насоса на основе фреона R-134a, которая позволяет снизить удельные тепловые затраты более чем в 3 раза. Таким образом, создание новых высокоэффективных контактных устройств, обеспечивающих небольшие значения высоты

теоретической ступени разделения при высокой пропускной способности позволяют считать данный метод вполне конкурентоспособным для изотопной очистки тяжелой воды.

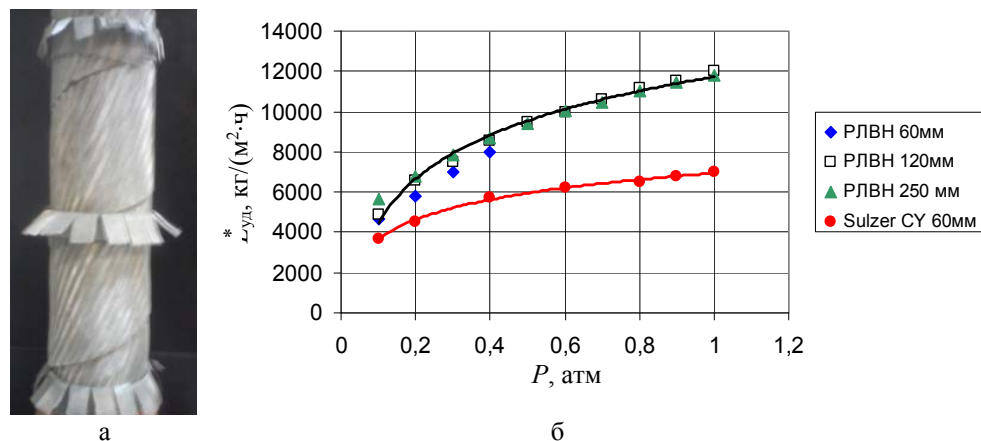


Рис. 9. Внешний вид (а) и зависимость предельной пропускной способности (б) от давления регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки

Отдельной проблемой является вопрос об утилизации дейтерий-тритиевого концентрата, получаемого в качестве побочного продукта при детритизации тяжелой воды, в виде водорода (DT) или воды (DTO) с высоким содержанием дейтерия. Поскольку, как отмечалось выше, DT и DTO нельзя относить к удаляемым ЖРО, то к ним неприменимы традиционные подходы перевода их в безопасную форму хранения путем отверждения с последующим захоронением в виде ТРО. В связи с этим существуют другие принципы обращения с дейтерий-тритиевыми концентратами. Так, в США и Канаде, в рамках существующих концепций обращения с тритием, переработка тритийсодержащих отходов считается целесообразной в том случае, если она может служить экономически оправданным способом получения «продуктового» трития (в виде T_2) с концентрацией не ниже 90 %. В остальных случаях рекомендуется его долговременное хранение, причем наиболее предпочтительным считается его хранение в виде тритида металла, а наименее предпочтительным – в виде воды, причем желательно также в виде твердых отходов [12].

Аналогичный подход предлагается применять и для обращения с тритийсодержащими отходами в ИТЕР [23]. Хранение тритийсодержащего водорода в баллонах под давлением ограничивается протеканием реакции радиоактивного распада трития с образованием ^3He . За счет этого из двухатомной молекулы водорода (T_2 , HT или DT) образуются две одноатомные молекулы гелия, что в замкнутом объеме приводит к увеличению давления в пределе – до 2 раз.

При хранении тритированной воды в жидком состоянии происходит реакция автордиолиза воды, приводящая к образованию газообразных ^3He , кислорода и водорода, в результате чего в закрытой емкости хранения тритийсодержащей воды происходит увеличение давления [1, 3, 40]. При этом следу-

ет отметить, что, поскольку 1 г (0,05 моль) НТО соответствует активности трития 1500 Ки, то даже при высоких концентрациях радионуклида большого роста давления в емкости хранения наблюдаться не будет.

Для хранения газообразного тритийсодержащего водорода в связанном состоянии предлагаются гидридообразующие металлы с высокой емкостью по водороду, такие как уран и титан, а также интерметаллические соединения на основе циркония [10, 12]. По нашему мнению, этот метод имеет ряд недостатков, основными из которых являются большой объем твердой фазы вследствие небольшой емкости по водороду (несколько процентов), невозможность полного извлечения (регенерации) трития, сложная конструкция контейнеров хранения и т. п.

Концепция обращения с тритием для тяжеловодных реакторов

На основании анализа литературных данных и собственных исследований нами была разработана концепция извлечения трития из тяжеловодного теплоносителя методом ректификации воды с последующим долговременным хранением тритиевого концентрата в виде DTO. В основу концепции был положен принцип безопасности используемых технологических процессов. На рис. 10 представлена принципиальная схема каскада детритизации тяжелой воды, предназначенного для поддержания стационарной концентрации трития на уровне 5 Ки/кг путем выведения его избытка, образующегося со скоростью 220 кКи/год [62]. В качестве граничного условия было принято, что концентрация трития в D_2O , отправляемой на длительное хранение, составляет 1000 Ки/кг.

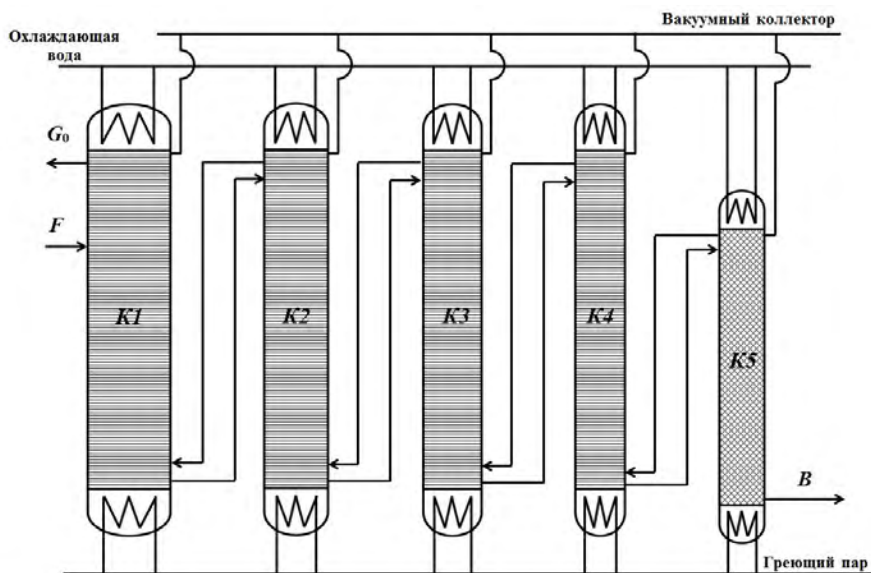


Рис. 10. Принципиальная схема каскада детритизации

Расчет каскада и оптимизация его параметров проводилась с использованием разработанной нами оригинальной математической модели, основанной на методе расчета «от ступени к ступени» и позволяющей учитывать параметры системы на каждой ступени, изменение удельной нагрузки при переходе от одной колонны к другой, характеристики контактных устройств, а также предусматривающей возможность их замены [62, 63]. В результате получен пятиступенчатый каскад с сокращением потоков, первая ступень которого имеет исчерпывающую и концентрирующую части, а остальные колонны работают в режиме концентрирования. Характеристики каскада представлены в табл. 4.

Таблица 4

Технические и эксплуатационные характеристики разделительного оборудования каскада детритизации

Колонна	K1	K2	K3	K4	K5
Контактное устройство	РЛВН	РЛВН	РЛВН	РЛВН	СПН 4×4×0,25мм
Поток воды, кг/ч	1367/1407 [†]	885	517	222	63,4
Диаметр колонны, см	50	40	31	20	20
ВЭТС, см	22,8	22,1	21,2	19,9	4,6
Давление вверху колонны, кПа	20	20	20	20	20
Температура вверху колонны, К	321	321	321	374	321
Давление внизу колонны, кПа	87,7	100	100	100	101
Температура внизу колонны, К	371	374	374	366	374,5
Концентрация трития вверху колонны, Ки/кг	4,42	7,44	14,61	32,56	76,86
Концентрация трития внизу колонны, Ки/кг	7,39	14,51	32,32	76,45	1002,62
Степень разделения	1,143/1,478 [†]	1,963	2,228	2,365	13,11
Число теоретических ступеней разделения	132	180	188	201	557
Высота колонны, м	30,1	39,8	39,9	40	25,84
Объем колонны, м ³	5,88	5,03	2,951	1,267	0,82
Суммарный объем каскада м ³	15,948				

[†] В исчерпывающей/концентрирующей части.

Образующийся на выходе из последней ступени каскада поток тяжелой воды с концентрацией дейтерия не менее 99,8 ат.% и трития порядка 1000 Ки/кг собирается в стандартные емкости хранения тяжелой воды и поступает на длительное хранение.

Заключение

На основании вышеизложенного можно сделать заключение о том, что обращение с тритийсодержащими водными отходами является важной проблемой для предприятий ядерной отрасли. При этом ректификация воды обоснованно может рассматриваться в качестве альтернативного метода для детритизации замедлителя тяжеловодного реактора с последующим долговременным хранением концентрата DTO в стандартных емкостях для хранения и транспортировки тяжелой воды. Дополнительным преимуществом данного подхода является тот факт, что в условиях отсутствия в России собственного производства тяжелой воды из природного сырья находящийся на длительном хранении дейтерий-третиевый концентрат может являться резервом для аварийного подлива в реакторную установку или подвергаться последующему разложению для получения эквимольных смесей дейтерия и трития высокой концентрации методом низкотемпературной ректификации водорода.

Список литературы

1. Андреев Б. М., Зельвенский Я. Д., Катальников С. Г. Тяжелые изотопы водорода в ядерной технике. М.: Энергоатомиздат, 1987. 456 с.
2. Fairlie I. Tritium Hazard Report: Pollution and Radiation Risk from Canadian Nuclear Facilities. Greenpeace. June 2007. 92 p.
3. Эванс Э. Тритий и его соединения / Пер с англ. И. Б. Бравермана, А. Д. Владова, Э. Б. Шиллер. – М.: Атомиздат. 1970. 312 с.
4. Богданов К. М. Биофизические закономерности обмена тритиевой воды в организме. М.: Энергоиздат, 1981. 136 с.
5. Кириллова Е. Л., Макарова Э. Б., Муксинова К. Н. Эффективность фармакологических препаратов в предупреждении отдаленных последствий радиации // IV Международный симпозиум «Урал атомный, Урал промышленный». Тезисы докладов. Екатеринбург: УрО РАН. 1996, с. 135–136.
6. Miller J. M. Tritium Activities in Canada Supporting CANDU Nuclear Power Reactors // Fusion Science and Technology. 2008, vol. 54, N 2, p. 325–328.
7. Kitabatake S., Kimura H., Kimura Y., Igarashi A., Kudo H., Sasaki K., Takeishi M., Kon Y., Shima S. Tritium Concentration in Environmental Samples Around the Rokkasho Reprocessing Plant // Fusion Science and Technology. 2011, vol. 60, N 4, p. 1280–12783.
8. Investigation of the Environmental Fate of Tritium in the Atmosphere. Published by the Canadian Nuclear Safety Commission. 2009. INFO-0792. 110 p.
9. Десятов Д. Д., Екидин А. А. Оценка поступления трития в окружающую среду от выбросов АЭС // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. 2018, № 1(21), с. 88–96.

10. Андреев Б. М., Магомедбеков Э. П., Розенкевич М. Б., Сахаровский Ю. А. Гетерогенные реакции изотопного обмена трития. – М.: Эдиториал УРСС. 1999. 208 с.
11. Ивахнюк Г. К., Пименова М. А., Сай А. Р. Перспективы увеличения глобальной радиационной нагрузки от техногенного трития // XX Международная научно-практическая конференция по проблемам защиты населения и территорий от чрезвычайных ситуаций «Глобальная и национальные стратегии управления рисками катастроф и стихийных бедствий» Сборник трудов. – М.: МЧС. 2015, с. 549–551.
12. DOE Handbook: Tritium Handling and Safe Storage. DOE-HDBK-1129-YR. U.S. Department of Energy. Washington. D.C.20585. 2008, p. 149.
13. Андреев Б. М., Магомедбеков Э. П., Розенкевич М. Б., Райтман А. А., Сахаровский Ю. А., Хорошилов А. В. Разделение изотопов биогенных элементов в двухфазных системах. – М.: ИздАТ, 2003. 376 с.
14. Bonnett I., Busigin A., Shapiro A. Tritium Removal and Separation Technology Developments // Fusion Science and Technology. 2008, vol. 54, N 1, p. 209–214.
15. Suppiah S., Philippi N., Senohrabek J., Boniface H., Rodrigo L. Tritium and Technology Developments for its Management a Canadian Perspective // Fusion Science and Technology. 2011, vol. 60, N 4, p. 1311–1315.
16. Bornea A., Zamfirache M., Stefan L., Stefanescu I. The Prediction of Tritium Level Reduction of NPP Cernavoda Using CTRF // Fusion Science and Technology. 2011, vol. 60, N 4, p. 1411–1413.
17. Yook D., Lee K., Chung H. Assesment of the Environmental Impact of Tritium Release from Wolsong Tritium Removal Facility at the Postulated Accident // Fusion Science and Technology. 2005, vol. 48, N 1, p. 472–475.
18. Song K. M., Lee S. J., Lee S. K., Sohn S. H., Eum H. M., Kim C.-S. The Prediction of Tritium Level reduction of Wolsong NPPS by Heavy Water Detritiation with WTRF // Fusion Science and Technology. 2005, vol. 48, N 1, p. 290–293.
19. Мастепан Е. Я. Особенности учета тяжелой воды в ПО «Маяк» // Новости ФИС. Информационный бюллетень. Спец. выпуск. Тяжелая вода. – М.: ЦНИИАТОМИНФОРМ. 2006, С. 30–33.
20. Алексеев И. А., Захаров А. С. Тяжеловодные установки Петербургского института ядерной физики // Новости ФИС. Информационный бюллетень. Спец. выпуск. Тяжелая вода. – М.: ЦНИИАТОМИНФОРМ. 2006, с. 34–37.
21. Кочетков О. А., Монастырская С. Г., Кабанов Д. И. Проблемы нормирования техногенного трития (обзор) // Саратовский научно-медицинский журнал. 2013, т. 9, № 4, с. 815–818.
22. СанПиН 2.6.1.2523-09. Нормы радиационной безопасности (НРБ–99/2009). – М.: Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора, 2009. 100 с.

23. Rosanvallon S., Benchikhoun M., Giattaglia S., Uzan J. Elbez, Gastaldi O., Na B. S., Taylor N. Management of Tritium in ITER Waste // Fusion Science and Technology. 2011, vol. 60, N 3, p. 855–860.
24. Технологические и организационные аспекты обращения с радиоактивными отходами. МАГАТЭ. ВЕНА. 2005. АЕА-ТКС-27. 221 с.
25. Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты российской Федерации [Электронный ресурс]: Федеральный закон от 11.07.2011 № 190-ФЗ. Доступ из справочно-правовой системы «КонсультантПлюс».
26. СП 2.6.1.2612-10. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ 99/2010): Санитарные правила и нормативы (в ред. Изменений № 1, утв. постановлением Главного государственного санитарного врача РФ от 16.09.2013 № 43). [Электронный ресурс]: Доступ из справочно-правовой системы «КонсультантПлюс».
27. О критериях отнесения твердых, жидких и газообразных отходов к радиоактивным отходам, критерии отнесения радиоактивных отходов к особым радиоактивным отходам и к удаляемым радиоактивным отходам и критериях классификации удаляемых радиоактивных отходов. Постановление Правительства Российской Федерации от 19 октября 2012 г. № 1069.
28. Абрамов А. А., Дорофеев А. Н. Современное состояние и перспективы развития системы обращения с РАО в Российской Федерации // Радиоактивные отходы. 2017, № 1, с. 10–21.
29. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения» (НП-093-14). – М.: Федеральная служба по экологическому, технологическому и атомному надзору. 2015. 33 с.
30. СП 2.6.1.2612-10. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ 99/2010): Санитарные правила и нормативы. – М.: Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора, 2010. 83 с.
31. Авария на АЭС «Фукусима-дайити». Доклад Генерального директора. МАГАТЭ. 2015. 264 с. [Электронный ресурс]: URL <https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/SupplementaryMaterials/P1710/Languages/Russian.pdf>. Дата обращения 20.01.2019.
32. Fukada S., Oya Y., Hatano Y. Review of recent Japanese activities on tritium accountability in fusion reactors // Fusion Engineering and Design. 2016, vol. 113, p. 231–235.
33. Объем очищенной воды на АЭС «Фукусима-1» превысил 1 миллион тонн [Электронный ресурс] // Информационный портал «Атомная энергия 2.0» [сайт]. URL <http://www.atomic-energy.ru/news/2019/03/25/93506>. (дата обращения 30.03.2019).

34. Объем радиоактивной воды в резервуарах АЭС «Фукусима-1» опасно вырос [Электронный ресурс] // Информационный портал «Атомная энергия 2.0» [сайт]. URL <http://www.atomic-nergy.ru/news/2019/03/20/93397>. (Дата обращения 30.03.2019).
35. Canas D., Decanis C., Liger K., Dall'ava D. J. Pamela Classification Methodology for Tritiated Waste Requiring Interim Storage // *Fusion Science and Technology*. 2015, vol. 67, p. 328–331.
36. Розенкевич М. Б., Букин А. Н., Марунич С. А., Пак Ю. С., Магомедбеков Э. П. Состояние разработки технологии детритизации жидких и газовых отходов, возникающих при переработке ОЯТ в России // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы*. 2013, № 1 (76), с. 159–171.
37. Anan'ev S. S., Spitsyn A. V., Kuteev B. V., Shirnin P. N., Kazakovsky N. T., Cherkez D. I. Concept of DT Fuel Cycle for a Fusion Neutron Source // *Fusion Science and Technology*. 2015, vol. 67, p. 241–244.
38. Вербецкий В. Н. Аккумуляция водорода сплавами и интерметаллическими соединениями. Современное состояние и сравнительная характеристика // *Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами. Материалы школы-конференции*. – М.: НИЯУ МИФИ. 2011, с. 216.
39. Чернов И. И., Калинин Б. А., Бурлакова М. А. Проблемы хранения и использования водорода в транспортных системах // *Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами IHISM-11. Материалы школы-конференции* – М.: НИЯУ МИФИ. 2011, с. 217–245.
40. Heinze S., Stolz Th., Ducret D., Colson J.-C. Self-Radiolysis of Tritiated Water: Experimental Study and Simulation // *Fusion Science and Technology*. 2005, vol. 48, N 1, p. 673–679.
41. Stolz T., Ducret D., Heinze S., Baldacchino G., Colson J.-C., Dedeu B., Pelletier Th. Self radiolysis of tritiated water // *Fusion Engineering and Design*. 2003, vol. 69, p. 57–60.
42. Магомедбеков Э. П., Растунова И. Л., Розенкевич М. Б. Современные технологии разделения изотопов водорода // *Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы*. 2014, № 3 (78), с. 70–86.
43. Hara K., Munakata K., Wajima T., Wada K., Takeishi T., Tanaka M., Uda T. Oxidation of Hydrogen over Honeycomb Catalysts Under the Presence of Water Vapor // *Fusion Science and Technology*. 2011, vol. 60, N 4, p. 1339–1341.
44. Murdoch D. K., Lässer R., Glugla M., Mack A. ITER Fuel Cycle Development; EU-PT Activities // *Fusion Science and Technology*. 2005, vol. 48, N 1, p. 3–10.
45. Taguchi A., Akai R., Saito M., Torikai Y., Matsuyama M., Ogura M., Uchida S. Tritium Removal from Tritiated Water Using Mesoporous Silica // *Fusion Science and Technology*. 2011, vol. 60, N 4, p. 1395–1398.

46. Nakamura A., Munakata K., Hara K. et al. Adsorption Characteristics of Water Vapor on Gear-Pellet and Honeycomb-Pellet Types of Adsorbents Containing A-Type Zeolite // *Fusion Science and Technology*. 2015, vol. 67, p. 499–502.
47. Kalyanam K., Leilabadi A., El-Behairy O., Williams G. I. D., Vogt H. K. Tritium Emission Reduction at Darlington Tritium Removal Facility Using a Bubbler System // *Fusion Science and Technology*. 2008, vol. 54, N 1, p. 301–304.
48. Rozenkevich M., Pak Yu., Marunich S., Bukin A., Ivanova A., Perevezentsev A., Lepetit L. Main Features of the Technology for Air Detritiation in Scrubber Column // *Fusion Science and Technology*. 2016, vol. 70, N 3, p. 435–447.
49. Kim J. W., Wong T. C. W., Tang F. K. W., Reid A. Estimation of DTRF Operational Tritium Inventory Using Cryogenic Distillation Column Temperature // *Fusion Science and Technology*. 2011, vol. 60, N 4, p. 1427–1430.
50. Heavy Water Reactors: Status and Projected Development // Technical reports series N 407. International Atomic Energy Agency. Vienna. 2002. 702 p.
51. Alekseev I. A., Bondarenko S. D., Fedorchenko O. A., Vasyanina T. V., Konoplev K. A., Arkhipov E. A., Uborsky V. V. Fifteen Years of Operation of CECE Experimental Industrial Plant in PNPI // *Fusion Science and Technology*. 2011, vol. 60, N 4, p. 1117–1120.
52. Boniface H. A., Castillo I., Everatt A. E., Ryland D. K. A Light-Water Detritiation Project at Chalk River Laboratories // *Fusion Science and Technology*. 2011, vol. 60, N 4, p. 1327–1330.
53. Cristescu I., Cristescu I. R., Dörr L., Hellriegel G., Michling R., Murdoch D., Schaefer P., Welte S., Wurster W. Experiments on Water Detritiation and Cryogenic Distillation at TLK; Impact on ITER Fuel Cycle Subsystems 3Interfaces // *Fusion Science and Technology*. 2008, vol. 54, N 2, p. 440–445.
54. Сахаровский Ю. А., Никитин Д. М., Магомедбеков Э. П., Пак Ю. С., Асновский В. Н., Баранов С. В., Глазков С. П., Суслов А. П. Способ приготовления платинового гидрофобного катализатора изотопного обмена водорода с водой: Пат. № 2307708 Рос. Федерация. № 2006102805/04; заявл. 31.01.2006; опубл. 10.10.2007, Бюл. № 28. 5 с.
55. Bruggeman A., Braet J., Vanderbiesen S. Water Detritiation: Better SCK•CEN Catalyst for Liquid Phase Catalytic Exchange // *Fusion Science and Technology*. 2005, vol. 48, N 1, p. 102–107.
56. Букин А. Н., Иванова Н. А., Марунич С. А., Пак Ю. С., Розенкевич М. Б. Способ приготовления термостойкого гидрофобного платинового катализатора для реакции окисления водорода. Патент РФ. № 2641113. Дата приоритета от 03.03.2017 г.
57. Suppiah S., Ryland D., Marcinkowska K., Boniface H., Everatt A. Performance Characterization of Hydrogen Isotope Exchange and Recombination Catalysts for Tritium Processing // *Fusion Science and Technology*. 2011, vol. 60, N 4, p. 1359–1362.

58. Drăghia M., Pașca G., Porcariu F. Development of a Tritium Recovery System from CANDU Tritium Removal Facility // *Fusion Science and Technology*. 2015, vol. 67, p. 328–331.

59. Соглашение о предоставлении субсидии Министерства образования и науки № 14.580.21.0001 от 01.12.2014 г. «Разработка и создание эффективных аппаратов-разделителей для получения кондиционной (с концентрацией 99,8 %) тяжелой воды на ФГУП «ПО «Маяк» (идентификатор проекта RFMEF158014X0001).

60. Магомедбеков Э. П., Белкин Д. Ю., Селиваненко И. Л., Растунова И. Л. Массообменные характеристики спирально-призматической насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // *Теоретические основы химической технологии*. 2016, т. 50, № 5, с. 502–507.

61. Магомедбеков Э. П., Белкин Д. Ю., Селиваненко И. Л., Растунова И. Л. Массообменные характеристики регулярной рулонной ленточно-винтовой насадки в колоннах изотопного обмена при ректификации воды под вакуумом // *Теоретические основы химической технологии*. 2016, т. 50, № 4, с. 408–413.

62. Магомедбеков Э. П., Белкин Д. Ю., Растунова И. Л., Сазонов А. Б., Селиваненко И. Л., Кулов Н. Н. Ректификация воды как метод детритизации тяжеловодного замедлителя // *Теоретические основы химической технологии*. 2017, т. 51, № 4, с. 376–383.

63. Магомедбеков Э. П., Белкин Д. Ю., Растунова И. Л., Сазонов А. Б., Селиваненко И. Л., Кулов Н. Н. Математическое моделирование и оптимизация каскада депротизации тяжеловодного замедлителя // *Теоретические основы химической технологии*. 2017, т. 51, № 2, с. 131–139.

Tritium problems in nuclear power plants

E. P. Magomedbekov, I. L. Rastunova

D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia,
Moscow, Russia
eldar@muctr.ru

In recent years, in connection with the plans of Rosatom State Corporation to build nuclear power plants abroad, the problem of the formation of tritium in various types of reactor plants and its possible release into the environment has become more and more relevant. The article presents an analysis of literature data and our own research on the problems of education, tritium in various types of nuclear power plants, and methods for its extraction and storage. The universal concept of a complex technology for the management of tritium-containing waste, methods for the extraction of tritium from gas and water flows, methods of immobilization of tritium-containing radioactive waste are presented. Based on the analysis, a concept for the extraction of tritium from a heavy water coolant by the method of water rectification with subsequent long-term storage of tritium concentrate in the form of DTO is proposed. The main advantages of this concept are the safety of the processes of purification and storage of tritium-containing heavy water.