РАЗДЕЛ 2

НАУЧНЫЕ СТАТЬИ

DOI: 10.21870/0131-3878-2019-28-2-8-24

УДК 621.039.59+621.039.7+546.791

Радиотоксичность долгоживущих высокоактивных отходов быстрых реакторов в сценариях обращения с облучённым ядерным топливом для достижения радиационной и радиологической эквивалентности с природным ураном

Иванов В.К.^{1,2,3}, Чекин С.Ю.^{1,2}, Меньяйло А.Н.^{1,2}, Максюттов М.А.^{1,2}, Туманов К.А.^{1,2},
Кашеева П.В.^{1,2}, Ловачёв С.С.^{1,2}, Спирин Е.В.³, Соломатин В.М.³

¹ МРНЦ им. А.Ф. Цыба – филиал «НМИЦ радиологии» Минздрава России, Обнинск;

² ООО «НПК «Мединфо», Обнинск;

³ Частное учреждение «ИТЦП «Прорыв», Москва

В данной работе оценка уровня радиотоксичности долгоживущих высокоактивных отходов (ДВАО), образованных из облучённого ядерного топлива (ОЯТ) реактора БРЕСТ-ОД-300, определяется по двум основным критериям: по выравниванию ожидаемых эффективных доз (ОЭД) от ДВАО и от природного урана (радиационная эквивалентность) и по выравниванию пожизненных радиационно-обусловленных рисков потенциальной индукции онкологических заболеваний человека от тех же смесей радионуклидов (радиологическая эквивалентность). Главным показателем по этим критериям является время достижения радиационной и радиологической эквивалентности. Наибольшей эффективностью по уменьшению ОЭД ДВАО обладают приёмы обращения с ОЯТ – выделение на трансмутацию Am, на использование и хранение Cs и Sr, а также временное хранение Cm в течение 70 лет с выделением Pu. В среднем по всем сценариям радиологическая эквивалентность наступает примерно в три раза раньше радиационной. Из 27 рассмотренных сценариев обращения с ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300 к наименьшим срокам достижения радиологической эквивалентности ДВАО и природного урана приводит сценарий, по которому остаток актиноидов в ДВАО представляет собой 0,1% Am и 100% Cm, а продукты деления (Cs, Sr, Tc, I) удалены на 95% от исходного состава ОЯТ. С учётом неопределённости расчёта радиационных рисков время достижения радиологической эквивалентности ДВАО ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300 и природного урана наиболее заметно увеличивается для молодой части взрослого населения России. Для возраста 20 лет время достижения радиологической эквивалентности может увеличиться со 184 до 210 лет (95% верхняя доверительная граница). Для детского населения требуются дальнейшие исследования данного вопроса.

Ключевые слова: радиационный риск, внутреннее облучение, эквивалентная доза, ожидаемая эффективная доза, злокачественные новообразования, население, облучённое ядерное топливо, радиоактивные отходы, долгоживущие высокоактивные отходы, быстрый реактор, БРЕСТ-300, обращение с ОЯТ, природный уран, неопределённость риска, радиационная эквивалентность, радиологическая эквивалентность.

Введение

Как известно, технические решения для создания новой реакторной технологии, обеспечивающей естественную безопасность, разрабатываются в России с середины 90-х годов прошлого столетия. К основным принципам этой технологии относится экологическая приемлемость (радиационная эквивалентность), заключающаяся в выравнивании радиотоксичности по-

Иванов В.К. – зам. директора по научн. работе, Председатель РНКРЗ, чл.-корр. РАН; Чекин С.Ю.* – зав. лаб.; Меньяйло А.Н. – вед. научн. сотр., к.б.н.; Максюттов М.А. – зав. отд., к.т.н.; Туманов К.А. – зав. лаб., к.б.н.; Кашеева П.В. – ст. научн. сотр., к.б.н.; Ловачёв С.С. – мл. научн. сотр. МРНЦ им. А.Ф. Цыба – филиал ФГБУ «НМИЦ радиологии» Минздрава России, ООО «НПК «Мединфо». Спирин Е.В. – гл. научн. сотр. отдела Гл. радиоэколога ПН «Прорыв», д.б.н.; Соломатин В.М. – нач. отдела Гл. радиоэколога ПН «Прорыв», к.б.н. Частное учреждение «ИТЦП «Прорыв».

*Контакты: 249036, Калужская обл., Обнинск, ул. Королёва, 4. Тел.: (484) 399-30-79; e-mail: nrer@obninsk.com.

лучившихся при производстве энергии радиоактивных отходов (РАО) и использованного уранового сырья.

В последние годы произошли серьёзные изменения в оценке уровня радиотоксичности. Дело в том, что были завершены многолетние радиационно-эпидемиологические исследования в Хиросиме и Нагасаки после атомной бомбардировки этих городов в 1945 г. В течение 60 лет после бомбардировки оценивалось состояние здоровья «хибакуси» (лиц, переживших атомную бомбардировку) с точки зрения возможного радиационного канцерогенеза. Было, в частности, установлено, что кроме полученной дозы облучения значимыми параметрами при оценке радиационного онкориска являются пол, возраст на момент радиационного воздействия, достигнутый возраст и др. Несмотря на высокий уровень неопределённости в оценке радиационных рисков при малых дозах облучения (от 0 до 100 мЗв), что подтверждают также выводы радиационно-эпидемиологических исследований после аварии на Чернобыльской АЭС, авторитетные международные организации (НКДАР ООН, МКРЗ и МАГАТЭ) по-прежнему рекомендуют использовать для целей радиационной защиты линейную беспороговую зависимость «доза-эффект» [1-3]. В действующих Международных основных нормах безопасности МАГАТЭ подчёркивается необходимость оценки радиационных рисков при облучении населения и профессиональном облучении [4].

Оценка уровня радиотоксичности облучённого ядерного топлива (ОЯТ) и РАО определяется в настоящей работе по двум основным критериям:

- радиационная эквивалентность – выравнивание ожидаемых эффективных доз (ОЭД) облучения РАО и природного урана за счёт замыкания топливного цикла с сжиганием и трансмутацией минорных актинидов;
- радиологическая эквивалентность – выравнивание пожизненных радиационно-обусловленных рисков потенциальной индукции онкологических заболеваний от РАО и природного урана с учётом динамики эквивалентных (органных) доз облучения.

Главным показателем по этим критериям является время достижения радиационной и радиологической эквивалентности. Важность указанных характеристик определяется возможностью их сравнения с временным интервалом, когда обеспечивается неразрушение инженерных барьеров геологического захоронения.

Материалы и методы

ОЭД радиоактивных отходов при их окончательном захоронении можно вычислить как произведение активности на дозовый коэффициент при пероральном потреблении [5].

Дополнительно для учёта миграционной способности радионуклидов в отходах используют поправку на растворимость либо в виде коэффициента распределения между твёрдой и жидкой фазами, либо с помощью коэффициента задержки – отношения скоростей движения растворённой части радионуклида по порам горных пород к скорости движения воды [6]. Оба коэффициента связаны друг с другом и при их больших величинах практически пропорциональной связью.

В открытом ядерном топливном цикле проблему уменьшения количества радиоактивных отходов и их радиотоксичности практически невозможно решить, в то время как в замкнутом цикле с быстрыми реакторами помимо полного использования добываемого урана возможно сжигание и трансмутация отдельных долгоживущих радионуклидов.

Для определения эффективности обращения с ОЯТ и РАО на принципах радиационной и радиологической эквивалентностей рассмотрим изменение ОЭД во времени долгоживущих высокоактивных отходов (ДВАО). Сценарии для проведения расчётов приведены в табл. 1.

Таблица 1

Варианты обращения с ДВАО для оценок потенциальной биологической опасности

Растворимость	Сценарий для актиноидов (остаток в ДВАО, %)		Сценарий по продуктам деления (ПД)		
			вместе с долгоживущими ПД, Cs и Sr	без 95%(Cs+Sr)	без 95%(Cs+Sr) и 95%Tc-95%I
			1	2	3
Без учёта растворимости	0,01% U,Pu,Np	0	0-1	0-2	0-3
	0,1%Am+100%Сm	1	1-1	1-2	1-3
	1%Am+100%Сm	2	2-1	2-2	2-3
	0,1%Am+Сm (с выдержкой 70 лет и выделением Pu к ДВАО через 70 лет)	3	3-1	3-2	3-3
	1%Am+Сm (с выдержкой 70 лет и выделением Pu к ДВАО через 70 лет)	4	4-1	4-2	4-3
С учётом растворимости	13 т U природного	5			
	0,1%Am+100%Сm	11	11-1	11-2	11-3
	1%Am+100%Сm	12	12-1	12-2	12-3
	0,1%Am+Сm (с выдержкой 70 лет и выделением Pu к ДВАО через 70 лет)	13	13-1	13-2	13-3
	1%Am+Сm (с выдержкой 70 лет и выделением Pu к ДВАО через 70 лет)	14	14-1	14-2	14-3
	13 т U природного	15			

Исходными данными для расчёта ОЭД ДВАО служили данные по радионуклидному составу в ОЯТ после кампании 5 лет и выдержки 3 года с выгоранием 66 Мвт-сут/кг БРЕСТ-ОД-300 U, Pu и Np (99,99% возвращаются в рефабрицированное топливо для быстрых реакторов), минорных актиноидов и долгоживущих продуктов деления вместе с ^{90}Sr и ^{137}Cs [7]. Активность основных долгоживущих радионуклидов (на тонну тяжёлых атомов (т.а.)) в ОЯТ на время выдержки 3 года приведена в табл. 2. Вместе с данными по составу в табл. 2 приведены коэффициенты распределения из работ [8, 9]. Данные по дозовым коэффициентам радионуклидов из состава продуктов деления и цепочек распада актиноидов взяты из Публикации 119 МКРЗ [10].

Таблица 2

Входные данные для расчёта ОЭД ДВАО БРЕСТ-ОД-300

Радионуклид	Активность, Бк/т т.а.	Коэффициент распределения, Kd, л/кг	Радионуклид	Активность, Бк/т т.а.	Коэффициент распределения, Kd, л/кг
^{235}U	6,85E+07	110	^{89}Se	3,36E+10	1000
^{236}U	4,76E+08	110	^{90}Sr	2,79E+15	1000
^{238}U	9,73E+09	110	$^{93\text{m}}\text{Nb}$	1,35E+10	1000
^{238}Pu	1,25E+15	950	^{93}Zr	1,02E+11	1000
^{239}Pu	2,03E+14	950	^{94}Nb	5,30E+07	1000
^{240}Pu	2,70E+14	950	^{98}Tc	7,74E+05	5
^{241}Pu	2,29E+16	950	^{99}Tc	1,08E+12	5
^{241}Am	3,06E+14	4200	^{107}Pd	1,76E+10	1000
^{242}Pu	9,83E+11	950	$^{108\text{m}}\text{Ag}$	5,72E+08	1000
$^{242\text{m}}\text{Am}$	1,81E+13	4200	^{115}In	5,48E-01	1000
^{242}Am	1,80E+13	4200	$^{121\text{m}}\text{Sn}$	2,77E+12	1000
^{242}Cm	9,41E+13	19000	^{126}Sn	9,28E+10	1000
^{243}Am	4,94E+12	4200	^{129}I	3,34E+09	10
^{243}Cm	3,20E+12	19000	^{135}Cs	1,28E+11	1000
^{244}Pu	1,87E+04	950	^{137}Cs	7,81E+15	1000
^{244}Cm	2,91E+14	19000	^{138}La	1,56E+02	1000
^{245}Cm	4,68E+10	19000	^{151}Sm	2,59E+14	1000
^{246}Cm	2,90E+09	19000	^{152}Eu	3,86E+12	1000
^{247}Cm	1,62E+04	19000	^{154}Eu	3,52E+14	1000
^{248}Cm	1,10E+04	19000	^{158}Tb	5,88E+08	1000
^{237}Np	6,45E+09	38	$^{166\text{m}}\text{Ho}$	1,93E+08	1000
^{234}U	2,80E+10	110			

Расчёт активности на время t n -го радионуклида в цепочке распада материнского радионуклида из состава актиноидов проводили по формуле [7]:

$$A_n(t) = A_1(0) \cdot \left(\prod_{i=2}^n \lambda_i \right) \cdot \sum_{k=1}^n \left[\frac{\exp(-\lambda_k \cdot t)}{\left(\prod_{j=1}^{k-1} (\lambda_j - \lambda_k) \right) \cdot \left(\prod_{j=k+1}^n (\lambda_j - \lambda_k) \right)} \right], \quad (1)$$

где $A_n(t)$ – активность n -го радионуклида в цепочке распада на время t , Бк; $A_1(0)$ – начальная активность материнского радионуклида, Бк; λ_i – константа распада i -го радионуклида, год⁻¹.

Оценка радиологической эквивалентности основывается на вычислении по ОЭД от ДВАО пожизненных атрибутивных радиационных рисков (LAR) заболеваемости злокачественными новообразованиями (ЗНО). Методика вычисления LAR от внутреннего облучения изложена ранее в работе [11]. Напомним, что LAR характеризует избыточное число случаев ЗНО, которые могут произойти в группе облучённых лиц в течение всей последующей жизни, по сравнению с их ожидаемым фоновым числом в отсутствие этого облучения.

При условии дожития до текущего возраста e этот риск вычисляется путём суммирования избыточного абсолютного риска (EAR) с весом функции здорового дожития по возрастам дожития a , начиная от текущего возраста e до 100 лет.

$$LAR(s, c, e) = \frac{1}{DDREF} \cdot \sum_{a=e}^{100} [EAR(s, c, a) \cdot S(s, c, e, a)]. \quad (2)$$

Здесь s – пол, c – локализация опухоли, e – текущий возраст, a – возраст, на который прогнозируется риск ($a \geq e$), $DDREF$ – коэффициент эффективности дозы и мощности дозы, равный 2 для солидных ЗНО и 1 – для лейкозов, S – функция здорового дожития.

Избыточный абсолютный риск – это приращение фонового показателя заболеваемости ЗНО после радиационного воздействия. Данный риск вычисляется как взвешенное среднее между аддитивной и мультипликативной моделями избыточного абсолютного риска. Данные модели и числовые значения параметров этих моделей приведены в Публикации 103 МКРЗ [2].

Функция здорового дожития характеризует вероятность для человека заданного пола s и возраста e дожить до заданного возраста a и не заболеть при этом ЗНО заданной локализации c .

Для целей определения радиологической эквивалентности используется усреднённый пожизненный атрибутивный риск онкозаболеваемости по всем возможным возрастам населения (0-100 лет) и полу.

Вычисление пожизненного атрибутивного риска производится по эквивалентным дозам, полученным из ОЭД ДВАО, нормированной на ОЭД 13 т природного урана. Напрямую ОЭД не используется, а сначала преобразуется в набор эквивалентных доз для органов и тканей от однократного поступления в организм нормированной ОЭД для соответствующих радионуклидов. Для преобразования ОЭД в набор эквивалентных доз применяется база данных МКРЗ [10], где дана динамика накопления эквивалентных доз во времени для различных органов и типов радионуклидов. Схема определения эквивалентных доз по ОЭД подробно была описана ранее [11].

Результаты и обсуждение

Результаты расчётов ОЭД по разным сценариям обращения с ОЯТ для критической группы населения «взрослые» представлены на рис. 1-10 в виде относительных величин по сравнению с ОЭД 13 т природного урана.

Рис. 1. ОЭД ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 по отношению к 13 т природного U по сценариям без выделения актиноидов.

Рис. 2. ОЭД ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 по отношению к 13 т природного U по сценариям с выделением 99,9% Am.

Рис. 3. ОЭД ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 по отношению к 13 т природного U по сценариям с выделением 99% Am.

Рис. 4. ОЭД ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 по отношению к 13 т природного U по сценариям с выделением 99,9% Am и выдержкой Cm.

Рис. 5. ОЭД ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 по отношению к 13 т природного U по сценариям с выделением 99% Am и выдержкой Cm.

Рис. 6. ОЭД растворимой части ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 по отношению к 13 т природного U по сценариям с выделением 99,9% Am.

Рис. 7. ОЭД растворимой части ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 по отношению к 13 т природного U по сценариям с выделением 99% Am.

Рис. 8. ОЭД растворимой части ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 по отношению к 13 т природного U по сценариям с выделением 99,9% Am и выдержкой Cm.

Рис. 9. ОЭД растворимой части ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 по отношению к 13 т природного U по сценариям с выделением 99% Am и выдержкой Cm (дополнительно вариант 14-4 без выделения I и Tc и выделением 99% Cs и Sr).

Рис. 10. Сравнительная ОЭД ДВАО при выделении Cs и Sr (вариант 1-2) и дополнительно Cm для выдержки (вариант 3-2).

Анализ данных, представленных на рисунках, показывает, что наибольшей эффективностью по уменьшению ОЭД долгоживущих высокоактивных отходов обладают приёмы обращения с ОЯТ – выделение на трансмутацию Am, на использование и хранение Cs и Sr, а также временное хранение Cm в течение 70 лет с выделением Pu. Последний вариант наглядно показан на рис. 10. Выделение I и Tc можно рассматривать как дополнительные мероприятия по уменьшению потенциального вреда здоровью человека от ДВАО. Эффект от них проявляется при учёте растворимости радионуклидов на времена более 300-500 лет, когда влияние Cs и Sr мало сказывается на ОЭД.

На основе данных рис. 1-10 были вычислены значения LAR. В табл. 3 представлен результат оценки времени наступления радиационной и радиологической эквивалентностей.

Из полученных данных следует, что в большинстве случаев радиологическая эквивалентность наступает значительно раньше радиационной. Исключением являются сценарии 11-1, 11-2, 12-1, 12-2, 13-1, 13-2, 13-3, 14-1, 14-2. Наоборот, для сценария 11-3 время наступления радиологической в 15,3 раза меньше, чем время наступления радиационной эквивалентности. Примерно такое же соотношение для сценария 2-2 (14,9 раза). В среднем по всем сценариям радиологическая эквивалентность наступает примерно в три раза раньше радиационной.

Таблица 3

Время наступления радиационной и радиологической эквивалентностей по разным сценариям обращения с ДВАО для критической группы населения «взрослые» (номера сценариев приведены в соответствии с табл. 1)

Номер сценария	Радиационная эквивалентность, лет	Радиологическая эквивалентность, лет
0-1	23535	4867
0-2	23523	4867
0-3	23474	4866
1-1	341	284
1-2	210	143
1-3	209	142
2-1	821	291
2-2	819	165
2-3	816	165
3-1	290	280
3-2	188	165
3-3	188	165
4-1	452	287
4-2	394	176
4-3	392	176
11-1	65976	303790
11-2	65534	301019
11-3	4455	291
12-1	70912	310301
12-2	70490	307540
12-3	4772	547
13-1	55454	302800
13-2	54881	300026
13-3	199	227
14-1	62335	309317
14-2	61794	306554
14-3	320	262

Для примера на рис. 11 представлены данные по радиологической эквивалентности сценария 1-3. В этом сценарии наблюдается минимальное время наступления радиологической эквивалентности.

Рис. 11. LAR ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 и 13 т природного урана, полученный по дозам, нормированным на 1 мЗв ОЭД 13 т природного урана; точка пересечения кривых 143 года.

На рис. 12 и 13 представлен для сценария 1-3 вклад (в %) значимых радионуклидов ДВАО в ОЭД и LAR соответственно. Под значимыми радионуклидами понимаются те, чей вклад в ОЭД выше 1% в течение первых 5000 лет выдержки. Из этих рисунков видно, что наибольший вклад как в ОЭД, так и в LAR в первый период времени выдержки вносит изотоп ^{244}Cm , а уже через 500 лет начинает доминировать изотоп ^{240}Pu .

Рис. 12. Вклад (%) в ОЭД значимых радионуклидов ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 для сценария 1-3.

Рис. 13. Вклад (%) в LAR значимых радионуклидов ДВАО от 1 т ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 для сценария 1-3.

На расчёт времени достижения радиологической эквивалентности оказывают влияние неопределённости расчёта величин LAR. Они складываются из нескольких составляющих: неопределённость коэффициентов моделей рисков и DDREF, неопределённость фоновых (в от-

сутствие техногенного облучения) половозрастных показателей заболеваемости ЗНО, неопределённость дозы.

Модели радиационного риска МКРЗ [2], использованные для расчётов в данной работе, содержат неопределённости, связанные с оценкой параметров этих моделей по эпидемиологическим данным. Стандартные отклонения параметров модели для солидных типов рака и для лейкозов можно оценить по данным работ D.L. Preston и соавт. [12, 13]. Таблицы стандартных отклонений параметров моделей приведены в работе А.Н. Меняйло и соавт. [14]. Считается, что оценки параметров моделей распределены по нормальному вероятностному закону, так как были получены методом максимального правдоподобия [15]. Неопределённость DDREF в данной работе не учитывалась, т.к. в использованных моделях МКРЗ величины DDREF (2 – для солидных ЗНО и 1 – для лейкозов) введены как детерминированные константы, не связанные со статистическими оценками остальных параметров этих моделей по эпидемиологическим данным. Учёт неопределённости DDREF требует отдельного более широкого изучения, в совокупности с неопределённостями структуры моделей риска, в частности, с учётом моделей НКДАР ООН [1].

Половозрастные показатели заболеваемости ЗНО входят в расчёт избыточного абсолютного риска заболеваемости солидными типами ЗНО по мультипликативной модели МКРЗ и считаются распределёнными по усечённому слева (в отрицательной области значений) нормальному закону со средним значением, соответствующим усреднённому по регионам РФ фоновому показателю для заданного возрастного интервала и пола. Эмпирическое стандартное отклонение среднего показателя вычислено по выборке, состоящей из фоновых показателей для каждого региона РФ. Оно рассчитано отдельно для каждого пятилетнего возрастного интервала и пола. Функция дожития считается детерминированной функцией.

Большой вклад в неопределённость радиационных рисков вносит неопределённость дозы облучения, обусловленная погрешностями измерений и методов оценки доз. В случае внутреннего облучения оценка эквивалентных доз в органах и тканях опирается на модельные представления о стандартном человеке. Неопределённость, связанная с оценками доз, наиболее велика именно для внутреннего облучения. Неопределённость дозы в данной работе задавалась как неопределённость ОЭД в виде стандартного отклонения, равного 75% от среднего значения ОЭД, при условии логнормального распределения ОЭД. Статистический разброс значений моделировался отдельно для ОЭД от каждого радионуклида. В расчёте использовались только те радионуклиды, которые вносили вклад в ОЭД больше 1% за первые 5000 лет выдержки ОЯТ (рис. 12).

Оценка неопределённостей величин LAR от ДБАО была проведена для сценария 1-3 (табл. 1), для которого прогнозируется минимальное время достижения радиологической эквивалентности. Оценка 95% доверительных границ LAR проводилась методом Монте-Карло [16], на основе 1000 случайных реализаций LAR для каждого календарного года или для каждого возраста на момент поступления радионуклидов.

Результаты расчёта для взрослого населения России (18-100 лет на момент поступления радионуклидов) [17], с указанием 95% нижней доверительной границы (НДГ) и верхней доверительной границы (ВДГ), приведены в табл. 4.

Таблица 4

LAR ДБАО от ОЯТ БРЕСТ-ОД-300, нормированный на 1 мЗв ОЭД природного урана, для взрослого населения России

Время выдержи ОЯТ БРЕСТ-ОД-300, годы	LAR ДБАО от ОЯТ БРЕСТ-ОД-300			Отличие доверительных границ от среднего значения, в %	
	Среднее	95% НДГ	95% ВДГ	95% НДГ	95% ВДГ
1	1,88E-03	1,74E-03	2,09E-03	7,48	11,33
30	7,44E-04	6,90E-04	8,11E-04	7,28	8,98
50	4,13E-04	3,84E-04	4,48E-04	7,07	8,40
70	2,37E-04	2,20E-04	2,57E-04	7,01	8,29
100	1,09E-04	1,02E-04	1,17E-04	6,77	7,17
140	4,36E-05	4,07E-05	4,68E-05	6,74	7,31
200	1,55E-05	1,46E-05	1,66E-05	6,14	7,06
300	7,47E-06	6,80E-06	8,18E-06	9,00	9,47
500	6,00E-06	5,37E-06	6,74E-06	10,55	12,37
1000	5,26E-06	4,65E-06	6,01E-06	11,62	14,16
5000	3,31E-06	2,91E-06	3,76E-06	12,29	13,34

На рис. 14 показано влияние неопределённости расчёта риска на время достижения радиологической эквивалентности: пересечение по времени кривой LAR ДБАО от ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300 и LAR от природного урана, в пересчёте на 1 мЗв ОЭД природного урана, для взрослого населения РФ (возраст 18-100 лет на момент поступления радионуклидов). В качестве шкалы времени выбрано время выдержки ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300. Точка пересечения кривой LAR от ДБАО и уровня LAR от природного урана при учёте неопределённости расчёта LAR от ДБАО меняется незначительно: 139 лет для 95% НДГ LAR, 142 года для среднего значения LAR и 148 лет для 95% ВДГ LAR.

При расчёте LAR по половозрастным группам абсолютный статистический разброс значений риска меняется с возрастом, что иллюстрирует рис. 15 на примере выдержки 140 лет ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300.

Рис. 14. LAR ДБАО от ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300 и LAR природного урана, в пересчёте на 1 мЗв ОЭД природного урана, для взрослого населения РФ (18-100 лет).

Рис. 15. LAR ДБАО от ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300 в пересчёте на 1 мЗв ОЭД природного урана, и его 95% доверительные границы, в зависимости от возраста при поступлении радионуклидов в организм человека.

На рис. 16 показано влияние неопределённости расчёта риска на время достижения радиологической эквивалентности: пересечение по времени кривой LAR ДБАО от ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 и LAR от природного урана, в пересчёте на 1 мЗв ОЭД природного урана, для возраста 20 лет на момент поступления радионуклидов. В качестве шкалы времени выбрано время выдержки ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300. Для возраста 20 лет точка пересечения кривой LAR от ДБАО и уровня LAR от природного урана при учёте неопределённости расчёта LAR от ДБАО меняется заметнее, чем в среднем для населения России, приблизительно в пределах 60-летнего интервала: 153 года для 95% НДГ LAR, 184 года для среднего значения LAR и 210 лет для 95% ВДГ LAR.

Рис. 16. LAR ДБАО от ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300 и LAR природного урана, в пересчёте на 1 мЗв ОЭД природного урана, населения РФ возраста 20 лет при поступлении радионуклидов.

Выводы

1. Наибольшей эффективностью по уменьшению ОЭД ДВАО обладают приёмы обращения с ОЯТ – выделение на трансмутацию Am, на использование и хранение Cs и Sr, а также временное хранение Cm в течение 70 лет с выделением Pu.

2. В среднем по всем сценариям радиологическая эквивалентность наступает примерно в три раза раньше радиационной.

3. Из 27 рассмотренных сценариев обращения с ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300 к наименьшим срокам достижения радиологической эквивалентности ДВАО и природного урана приводит сценарий, по которому остаток актиноидов в ДВАО представляет собой 0,1% Am и 100% Cm, а продукты деления (Cs, Sr, Tc, I) удалены на 95% от исходного состава ОЯТ (табл. 1, сценарий 1-3).

4. С учётом неопределённости расчёта радиационных рисков время достижения радиологической эквивалентности ДВАО ОЯТ реактора БРЕСТ-ОД-300 и природного урана наиболее заметно увеличивается для молодой части взрослого населения России. Для возраста 20 лет время достижения радиологической эквивалентности может увеличиться со 184 до 210 лет (95% ВДГ). Для детского населения требуются дальнейшие исследования данного вопроса.

Литература

1. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR). Sources, effects and risks of ionizing radiation. UNSCEAR 2012 Report to the General Assembly with Scientific Annexes. New York: United Nation, 2015. 328 p. [Электронный ресурс]. URL: http://www.unscear.org/docs/publications/2012/UNSCEAR_2012_Report.pdf (дата обращения 07.03.2019).
2. Публикация 103 Международной комиссии по радиационной защите (МКРЗ): пер. с англ. /Под общей ред. М.Ф. Киселёва и Н.К. Шандалы. М.: Изд. ООО ПКФ «Алана», 2009. 312 с. [Электронный ресурс]. URL: http://www.icrp.org/docs/P103_Russian.pdf (дата обращения 11.03.2019).
3. **Konogorov A.P., Ivanov V.K., Chekin S.Yu., Khait S.E.** A case-control analysis of leukemia in accident emergency workers of Chernobyl //J. Environ. Pathol. Toxicol. Oncol. 2000. V. 19, N 1-2. P. 143-151.
4. Радиационная защита и безопасность источников излучения: Международные основные нормы безопасности. Общие требования безопасности, часть 3. Серия норм безопасности МАГАТЭ, № GSR Part 3. Вена: МАГАТЭ, 2015. 477 с. [Электронный ресурс]. URL: https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Pub1578_R_web.pdf (дата обращения 07.03.2019).
5. **Адамов Е.О., Ганев И.Х.** Экологически безупречная ядерная энергетика. М.: НИКИЭТ им. Н.А. Доллежаля, 2007. 145 с.
6. **Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В., Муратов В.Г., Орлов В.В.** Трансмутационный топливный цикл в крупномасштабной ядерной энергетике России. М.: ГУП НИКИЭТ, 1999. 252 с.
7. **Спирин Е.В., Алексахин Р.М., Власкин Г.Н., Уткин С.С.** Радиационный баланс отработавшего ядерного топлива быстрого реактора и природного урана //Атомная энергия. 2015. Т. 119, вып. 2. С. 114-119.
8. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. TRS-364. Vienna: IAEA, 1994. 86 p.
9. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. TRS-472. Vienna: IAEA, 2010. 208 p.
10. ICRP, 2012. Compendium of dose coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119 //Ann. ICRP. 2012. V. 41 (Suppl.). 130 p.
11. **Иванов В.К., Чекин С.Ю., Меньяло А.Н., Максюттов М.А., Туманов К.А., Кашеева П.В., Ловачёв С.С., Адамов Е.О., Лопаткин А.В.** Уровни радиологической защиты населения при реализации принципа радиационной эквивалентности: риск-ориентированный подход //Радиация и риск. 2018. Т. 27, № 3. С. 9-23.
12. **Preston D.L., Ron E., Tokuoka S., Funamoto S., Nishi N., Soda M., Mabuchi K., Kodama K.** Solid cancer incidence in atomic bomb survivors: 1958-1998 //Radiat. Res. 2007. V. 168, N 1. P. 1-64.
13. **Preston D.L., Kusumi S., Tomonaga M., Izumi S., Ron E., Kuramoto A., Kamada N., Dohy H., Matsuo T., Nonaka H., Thompson D.E., Soda M., Mabuchi K.** Cancer incidence in atomic bomb survivors. Part III: Leukemia, lymphoma and multiple myeloma, 1950-1987 //Radiat. Res. 1994. V. 137. P. 68-97.
14. **Меньяло А.Н., Ловачёв С.С., Чекин С.Ю., Иванов В.К.** Технология оценки радиационных рисков ОЯТ с учётом состава смесей радионуклидов и распределений органных доз облучения //Радиация и риск. 2019. Т. 28, № 1. С. 26-36.
15. **Breslow N.E., Day N.E.** Statistical methods in cancer research. Vol. II – The design and analysis of cohort studies. Lyon: IARC, 1987. 406 p.
16. **Соболь И.М.** Метод Монте-Карло. М.: Наука, 1968. 64 с.
17. Злокачественные новообразования в России в 2016 году (заболеваемость и смертность) /Под ред. А.Д. Каприна, В.В. Старинского, Г.В. Петровой. М.: МНИОИ им. П.А. Герцена, 2018. 250 с.

Spent nuclear fuel management: new approaches to evaluating radiotoxicity of long-lived high-level nuclear wastes of fast reactors

Ivanov V.K.^{1,2,3}, Chekin S.Yu.^{1,2}, Menyajlo A.N.^{1,2}, Maksioutov M.A.^{1,2}, Tumanov K.A.^{1,2}, Kashcheeva P.V.^{1,2}, Lovachev S.S.^{1,2}, Spirin E.V.³, Solomatin V.M.³

¹ A. Tsyb MRRC, Obninsk;

² Medinfo LLC, Obninsk;

³ Innovation and Technology Center for the PRORYV, Moscow

In this paper, radiotoxicity of long-lived high-level by-products arising from spent nuclear fuel from BREST-OD-300 is considered in terms of radiological equivalence between lifetime radiation-associated risks for human health from the nuclear wastes and natural uranium (radiological equivalence), as well as radiation equivalence between committed effective doses from the wastes and natural uranium (radiation equivalence). Detailed analysis of the above equivalences is given in previous papers. The toxicity level is measured by time period between unloading the spent nuclear fuel and the equivalence achievement time. The most effective method for reducing committed effective doses is partitioning and transmutation (P&T) of americium, Am, use and holding cesium, Cs, and strontium, Sr, 70-year holding curium, Cm, followed by plutonium partitioning. According to calculations, radiological equivalence is achieved about 3 times earlier than radiation equivalence. Twenty seven scenarios of nuclear spent fuel removed from the BREST-OD-300 management was considered. The shortest period between unloading the fuel and radiological equivalence achievement is in case when the waste consists 0.1% of Am and 100% of Cm, and 95% of fission products Cs, Sr, Tc, I are removed. Due to uncertainty in radiation risks estimates, radiological equivalence achievement period increases when radiation risks for Russian young adults are assessed. If adults aged 20 years are considered achievement period can increase from 184 to 210 years (the upper endpoint of 95% confidence interval). To estimate radiological equivalence achievement time for children further research is needed.

Key words: radiation risk, internal exposure, equivalent dose, committed effective dose, malignant neoplasm, population, spent nuclear fuel, radioactive waste, long-lived high-level radioactive waste, fast reactor, BREST-300, management of spent nuclear fuel, natural uranium, uncertainty of risk, radiation equivalence, radiological equivalence.

References

1. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR). Sources, effects and risks of ionizing radiation. UNSCEAR 2012 Report to the General Assembly with Scientific Annexes. New York, United Nation, 2015. 328 p. Available at: http://www.unscear.org/docs/publications/2012/UNSCEAR_2012_Report.pdf (Accessed 07.03.2019).
2. ICRP, 2007. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103. *Ann. ICRP*, vol. 37, no. 2-4.
3. Konogorov A.P., Ivanov V.K., Chekin S.Yu., Khait S.E. A case-control analysis of leukemia in accident emergency workers of Chernobyl. *J. Environ. Pathol. Toxicol. Oncol.*, 2000, vol. 19, no. 1-2, pp. 143-151.
4. Radiation protection and safety of radiation sources: international basic safety standards. General Safety Requirements Part 3. Vienna, IAEA, 2015. 477 p. Available at: https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Pub1578_R_web.pdf (Accessed 07.03.2019). (In Russian).
5. Adamov E.O., Ganev I.Kh. Environmentally pure nuclear power. Moscow, N. Dollezhal PERDI, 2007. 145 p. (In Russian).

Ivanov V.K. – Deputy Director, Chairman of RSCRP, Corresponding Member of RAS; Chekin S.Yu.* – Head of Lab.; Menyajlo A.N. – Lead. Researcher, C. Sc., Biol.; Maksioutov M.A. – Head of Dep., C. Sc., Tech.; Tumanov K.A. – Head of Lab., C. Sc., Biol.; Kashcheeva P.V. – Senior Researcher, C. Sc., Biol.; Lovachev S.S. – Research Assistant. A. Tsyb MRRC, Medinfo. Spirin E.V. – Chief Researcher of the Dep. of the Chief Radioecologist, Project PRORYV, D. Sc., Biol.; Solomatin V.M. – Head of Dep. of the Chief Radioecologist, Project PRORYV, C. Sc., Biol. ITC for the PRORYV.

*Contacts: 4 Korolev str., Obninsk, Kaluga region, Russia, 249036. Tel.: (484) 399-30-79; e-mail: nrer@obninsk.com.

6. **Adamov E.O., Ganey I.Kh., Lopatkin A.V., Muratov V.G., Orlov V.V.** Transmutation fuel cycle in large-scale Russian nuclear power industry. Moscow, NIKIET, 1999. 252 p. (In Russian).
7. **Spirin E.V., Aleksakhin R.M., Vlaskin G.N., Utkin S.S.** Radiation balance of spent nuclear fuel of a fast reactor and natural uranium. *Atomnaya energiya – Atomic Energy*, 2015, vol. 119, no. 2, pp. 114-119. (In Russian).
8. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. TRS-364. Vienna, IAEA, 1994. 86 p.
9. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments. TRS-472. Vienna, IAEA, 2010. 208 p.
10. ICRP, 2012. Compendium of dose coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. *Ann. ICRP*, 2012, vol. 41 (Suppl.), 130 p.
11. **Ivanov V.K., Chekin S.Yu., Menyajlo A.N., Maksioutov M.A., Tumanov K.A., Kashcheeva P.V., Lovachev S.S., Adamov E.O., Lopatkin A.V.** Application of the radiation equivalence principle to estimation of levels of radiological protection of the population: risk-oriented approach. *Radiatsiya i risk – Radiation and Risk*, 2018, vol. 27, no. 3, pp. 9-23. (In Russian).
12. **Preston D.L., Ron E., Tokuoka S., Funamoto S., Nishi N., Soda M., Mabuchi K., Kodama K.** Solid cancer incidence in atomic bomb survivors: 1958-1998. *Radiat. Res.*, 2007, vol. 168, no. 1, pp. 1-64.
13. **Preston D.L., Kusumi S., Tomonaga M., Izumi S., Ron E., Kuramoto A., Kamada N., Dohy H., Matsuo T., Nonaka H., Thompson D.E., Soda M., Mabuchi K.** Cancer incidence in atomic bomb survivors. Part III: Leukemia, lymphoma and multiple myeloma, 1950-1987. *Radiat. Res.*, 1994, vol. 137, pp. 68-97.
14. **Menyajlo A.N., Lovachev S.S., Chekin S.Yu., Ivanov V.K.** Assessment of radiation risks from spent nuclear fuel depending on composition of radionuclides and radiation dose distribution in organs. *Radiatsiya i risk – Radiation and Risk*, 2019, vol. 28, no. 1, pp. 26-36. (In Russian).
15. **Breslow N.E., Day N.E.** Statistical methods in cancer research. Vol. II – The design and analysis of cohort studies. Lyon, IARC, 1987. 406 p.
16. **Sobol I.M.** Monte Carlo method. Moscow, Nauka, 1968. 64 p. (In Russian).
17. *Malignant neoplasms in Russia in 2016 (morbidity and mortality)*. Eds.: A.D. Kaprin, V.V. Starinskiy, G.V. Petrova. Moscow, P. Hertsen MORI, 2018. 250 p. (In Russian).