Radioaktív hulladékok biztonsága
Fizikus M.Sc. és Energetikus M.Sc. képzések (3+1 kredit)
Az előadás első része – általános ismeretek

1. A radioaktív hulladékokkal közvetlenül kapcsolatos sugárvédelmi ismeretek rövid összefoglalása

2. A nukleáris biztonság és a radioaktív hulladék definíciói, a hulladékokra vonatkozó szabályozás

3. Radioaktív hulladékok típusai, vizsgálati módszereik

4. Radioaktív hulladékok feldolgozásának eljárásai

Félévközi dolgozatok: 2022. X. 17. és XII. 5.

Laborgyakorlatok

- „Projektlabor” egymást követő hetekben, a félév második felében

Ajánlott jegyzetek

- Zagyvai P., Kókai Zs., Hózer Z., Breitner D., Fábián M., Török Sz., Börcsök E.: A nukleáris üzemanyagciklus radioaktív hulladékai (PSI-EK 2013.)
- https://www.tankonyvtar.hu/hu/tartalom/tamop425/0021_Nuklearis_ipar_hulladekkezelese/ch01s03.html
- https://oktatok.reak.bme.hu/zagyvai/

Sugárvédelmi ismeretek összefoglalása

Elnyelt (fizikai) dózis D [J/kg = gray = Gy]

$$D = \frac{dE}{dm}$$

Fizikai dózis: az anyag tömegegységében elnyelt összes sugárzási energia, csak fizikai kölcsönhatásokat foglal magába.
Bármelyik ionizáló sugárzásra értelmezhető.
Csak ionizáló sugárzásokra értelmezhető, de nem csak az ionizációra fordított energiát jelent, hanem a teljes elnyelt energiát.
Nem tartalmazza az anyagból kilépett (szórt, szekunder) sugárzási energiát.
„Egyesíti” a különböző forrásokból származó energia-beviteleket = a céltárgy dózisát számos egyidejű folyamat összegzett energiájának felvétele jelenti.

Sugárvédelmi ismeretek összefoglalása

Ionizáló sugárzások egészségkárosító hatásai

- Determinisztikus hatás = szövetpusztulás; szövetenként eltérő küszöbdózis felett következik be (legérzékenyebb: magzat 0,1 Gy-től)
- Sztochasztikus hatás = sejtmutáció (ős- és szöveti sejtekben) következtében előálló tumor vagy leukémia; nincs küszöbdózis, de a hatás csak nagyobb dózisoknál okozott megfigyelhető kockázatnövekedést.

Sugárvédelmi ismeretek összefoglalása

Egyenértékdózis H [sievert;1 Sv=1 Gy biológiai hatása]
az ionizáló sugárzások sztochasztikus hatására vonatkozik

$$H = D \cdot w_R$$

w_R sugárzási tényező - a LET függvénye, csak emberi szövetekre érvényes; legutóbbi módosítás az ICRP 103 (2007) kiadvány szerint:

$w_{R,\alpha} = 20$

$w_{R,\gamma} = 1$

$w_{R,\beta} = 1$

$w_{R,n} = 2.5 \div 20$ a neutronenergia függvényében

Sugárvédelmi ismeretek összefoglalása

Effektív dózis E

$$E = (H_E =) \sum_T w_T \cdot H_T \qquad \sum_T w_T = 1$$

az egyes szöveteket ért egyenértékdózis súlyozott összege

Az ICRP 103 kiadvány szerint (2007)

Ivarszervek w_T=0,08 (*genetikus hatás az utódokon*)

szomatikus hatások

legérzékenyebbek w_T=0,12

tüdő, gyomor, belek, vörös csontvelő, emlő, „maradék” szövetek

érzékenyek w_T=0,04

máj, pajzsmirigy, hólyag, nyelőcső

kissé érzékenyek w_T=0,01

bőr, csontfelszín, nyálmirigyek, agy

Sugárvédelmi ismeretek összefoglalása

Lekötött dózis E_C

$$E_C = \int_0^{T_L} \dot{E} dt$$

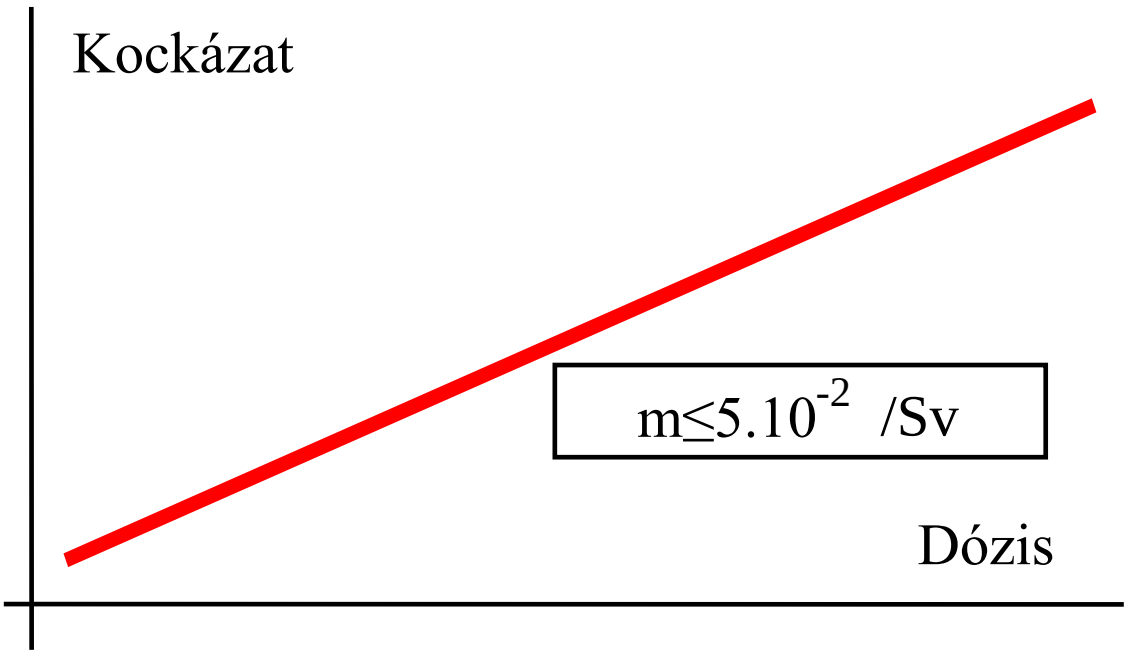
1 évnél hosszabb ideig az ember szervezetében maradó radioaktív anyag várható dózisa a várható további teljes élettartamra (gyermek: T_L=70 év, felnőtt: T_L=50 év)

Kollektív dózis C

ugyanabból az *s* forrásból származó, egyenként *i* tagú csoport tagjait ért dózisok összege [személy.Sv]

$$C = \sum_s E_i . i$$

Sugárvédelmi ismeretek összefoglalása



Lineáris, küszöb nélküli függvénykapcsolat az effektív dózis és a rák kockázata között. A természetest meghaladó többletdózis által okozott kockázat a szabályozás alapja.

Sugárvédelmi ismeretek összefoglalása

A sugárvédelem célja az ionizáló sugárzások káros hatásának kizárása (determinisztikus hatások), illetve minimalizálása (sztochasztikus hatások)

3 alapelv:

- Indokoltság
- Optimálás
- Korlátozás

2 további axióma:

* ha a kis dózisokat korlátozzuk, ezzel a nagy dózist kizárjuk
* a természetes dózis nem korlátozható

Külső sugárterhelés: kisméretű vagy kiterjedt forrásoktól

Belső sugárterhelés: belégzés, lenyelés, bőrre jutás stb. által inkorporált radioaktív anyagtól

Sugárvédelmi ismeretek összefoglalása

Dóziskorlátozás:

Dóziskorlát (DL) – immissziós (személyi) korlátok: effektív dózis

foglalkozási korlát: 20 mSv/év (5 év átlagaként)

lakossági korlát: 1 mSv/év

Dózismegszorítás (DC) - emissziós korlát (forrásorientált - fiktív személy effektív dózisa), szintén foglalkozási és lakossági;

Magyarországon:

kiemelt létesítmény: lakosságra 0,1 – 0,01 mSv/év,

egyéb létesítmény: 0,03 mSv/év

ΣDC nem értelmezhető

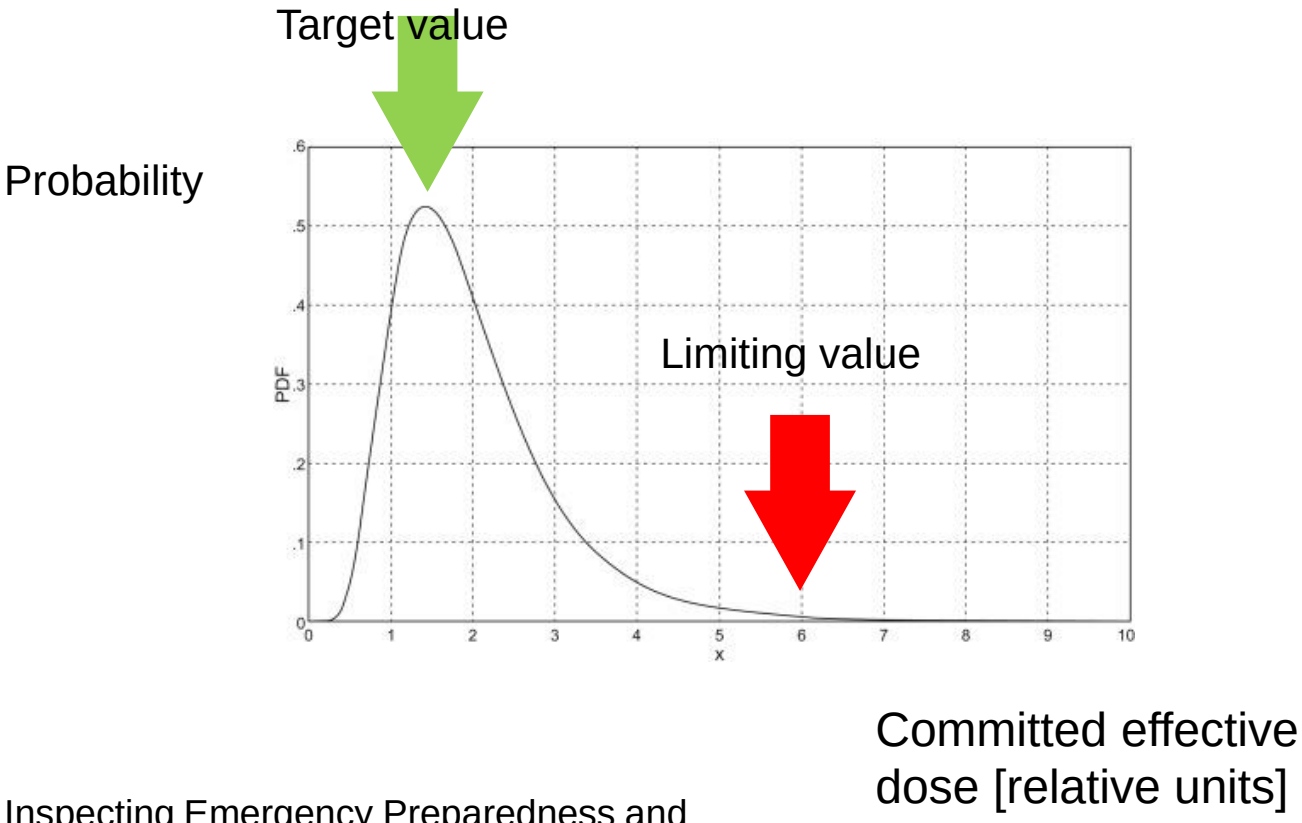
DC < DL

A radioaktív hulladék hatására milyen korlátozások vonatkoznak?

- működő hulladék-feldolgozó, le nem zárt lerakó: DC
- „felszabadított” hulladék, lezárt lerakó: „mentességi” (elhanyagolható) dózis = 10 μSv/év

Interpretation of dose limits

Legislative dose limits (DL) are not optimized „target" values! Excession of DL must be „highly unprobable" (<10^{-6}) if radiation protection ordinance is kept.



Radioaktív hulladékok

- Radioaktív hulladékok = hasznos (célszerű) emberi tevékenységhez köthető, további felhasználásra nem szánt, a környezetbe sugárveszélyeségük miatt ki nem bocsátható radioaktív anyagok, melyek olyan lerakóban helyezhetők el, ahol kijutásuk megakadályozására mérnöki intézkedéseket alkalmaznak.

A hulladékok elhelyezésének biztonsága

- Általános biztonsági célkitűzés, hogy a lakosság egyedei és csoportjai, valamint a környezet védett legyen az ionizáló sugárzás veszélyével szemben. Ezt a kezelő, tároló vagy lerakó létesítményben megvalósított hatékony biztonsági intézkedésekkel (pl. a hozzáférés megakadályozásával) és azok megfelelő színvonalú fenntartásával kell elérni.

(155/2014. sz. kormányrendelet a radioaktív hulladékokkal kapcsolatos biztonsági követelményekről; módosítás: 28/2018. sz. korm. r.)

A hulladékok elhelyezésének biztonsága

- Sugárvédelmi célkitűzés, hogy a létesítmény üzemeltetése során az üzemeltető személyzet és a lakosság sugárterhelése mindenkor az előírt határértékek alatti, az észszerűen elérhető legalacsonyabb szintű legyen. Ezt biztosítani kell a tervezési alaphoz tartozó üzemzavarok és - amilyen mértékben észszerűen lehetséges - a balesetek következtében fellépő sugárterhelések esetén is.

A hulladékok elhelyezésének biztonsága

- Műszaki biztonsági célkitűzés, hogy az üzemzavari események bekövetkezése nagy biztonsággal megelőzhető vagy megakadályozható legyen, a létesítmény tervezésénél figyelembe vett valamennyi feltételezett kezdeti esemény esetén a lehetséges következmények az elfogadható mértékeken belül legyenek, valamint a balesetek valószínűsége kellően kicsi legyen. („Safety culture”)

Radioaktív hulladékok definíciói, szabályozása

Hulladékok csoportosítása eredetük szerint

1) radioaktív anyagokkal végzett tevékenységek során keletkezett, helyben maradó anyagok: üzemi és leszerelési hulladék

szakaszosan végrehajtott, tervezett, engedélyezett eljárásokkal folyó kezelés

2) baleseti (szabályozatlan) kibocsátás, „történelmi” hulladék (legacy waste)

környezeti helyreállítás (remediation)

kezelés: eseti, szakaszos

A sugárzó anyagokkal dolgozó létesítmények folyamatos üzemi kibocsátása (légnemű, folyékony) csak a kibocsátási korlátnál kisebb mennyiség lehet, kezelés: nincs vagy folyamatos; ez nem tekinthető radioaktív hulladéknak.

Radioaktív anyagok kibocsátása a környezetbe üzemelő létesítményből

Kibocsátási határérték: a létesítmény lakossági dózismegszorításának (DC) megfelelő aktivitások [KH]

A KH-k alapvető sajátossága: nem a környezetben, hanem az emisszió engedélyezett helyén mérhető értékek!

Folyamatos kibocsátások határértékei

Kiindulás: a létesítményre megadott lakossági **<u>dózismegszorítás</u>**
Meghatározás terjedésszámítással a reprezentatív személyt érő dózisra

Kibocsátási határérték-kritérium: KbHK [-]

Kibocsátási határérték: KbH [Bq/év] izotóponként

$mf_{i,KRIT}$: mobilitási tényező [-] – az i-edik radioizotóp hígulása a kibocsátás helyétől a kritikus csoportig

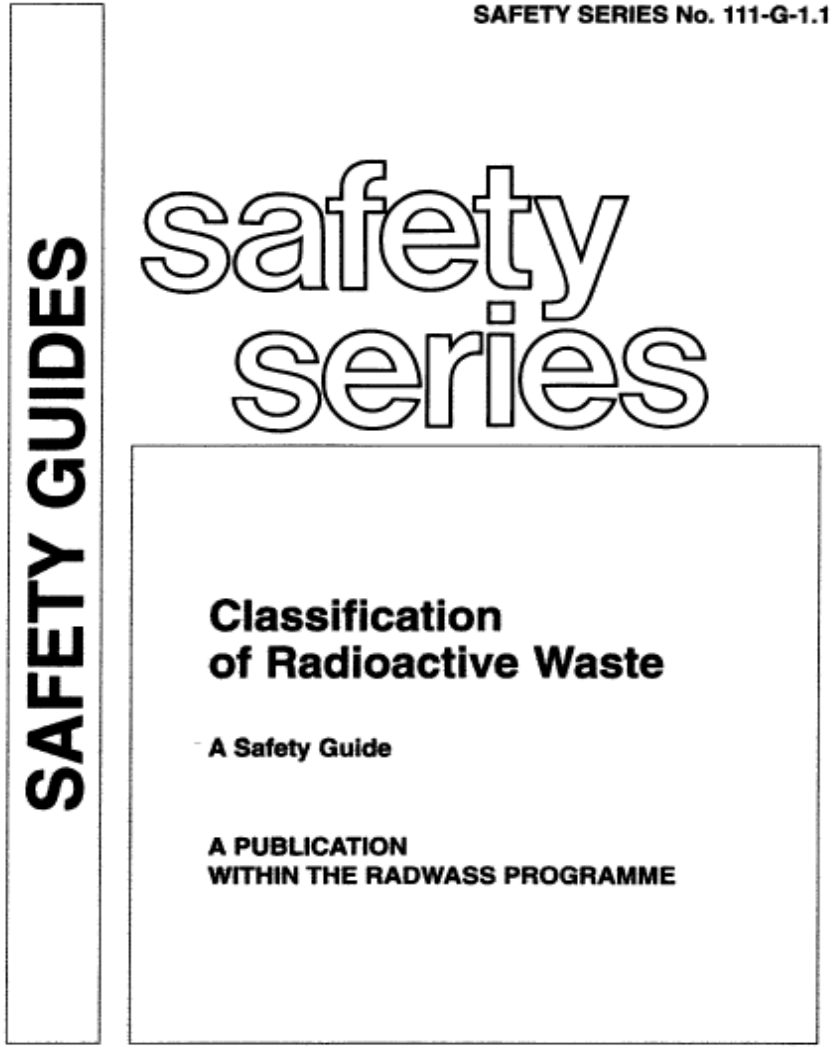
e(g): belső dózistényező (dóziskonverziós tényező, DCF [Sv/Bq])

$$KbHK = \sum_i \frac{A_{KI,i}}{KbH_i} \leq 1$$

$$KbH_i = \frac{DC}{e(g)_{i,KRIT}} \cdot \frac{1}{mf_{i,KRIT}}$$

Radioaktív hulladékok definíciói, nemzetközi ajánlások, hazai szabályozás

A „modern” szabályozás kezdete: IAEA = International Atomic Energy Agency (NAÜ) biztonsági útmutatója
Kiadás éve:1994.



Mentesség = EXEMPTION
Sugárvédelmi intézkedést nem igénylő anyagokra

Osztályozás alapja az aktivitás-koncentráció

Radioaktív hulladékok definíciói, ajánlások, szabályozás

3. PROPOSAL FOR A RADIOACTIVE WASTE CLASSIFICATION SYSTEM 8

Introduction 8
System overview 9
Waste classes 10
Exempt waste (EW) 12
Low and intermediate level waste (LILW) 13
(a) Short lived waste (LILW-SL) 15
(b) Long lived waste (LILW-LL) 15
High level waste (HLW) 16
Additional considerations 17
Waste containing long lived natural radionuclides 17
Heat generation 17
Liquid and gaseous waste 18

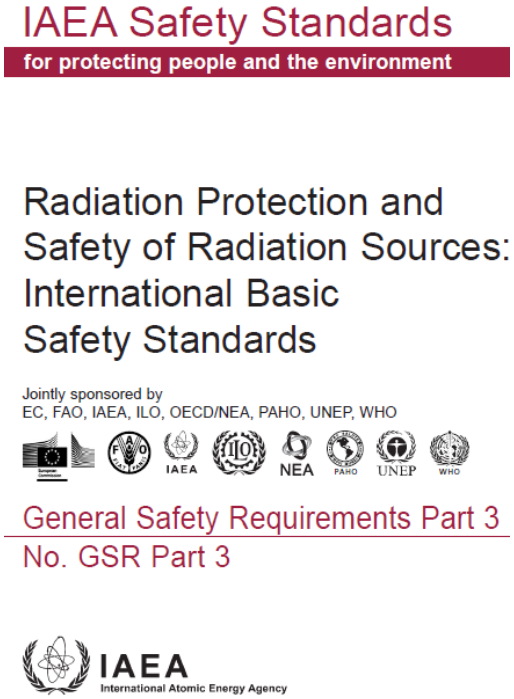
Radioaktív hulladékok típusai

Első szisztematikus felosztás (1994, IAEA):

- Aktivitás szerint: kis-, közepes- és nagyaktivitású hulladék, mentesített anyagok
- Felezési idő szerint: rövid és hosszú felezési idejű hulladék
- Halmazállapot szerint: gáznemű, folyékony, szilárd [, biológiai]

További, újabb IAEA ajánlások

- Safety Series #115 (1996) International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources (**IBSS**): Felszabadítási és mentességi szinteket közöl, ezek azonosak, de a két eljárás különböző.
- GSG-1 (2009) Classification of Radioactive Waste: Osztályozás alapja az okozható dózissal arányos mennyiség; a szinteket le kell vezetni az okozott dózisból.
- GSR Part 3 (2011 - 2014) „Új IBSS”: Eltérő mentességi és felszabadítási szintek, utóbbit általánosan, előbbit csak kis anyagmennyiségekre lehet alkalmazni – az osztályozás alapjai.



Radioaktív hulladékok definíciói, ajánlások, szabályozás

Elhanyagolható dózis: H_i ≈10 - 30 μSv/év

Mentességi szint: *(Exemption)* egy sugárforrás, illetve egy adott radioaktív koncentrációval jellemzett anyag mentes a sugárvédelmi szabályozás alól, ha a legkedvezőtlenebb *forgatókönyv* mellett sem okoz H_i-nél nagyobb dózist (*foglalkozási* vagy *lakossági* helyzetben). [Bq], [Bq/kg]= **MEA** vagy **MEAK**

Felszabadítási szint: *(Clearance)* egy korábban sugárvédelmi szabályozás alá tartozó anyag kivonható a szabályzás alól (*lakossági* helyzetben.) [Bq/kg], [Bq/m^2]

Hasonlóság: kapcsolat H_i-vel. *Eltérés*: **<u>forgatókönyv</u>**

Radioaktív hulladékok definíciói, szabályozás Magyarországon

Jelenlegi szabályozás:
1996. CXVI. tv. → 2011. LXXXVII. tv., és az ezekhez kapcsolódó kormány- és miniszteri rendeletek

Sugárvédelem, benne a radioaktív hulladékok meghatározása és osztályozása: 487/2015 – 491/2015 kormányrendeletek. 2022 tavaszán ezek egy részét „átmásolták” OAH (Országos Atomenergia Hivatal) rendeletté, miután az OAH minisztériumokkal egyenrangú besorolást kapott.
Szabványok: MSZ 14344/1,2, MSZ 62 sorozat

Radioaktív hulladékok biztonsága: 155/2014. és 28/2018. kormányrendeletek

Radioaktív hulladékok definíciói, szabályozás

IAEA General Safety Guide (GSG-1) – 2009 és General Safety Requirements Part 3 = GSR Part 3 – 2014 ajánlását követve = új magyar szabályozás (2015 – 2018):

„csekély” (= moderate) mennyiség: mentességi szintek [MEAK] → specifikus mentességi aktivitás-koncentráció [SMEAK]

„jelentős” (= bulk) mennyiség (>1 t): felszabadítási szintek [FEAK] → általános mentességi aktivitás-koncentráció [ÁMEAK]

Radioaktív hulladékok definíciói, szabályozás – az általános mentességi szintek levezetése

Practical use of the concepts of clearance and exemption
RADIATION PROTECTION RP#122 Part I.
EU Directorate General – Environment (2000) – továbbiak: RP#113, RP#114

Table 3–1: Results of dose calculations for all nuclides (in [(µSv/a)/(Bq/g)])

		External Irradiation			Inhalation		Ingestion		Skin	Max.	limiting
Nuclide	$T_{1/2}$ [a]	EXT-A	EXT-B	EXT-C	INH-A	INH-B	ING-A	ING-B	SKIN		scenario
H-3	1.2E+01	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	8.9E-05	7.1E-06	8.4E-04	1.2E-02	0.0E+00	1.2E-02	ING-B
Be-7	1.5E-01	1.4E+00	3.8E-01	1.3E-01	9.3E-05	5.3E-06	5.6E-04	2.8E-03	7.4E-05	1.4E+00	EXT-A
C-14	5.7E+03	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	1.3E-03	1.7E-04	1.2E-02	1.6E-01	2.4E-02	1.6E-01	ING-B
F-18	2.1E-04	3.5E-03	7.6E+00	0.0E+00	1.9E-04	8.6E-06	9.8E-04	1.1E-09	7.2E-02	7.6E+00	EXT-B
Na-22	2.6E+00	7.0E+01	1.9E+01	7.9E+01	4.3E-03	2.0E-04	6.4E-02	1.3E+00	6.8E-02	7.9E+01	EXT-C
Na-24	1.7E-03	4.7E+01	3.7E+01	0.0E+00	1.1E-03	4.8E-05	8.6E-03	1.8E-04	7.9E-02	4.7E+01	EXT-A
Si-31	3.0E-04	5.3E-05	8.0E-03	0.0E+00	2.4E-04	1.5E-05	3.2E-03	7.7E-08	8.0E-02	8.0E-02	SKIN
P-32	3.9E-02	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	6.3E-03	4.6E-04	4.8E-02	1.0E-01	7.4E-02	1.0E-01	ING-B

Fejlécben: expozíciós forgatókönyvek (külső terhelés, belégzés, lenyelés, bőrdózis)
Táblázatban: egységnyi koncentrációra jutó éves dózis az adott forgatókönyv esetén

Radioaktív hulladékok definíciói, szabályozás

Table 3–2: Calculation results for general clearance levels and rounded general clearance levels[6]

Nuclide	Calculation results for clearance levels (CL) [Bq/g]	Clearance levels rounded [Bq/g]	Exemption values (EV) [CEU 96] [Bq/g]	Comparison of exemption values and rounded clearance levels EV/CL
H-3*	8.6E+02	(1000)	1.0E+6	1000
Be-7	6.9E+00	10	1.0E+3	100
C-14*	6.3E+01	(100)	1.0E+4	100
F-18	1.3E+00	1	1.0E+1	10
Na-22	1.3E-01	0.1	1.0E+1	100
Na-24	2.1E-01	0.1	1.0E+1	100
Si-31	1.2E+02	100	1.0E+3	10
P-32	9.8E+01	100	1.0E+3	10
P-33	2.3E+02	100	1.0E+5	1000
S-35	5.7E+01	100	1.0E+5	1000
Cl-36*	1.6E+01	(10)	1.0E+4	1000
Cl-38	7.3E-01	1	1.0E+1	10
K-40	1.5E+00	1	1.0E+2	100
K-42	4.0E+00	10	1.0E+2	10
K-43	7.3E-01	1	1.0E+1	10
Ca-45	4.0E+01	100	1.0E+4	100
Ca-47	3.2E-01	1	1.0E+1	10
Sc-46	1.5E-01	0.1	1.0E+1	100

Hiányzott:
^{41}Ca, ^{133}Ba …

A kerekítés csak a számítások végeredményében (waste index, lásd tovább) lehetne indokolt!

Tehát a felszabadítási szintek nagyságrendekkel kisebbek, mint a „specifikus mentességi” szintek !!! (GSR3 „bulk” szintjei = RP#122 értékei kerekítve)

Radioaktív hulladékok definíciói, szabályozás Magyarországon

A „mentesség” és a „felszabadítás” fogalmai először szétváltak, majd újból egyesültek a szabályozásban. Ha a hulladék <1 t, a specifikus mentességi szinteket, ha több, a felszabadítási (általános mentességi) szinteket kell használni. A felszabadításhoz rendelt effektív dózis 30 μSv/év.

$$S = \sum_i \frac{AK_i}{VAK_i}$$

S (HI „hazard index”, WI „waste index) = veszélyességi mutató
VAK: Vonatkoztatási (általános vagy specifikus mentességi) aktivitás-koncentráció [Bq/kg])
AK: aktivitás-koncentráció [Bq/kg]
i: a hulladékcsomag radioizotópjai

Nagyon kis aktivitású hulladék (VLLW) 1 < S < 50, ha $T_{1/2}$ ≤ 30 év, a többi komponensre S < 1, lásd a továbbiakban is
Kis aktivitású hulladék (LLW) 1 < S < 1000
Közepes akt. h. (ILW) 10^3 < S <10^6
Nagy akt. h. (HLW) S > 10^6, hőfejlődés > 2 kW/m^3

A VLLW magyarországi bevezetése

155/2014. kormányrendelet a radioaktív hulladékok átmeneti tárolását vagy végleges elhelyezését [jelentő] létesítmények biztonsági követelményeiről

Biztonsági szabályzatok – nem definiálják újra a hulladék-kategóriákat, ugyanakkor előírják a kategóriák megállapítására szolgáló mérések elvégzésére való alkalmasságot.

Definíciók a VLLW magyarországi bevezetése után

A 487/2015. kormányrendelet módosítása: 28/2018. kormányrendelet

1. Nagy aktivitású az a radioaktív hulladék, amelynek hőtermelését a tárolás és elhelyezés tervezése és üzemeltetése során figyelembe kell venni. Mindenképpen ide sorolandó az a radioaktív hulladék, amelynek hőtermelése nagyobb, mint 2 kW/m^3, vagy a radioaktívhulladék-csomag összes aktivitása szerint az atomenergiát alkalmazó létesítmények fizikai védelméről szóló 190/2011. kormányrendelet szerinti radioaktív hulladékok 1. kategóriájába sorolandó.
2. Nagyon kis aktivitású az a radioaktív hulladék, amelynél igaz, hogy 30 évnél nem hosszabb felezési idejű izotópra a benne lévő aktivitás-koncentráció nem lehet a specifikus mentességi aktivitás-koncentráció (SMEAK) ötvenszeresénél nagyobb, valamint 30 évnél hosszabb felezési idejű (egész évre kerekítve) izotópra nem lehet nagyobb az általános mentességi aktivitás-koncentráció (ÁMEAK) értékénél.

Definíciók a VLLW magyarországi bevezetése után

28/2018. kormányrendelet

$$\sum_i \left(\frac{AK_i}{SMEAK_i} \right) \leq 50$$

$$\sum_i \left(\frac{AK_i}{ÁMEAK_i} \right) \leq 1$$

Nagyon kis aktivitású hulladék besorolási feltételei, ha a hulladék több összetevőt is tartalmaz.

1. feltétel: ≤ 30 év felezési idejű radionuklidokra

2. feltétel: hosszabb felezési idejű radionuklidokra

Definíciók a VLLW magyarországi bevezetése után

28/2018. kormányrendelet

3. Kis vagy közepes aktivitású radioaktív hulladéknak minősül az a radioaktív hulladék, amely nem tekinthető nagy aktivitású, vagy nagyon kis aktivitású radioaktív hulladéknak.

A kis és közepes aktivitású radioaktív hulladékok osztályozásának szempontjai:

A hulladékban lévő radionuklidok aktivitás-koncentrációja (AK) szerinti osztályozás:

Kis aktivitású: AK $\leq 10^3$ SMEAK

Közepes aktivitású: AK $> 10^3$ SMEAK

Több komponensnél a korábban már közölt összegzés eredményére kell alkalmazni a fenti egyenlőtlenséget.

Radioaktív hulladékok definíciói, szabályozás

- Halmazállapot szerint: gáznemű, folyékony, szilárd, biológiai hulladék
- Felezési idő szerint: rövid, hosszú (határ: ^{137}Cs T=30 év)
- Sugárzásfajta szerint: α-sugárzók külön kezelendők
- Felületi γ-dózisteljesítmény szerint az üzemben tárolt hulladékokra
- „Hulladék-átvételi követelmények” (minden lerakó számára külön határozza meg az illetékes hatóság [Bq/év] az egyes radionuklidokra)
- Speciális kategóriák: MW-Mixed Waste - USA; VLLW-very low level waste – Franciaország, Magyarország...

Radioaktív hulladékok definíciói, szabályozás

Gyakorlati kategóriák: Az üzemi területen tárolt hulladékcsomagok gyors minősítésére

A zárt hulladékcsomag felületén mérhető γ-dózisteljesítmény szerint:

-Kis akt.: $1 \leq dD/dt \leq 300$ μSv/h

-Közepes akt.: $0,3 \leq dD/dt \leq 10$ mSv/h

-Nagy akt.: $dD/dt > 10$ mSv/h

Radioaktív hulladékok definíciói, szabályozás

Hulladék (tároló) veszélyessége „végső” formájában: radiotoxicitás - index

$$RTOX = \sum_i A_i(t) \cdot \left(\sum_j tf_{i,j} \cdot Q_j \right) \cdot e(g)_i$$

RTOX : radiotoxicitás-index [Sv/év]
A : aktivitás [Bq]; *i* : radioizotóp minősége (teljes radionuklid leltár)
tf : „átviteli tényező” adott táplálékra [(Bq/kg)/Bq], modellszámításból
Q_j : táplálékfogyasztás a j-edik anyagból [kg/év]
e(g) : belső dózistényező [Sv/Bq], általában lenyelésre, az átviteli forgatókönyvtől függően

Radioaktív hulladékok szabályozása

A 2011. évi LXXXVII tv. (Új „atomtörvény”) szerint a hulladékkezelés az RHK kft. feladata (http://www.rhk.hu/)

Hatósági feladatok a radioaktív anyagokkal kapcsolatos ügyekben:

- OAH – személyi sugárvédelem, dózismegszorítás engedélyezése, sugárforrások nyilvántartása
- Környezetvédelmi felügyelőségek - kibocsátási korlátok megállapítása az OAH-val közösen

A hatósági nyilvántartásban (RADIUM program) szerepelnek:

- Minőség
- Mennyiség(aktivitás, aktivitás-koncentráció)
- Halmazállapot
- Besorolás: nyitott vagy zárt forrás, hulladék

Radioaktív hulladékok eredete

* Nukleáris energiatermelés hulladékai: bányászat, ércfeldolgozás, urándúsítás, reaktorok működése, üzemi és leszerelési hulladékok
* Kutatóreaktorok, gyorsítók, spallációs rendszerek: más anyagból készült szerelvények, más technológia = más radioizotópok
* Nukleáris robbantások, fegyverkísérletek hulladékai
* Ipari (gazdasági) sugárforrások: szerkezetvizsgálat, szintjelzés, besugárzó állomások
* Orvosi sugárforrások: diagnosztika (in vivo, in vitro), terápia
* TENORM: természetes radioaktivitás dúsulása nem nukleáris/sugaras tevékenységek következtében (Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material – újabban csak NORM-ként említik)

Radioaktív hulladékok eredete

1. Nukleáris energiatermelés hulladékai:

<u>Uránbányászat</u>

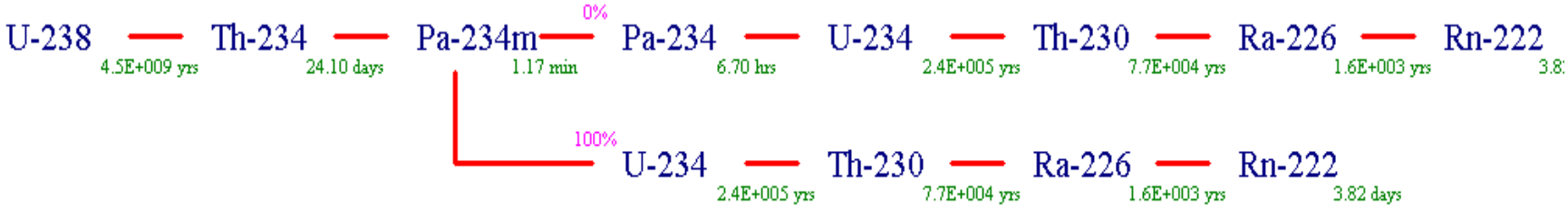
^{238}U T=4,5.10^{9} év, ^{235}U T=0,7.10^{9} év, ^{232}Th T=10,4.10^{9} év és a bomlási soraikba tartozó radionuklidok

Módszerek: külszíni fejtés, mélységi = aknás fejtés, ISR: helyszíni kinyerés „in situ recovery” (ennek leggyakoribb megoldása ISL: helyszíni kioldás „in situ leaching”)

Bányászat hulladéka:

Meddő, darabolt kőhulladék → nagy felület: ^{222}Rn kibocsátása, leányelemek belélegzése lakossági többletdózist okozhat; a visszamaradó urán, tórium és leányelemeik a *<u>felszabadítási szint</u>* (^{238}U: 1 Bq/g) alatt normális hulladékként kezelhetőek. (IAEA GSR-3 szerinti ”bulk” = nagy tömegű anyag kategória)

Urán és tórium bomlási sora a radon izotópokig



Radon - ^{222}Rn leányelemei

Rn-222 - α (5,5 MeV) **T=3,8 nap**

Po-218 - α (6,00 MeV) **T=3,1 perc**

Pb-214 - β (185keV – 1,02MeV) **T=26,8 perc**
γ (295, 352 keV)

Bi-214 - β (526keV – 1,26MeV) **T=19,9 perc**
γ (76keV….2,45MeV 14 nagyobb csúcs)

Po-214 - α (7,69 MeV) **T=164 μs**

Pb-210 - β, γ (47 keV) **T=22 év**

Bi-210 - β (300 keV – 1,16 MeV) **T=5,01 nap**

Po-210 - α(4,5 és 5,3 MeV) **T=138 nap**

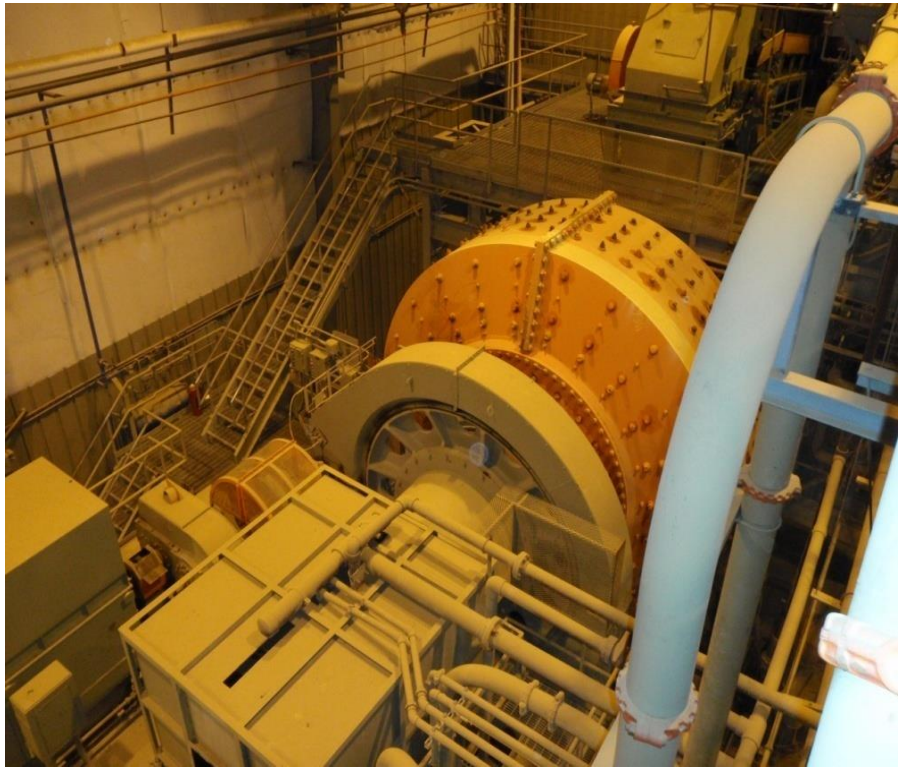
Analízis: radongáz elemzése saját vagy leányelemei alfasugárzásának mérésével
- szcintillációs kamra
- átáramlásos számláló
- nyomdetektor

Leányelemek elemzése:
- összes alfa mérése
- alfa-spektrometria
- gamma-spektrometria

Radon - ^{220}Rn (Thoron) leányelemei

Rn-220	α (6,3 MeV)	**T= 54 s**
Po-216	α (6,77 MeV)	**T = 0,15 s**
Pb-212	β (100 keV) γ (87keV … 300KeV)	**T = 10,6 óra**
Bi-212	α (6,3 MeV) – 36% β (2,25 MeV) – 64% γ (70keV … 1,8MeV)	**T = 60,6 perc**
Tl-208	β (200….700keV) γ (84keV…2,6MeV)	**T = 3,05 perc**
Po-212	α (8,78 MeV)	**T = 0,3 μs**

Uránérc feldolgozás - reaktor üzemanyag előállítása



Ércőrlő és szitáló berendezés az 1957 – 1997 között működő Pécs melletti uránbánya üzemében

Urán bányászata – kioldás és feltárás

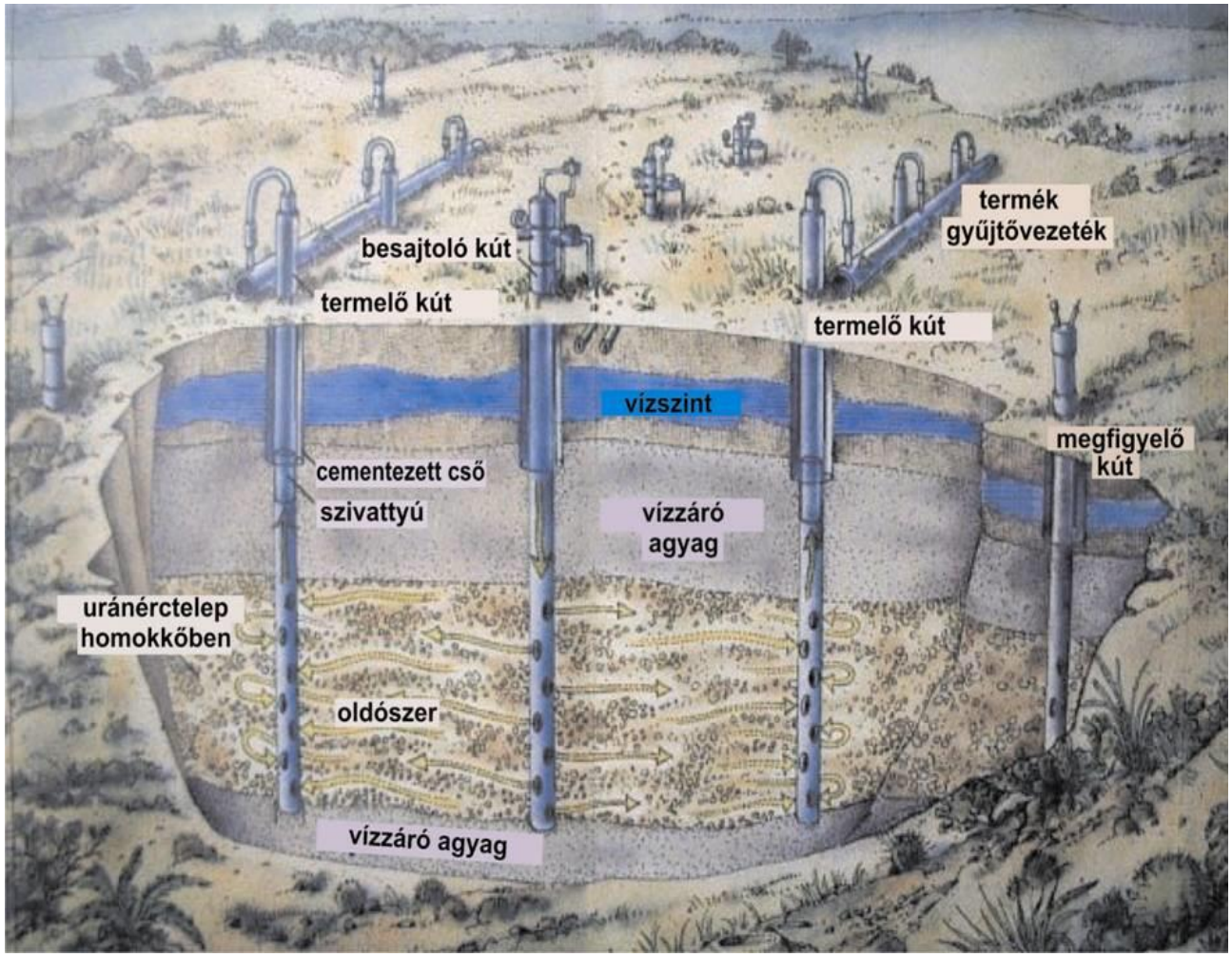
– savas kioldás: kénsavval (in situ is lehetséges). A kibányászott, darabolt, sűrűség szerint szétválogatott ércet *feltárják*.

– oxidatív kioldás $CO_2 + O_2 + H_2O$ –val; ISL kivitelben ez a legkíméletesebb a környezet számára, igen kevés hulladék marad a felszínen.

Radioaktív hulladékok eredete – ISL/ISR uránbányászati technológia

Gáz halmazállapotú oxigént és CO2-t adagolnak a besajtolt vízhez - az eljárás ugyanazon az elven működik, mint az urán természetes oldódása.

Mivel az oxigénes víz az uránon (UO_2^{2+} formában) kívül más elemeket alig vagy egyáltalán nem képes oldani, ezért a képződő hulladék mennyisége igen csekély és nem radioaktív.



Urándúsítás (^{235}U)

Incident update at Gronau uranium enrichment facility

27 January 2010

As reported, there was an incident on Thursday 21.01.2010 at the URENCO uranium enrichment facility in Gronau, Germany, during which there was a minor release of uranium hexafluoride that was contained within the container preparation area.

Since the air in the container preparation room is filtered, there was no release to the environment or to the local population. URENCO constantly monitors the radioactivity within the building and on site. In addition, control measurements were taken immediately after the accident.

The URENCO employee involved was transferred to the nuclear medical department of Dusseldorf University Clinic in Jülich on Monday, after having received first aid in Münster. According to the doctors treating him, his general condition is very good.

Urán(^{235}U)-tartalmú reaktorfűtőelem előállítása

Feltárt kőzetből kapott oldat feldolgozása:

Lecsapás → UO_2 és UO_3 keveréke = U_3O_8 uránoxid „yellow cake” (sárga por), a dúsítóba szállítják, ahol gáznemű UF_6-tá alakítják.

^{235}U + ^{238}U (dúsított): ^{238}U(szegényített): fegyvergyártás

főként UO_2-ként kerül

a fűtőelemekbe

Nehézvizes (D_2O-val moderált) reaktor (HWR): természetes urán elegendő a fűtőelemekben, nem kell dúsítás az önfentartó láncreakcióhoz

Urán: toxikus nehézfém, sejtméreg → vesepusztító

Határérték vízben: 10 µg/l (ennek aktivitása csak 0,13 Bq, a mentességi szint 7700-ad része)

Nukleáris energiatermelés - fűtőelemek

- Kémiai állapot: rendszerint uránoxid (UO_2) – kerámiaszerű anyag
- Előállítás: dúsítás gázfázisú UF_6 diffúziójával, utána reduktív elbontás
- Dúsítás: 0,7%-ról 3 – 4% ^{235}U-tartalomra
- Természetes urán: nehézvizes (CANDU) reaktorokhoz
- Dúsítás hulladéka: szegényített urán (árnyékolás, lövedékek)

Nukleáris energiatermelés - reaktorok

- Urán és transzurán aktivációs/spallációs termékek
- Hasadási termékek
- Szerkezeti anyagok aktivációs termékei („Korróziós” termékek)
- Vízkémiai és egyéb aktivációs termékek

Reaktorok – transzurán aktivációs termékek

Urán és transzurán aktivációs/spallációs termékek

Termikus neutronok: aktivációs modell „átmeneti mag”-on keresztül (tömegszám-növekedés)

Gyors neutronok: szórás, spalláció (tömegszám-csökkenés)

Ha a kiindulási hasadóanyag (legtöbbször ^{235}U) mennyisége a gazdaságos üzemelés szintje alá csökken, a fűtőelemeket cserélik – a kiégett fűtőelem csak akkor válik ezáltal hulladékká, ha az adott ország törvényei csak a „nyílt üzemanyagciklus” (lásd később) alkalmazását engedik.

Reaktorok – transzurán aktivációs termékek

Aktiválás termikus neutronokkal

^{238}U (n,γ) ^{239}U (T=23 perc) $\beta^- \rightarrow$ ^{239}Np (T=2,4 nap) $\beta^- \rightarrow$ **^{239}Pu** (T=24110 év) α

^{239}Pu (n,γ) ^{240}Pu (T=6563 év) α

^{240}Pu (n,γ) ^{241}Pu (T=14,4 év) $\beta^- \rightarrow$ **^{241}Am** (T=432 év) α,γ *kulcsnuklid* a nehezen mérhető (DTM) nuklidokhoz

^{239}Pu, ^{241}Pu indukált hasadásra képesek

α-sugárzó Pu, Am, Np nuklidok:

e(g) (belégzés) ~10^{-5} Sv/Bq

e(g) (lenyelés) ~ 10^{-7} Sv/Bq

Reaktorok – transzurán aktivációs termékek

<u>Aktiválás gyors neutronokkal (spalláció)</u>

^{238}U (n,2n) ^{237}U (T=6,8 nap) $\beta^- \rightarrow$ **^{237}Np** (T=2,14×10^6 év) α

^{237}Np (n,γ) ^{238}Np (T=2,1 nap) $\beta^- \rightarrow$ **^{238}Pu** (T=87,7 év) α

$^{238}Pu/^{239}Pu$ arány: „reaktor-ujjlenyomat”

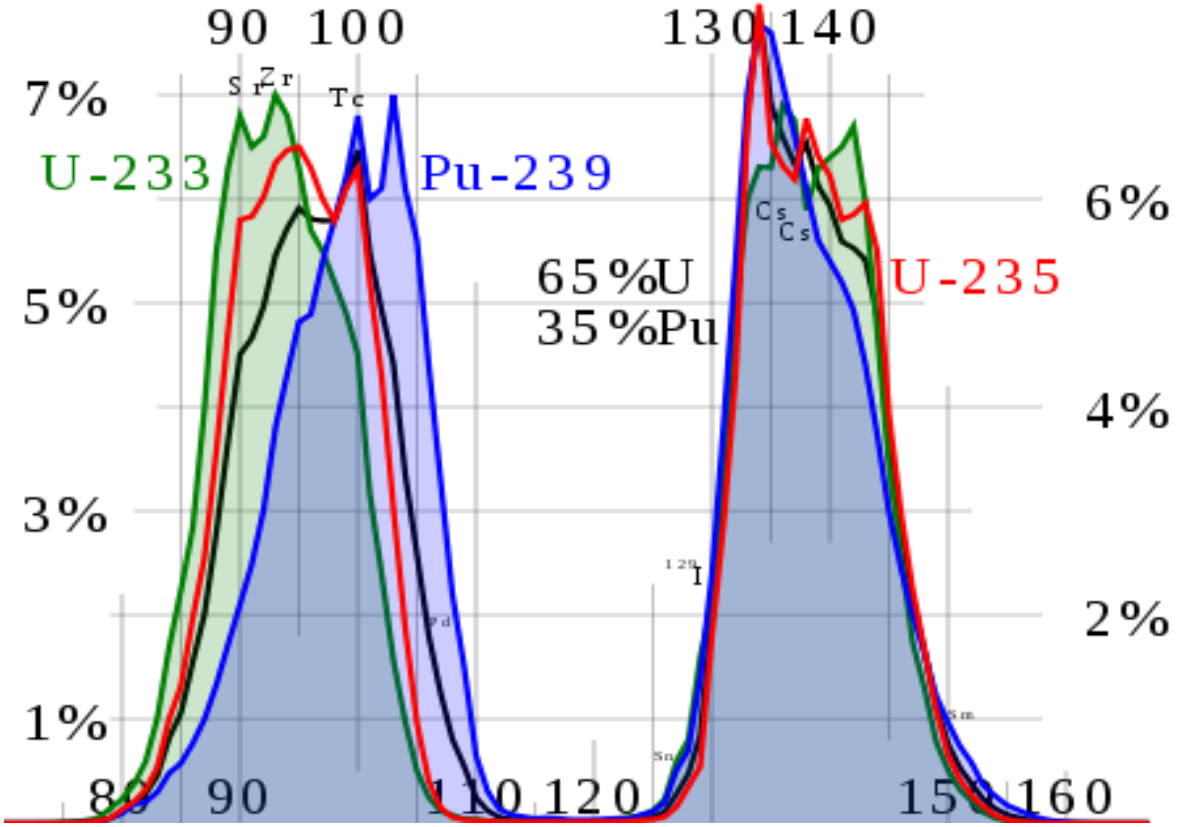
e(g): kb. mint ^{239}Pu

Reaktorok – transzurán aktivációs termékek (PWR V-213 reaktortípus)

		kg/(GW.év)	$T_{1/2}$ (év)	
Transzurán	^{237}Np	15,6	2,2e6	α
	^{238}Pu	7,5	87,7	α
	^{239}Pu	125	24 300	α
	^{240}Pu	60,8	6 560	α
	^{242}Pu	17,6	3,7e5	α
	^{241}Am	9,3	433	α
	^{243}Am	3,5	7 360	α
	^{243}Cm	0,012	30	α
	^{245}Cm	0,075	8 500	α
	^{246}Cm	0,1	4 730	α

Reaktorok – hasadási termékek

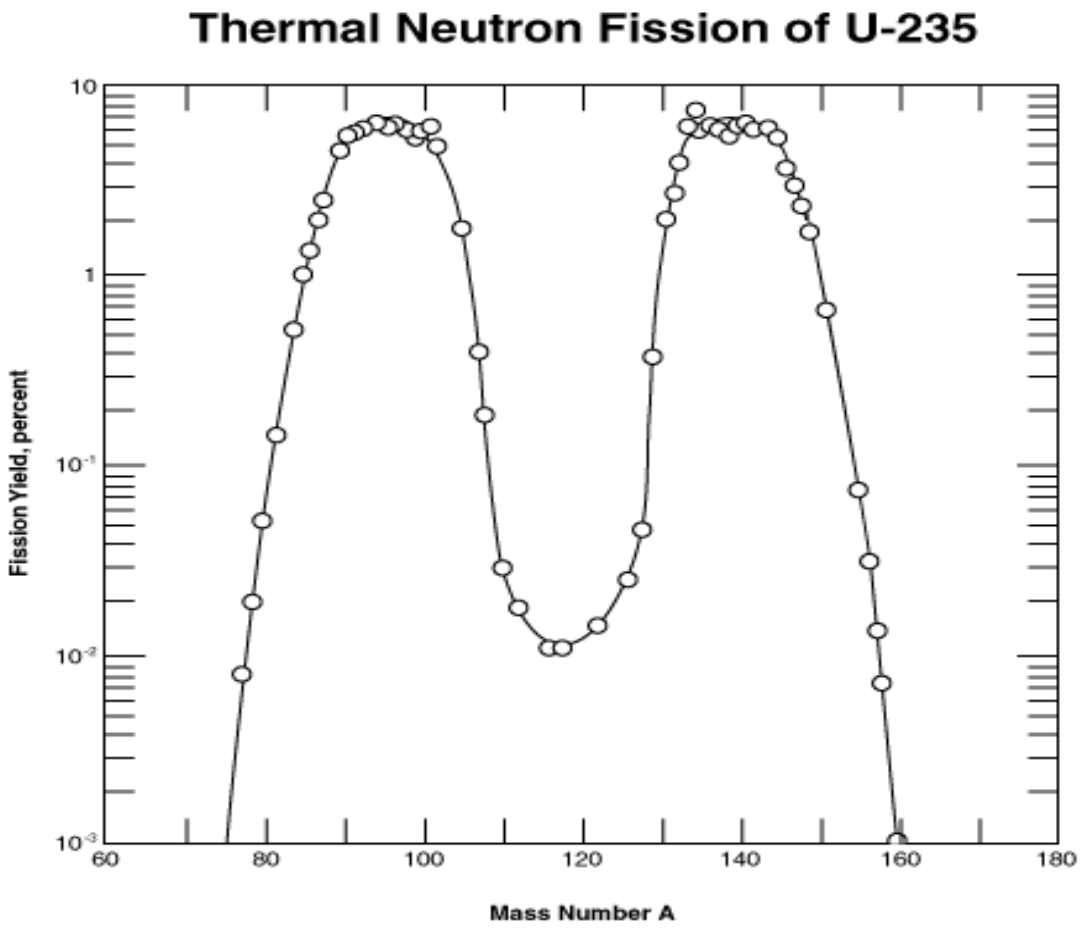
Hasadási hozamok különböző hasadó-anyagoknál



Reaktorok – hasadási termékek

^{235}U : Hozamtört – rendszám összefüggés

Az izobár sorozatok tagjai β^--bomlások révén keletkeznek egymásból

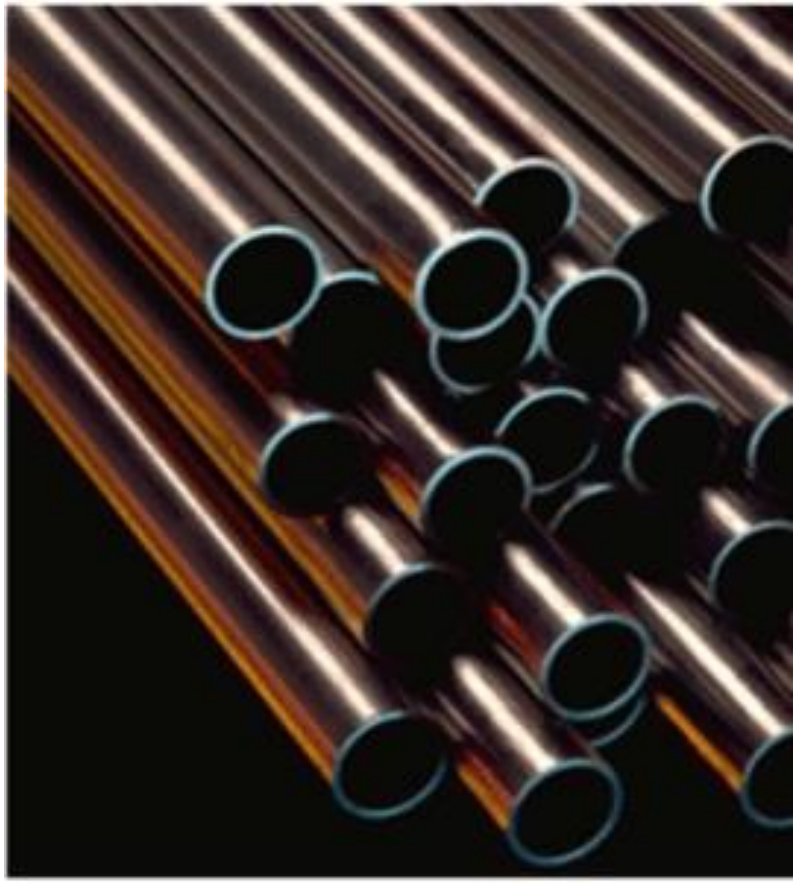


Reaktorok – hasadási termékek

Felosztás az illékonyság alapján, csökkenő sorrendben

- Nemesgázok (Xe, Kr)
- Radiojódok
- Egyéb illékony elemek (Cs, Sr)
- Egyéb hasadási termékek

Indukált hasadásból származó radioaktív hulladékok



Az aktivációs és hasadási termékek kis mennyisége mérhető a primer hűtőkörben (ez II. és III. generációs reaktorok esetében víz). Ennek oka lehet az egyes fűtőelemeke mikrorepedésein át történő szivárgás, de teljesen ép fűtőelemborítás esetén is előfordul, mert a rideg, porlódó urándioxid anyag egy kicsi része ($\leq 10^{-8}$) a betöltésnél rátapad a borításra, és biztonságos eszközökkel nem is távolítható el onnan.

Kép forrása: https://www.researchgate.net/profile/Slavica-Grdanovska/publication/309355490/figure/fig2/AS:669075894198279@1536531532580/2-Zircaloy-cladding-tubes.png

Hasadási termékek - nemesgázok

Nem köthetők meg – a gáztalanítóból a környezetbe kerülnek (retenció aktív szénen lehetséges – atomméret-függő)

^{133}Xe, ^{135}Xe, ^{88}Kr: rövid felezési idejűek

^{85}Kr T=10,76 év – csak 0,22 % hozam

Paksi Atomerőmű kibocsátási korlátja: Kr 46000, Xe 29000 TBq/év (kibocsátva: <10 TBq/év)

A fűtőelemek inhermetikusságának indikátorai

Csernobili kibocsátási forrástag: leltár ~100 %-a

Hasadási termékek - radiojódok

Illékonyak (a működő **reaktor** hőmérsékletén gázneműek, de vízben jól oldódnak)

Rövid felezési idejűek: ^{131}I, ^{132}I, ^{133}I, ^{134}I, ^{135}I

^{131}I T= 8,04 nap, *e(g)* (lenyelés) 2.10^{-8} Sv/Bq

β^- és γ-sugárzók – hozamuk 3 – 7 % - inhermetikusság indikátorai, arányuk kor- és sebességfüggő (elválasztással mérhetők „by-pass" primervíz mintákból)

^{129}I T=$15,7.10^6$ év – hozam <1%, lágy β- és γ-sugárzó – *e(g)* 1.10^{-7} Sv/Bq

Transzmutációs kísérletek célpontja – neutronaktiválás → ^{130}I T=12,4 óra – lebomlik inaktív xenonná

Hasadási termékek - radiojódok

Paksi AE kibocsátási korlát (^{131}I) három kémiai formára eltérő

Csernobili kibocsátási forrástag: leltár ~ 30-40 %-a

Normális üzemi kibocsátás:

Elemi (molekuláris) jód (impregnált aktív szén szűrőn marad)

– korlát 1 TBq/év, ki: 2 MBq/év;

Anionos forma: nagyrészt jodid (aeroszolhoz kötött – aeroszolszűrőn marad)

– korlát 4 TBq/év, ki: 2 MBq/év,

CH_3I (nagy térfogatú aktív szén vagy szilikagél szűrőn marad)

– korlát 95 TBq/év, ki: 32 MBq/év

Analízis: egyidejű mintavétel és mérés.

Levegőből: aeroszol, elemi jód és szerves jód gyűjtése szűrőkön; szekvencia: aeroszolszűrő, elemi jód szűrő, szerves jód szűrő

Hasadási termékek a radioaktív hulladékokban – egyéb illékony nuklidok

Cézium- és stroncium-izotópok

^{137}Cs T=30 év, hozam ~6 %, β- és γ-sugárzó – *kulcsnuklid* e(g) (lenyelés) ~10^{-8} Sv/Bq

^{135}Cs T=2,3.10^{6} év tiszta β-sugárzó hozam ~7 %

^{134}Cs T= 2,06 év – nem közvetlen hasadási termék! A 134-es sorozat *lezáró nuklidja* a ^{134}Xe**.** A 133-as sorozat *lezáró nuklidja* a ^{133}Cs – ez a több évig használatban lévő fűtőelemekben felhalmozódik és felaktiválódik. A ^{134}Cs/^{137}Cs arány „reaktor-ujjlenyomat” – Paksi vízkibocsátásban átlagosan 31:100

Csernobili kibocsátási forrástag: leltár ~ 5 %-a

Paksi AE légnemű (aeroszol) korlát: 1 TBq/év ki: 8 MBq/év

Hasadási termékek a radioaktív hulladékokban – egyéb illékony nuklidok

- ^{90}Sr – T=28,9 év, tiszta β^--sugárzó, hozam: 4,5 %
  e(g) (belégzés, lenyelés)~3.10^{-8} Sv/Bq
  „csontkereső”

Paksi AE korlát: levegő: 0,4 TBq/év ki: 0,2 MBq/év
víz: 2 TBq/év ki: 1 MBq/év

Csernobili kibocsátási forrástag: leltár ~4%-a

$^{90}Sr/^{137}Cs$ arány a paksi vízkibocsátásban: 4:100

- ^{89}Sr, ^{91}Sr, ^{92}Sr – rövid felezési idejűek

Hasadási termékek – egyéb nuklidok

A leghosszabb felezési idejűek:

^{99}Tc – T=2,11×10^5 év, tiszta β^--sugárzó, hozam: 6 % - anionként (TcO_4^-) oldódik; *e(g)* (belégzés, lenyelés) ~10^{-9} Sv/Bq

Transzmutációs célpont: neutronaktiválás→^{100}Tc

^{93}Zr – T=1,53×10^6 év, tiszta β^--sugárzó hozam: 6 %

^{107}Pd – T=6,5×10^6 év, tiszta β^--sugárzó hozam: 1 %

„Korróziós termékek” reaktorokban

A reaktorzónában a neutronok által elérhető szerkezeti anyagok = vas (acél) és cirkónium aktivációs termékei – előbbi „revés” szerkezetű oxidokat képez – tranziens szakaszokban leválik, szétterjed a primervízzel és zónatisztítás során a levegőbe is jut.

Aktivációs termékek termikus neutronokkal:

^{55}Fe T=2,73 év EC - e(g) ~10^{-10} Sv/Bq

^{60}Co T=5,27 év β^- és γ-sugárzó - *kulcsnuklid*

^{59}Ni T=76000 év tiszta β^--sugárzó

^{63}Ni T=100 év tiszta β^--sugárzó

„Korróziós termékek” reaktorokban

Aktivációs termékek gyors neutronokkal

^{54}Mn (^{54}Fe-ből) – EC + γ-sugárzó T=312 nap

^{58}Co (^{59}Co-ból) - EC + γ-sugárzó T=71 nap

^{58}Co/^{60}Co-arány: reaktor-ujjlenyomat

Két különleges termék: ^{110m}Ag T=252 nap

β- és γ-sugárzó – hegesztési varratokból keletkeztek, főként az I. blokkban

^{108m}Ag – EC + γ-sugárzó T= 418 év

Építési anyagok aktivációs termékei reaktorokban

Beton = cement + kavics + víz + adalékok

Portlandcement = 75-80% mészkő és 20-25% agyag zsugorodásig történt égetésével (kalcinálás, >1400 ^{o}C) előállított *klinker* + kötéslassító (néhány százalék) *gipszkő*. További adalékok: lösz, pernye, kohósalak, homok, trasz = őrölt vulkáni tufa, szerpentin = hidratált magnézium-szilikát (Pakson is alkalmazták a biológiai védelem anyagában)

Kémiai alkotórészek: SiO_2, Al_2O_3, CaO, FeO stb.

Szilárdulás = Hidratáció (kristályosodás víz felvételével)

Klinker + Víz = Hidrátok + Mész

(Kalcium-szilikátok) → (Kalcium-szilikát-hidrátok és kalcium-hidroxid)

A szilárdulás során 15-20% mész keletkezik. A beton felületén a mész kalcium-karbonáttá alakul a levegőből felvett széndioxiddal.

Építőanyagok aktivációs termékei reaktorokban

„Biológiai védelem” – többféle készítésű beton (normál- és nehézbeton) anyagának felaktiválódása

^{41}Ca T=103000 év EC, e(g) ~10^{-10} Sv/Bq

„Ujjlenyomat” : ritka földfémek

^{152}Eu, ^{154}Eu, ^{155}Eu - β^-- és γ-sugárzók, több éves felezési idejűek – hasadási termékek is lehetnek!

A reaktortartály és a védelem közötti „résben” lévő (és a hűtőközegben oldott) levegőből: $^{40}Ar(n,\gamma)^{41}Ar$ T=1,8 óra – a tervezett légnemű kibocsátás legjelentősebb összetevője

Primervíz és adalékanyagok aktivációs termékei reaktorokban

^{3}H – hasadási termék (0,01 % hozam), deutérium (D,^{2}H) neutronaktivációjából, ^{10}B (n,2α) reakcióból T=12,3 év – Bórsav: adalék a reaktivitás finomszabályozásához (^{10}B: 19,9%) – igen hatékony neutronelnyelés, kis energiájú prompt gamma sugárzás

e(g) ~10^{-11} lágy β^{-}-sugárzó

„elválaszthatatlan” a víztől !

^{14}C – ^{17}O (n, α) reakcióból T=5730 év (^{17}O: 0,038%)

e(g) ~10^{-10} lágy β^{-}- sugárzó

Rövid felezési idejű pozitronbomló radionuklidok – ^{18}F, ^{13}N

^{16}N (E_{γ} = 6,13 MeV)

Adalékanyagokból: ^{24}Na, ^{42}K (a bórsav semlegesítéséhez és oldhatóságának növeléséhez)

Primervíz összes aktivitása a mintavétel után 15 perccel ~10^{7} Bq/dm^{3}

Víz és adalékanyagok anyagok aktivációs termékei reaktorokban

Paksi kibocsátás – trícium, szén-14:

^{3}H: főként HTO (tríciált víz)

légnemű:

korlát 170000 TBq/év - ki 3 TBq/év

folyékony:

korlát 29000 TBq/év - ki 21 TBq/év

^{14}C: CH_4, CO_2

légnemű:

korlát 1.10^{9} TBq/év - ki: 0,6 TBq/év

A reaktortartály és az árnyékolás közötti légtérből, vízben oldott levegőből: ^{41}Ar

korlát 46000 TBq/év – ki: 8 TBq/év

A hulladék komponenseinek analízise

Analízis – hulladékok minősítésére, tárolás/kezelés módszerének kiválasztására (kémiai és radiokémiai analízis)

Kulcsnuklid (key nuclide) hozzárendelésének feltételei nehezen mérhető (difficult-to-measure = DTM) nuklidokhoz:

- Elég hosszú felezési idő (végig követhető legyen a hulladék „pályája”)
- Elemezhetőség γ-spektrum alapján (nem kell kinyitni a lezárt tárolóedényt)
- Elegendően nagy mennyiség (kis mérési hiba, jó kimutathatóság)
- Kémiai viselkedése egyezzék meg a csomag többi komponensével

Radioaktív hulladékok eredete – 2/a Kutatóreaktorok

Kisebb reaktorok : reaktorszerelvények szerkezeti anyaga Al; nyitott („swimming pool”) víztér

Primervízben:

$^{27}Al(n,\gamma)^{28}Al$ és $^{27}Al(n,\alpha)^{24}Na$ T=15 óra

a „résekben” lévő és a hűtőközegben oldott levegőből: $^{40}Ar(n,\gamma)^{41}Ar$ T=1,8 óra

BME OR üzemidő alatt folyamatos kibocsátás, éves korlát: 0,8 TBq

tényleges kibocsátás: 0,03 TBq/év

Radioaktív hulladékok eredete – 2/b Spallációs berendezések

Ólom-, higany- vagy volfram ”target” – neutronforrás felgyorsult protonok ütköztetésével. Spallációval keletkező hosszú felezési idejű nuklidok:

^{53}Mn (T=3,74 millió év, EC – Auger-elektronok)

^{60}Fe (T=1,5 millió év, β^- , e(g) (L) 3.10^{-7} Sv/Bq)

^{146}Sm (T=103 millió év, α, e(g) (L) 1.10^{-5} Sv/Bq)

^{154}Dy (T=3 millió év, α, e(g) (L) 1.10^{-5} Sv/Bq)

^{209}Po, ^{210}Po: LBE (ólom-bizmut-eutektikum) targetben keletkeznek, T=102, ill. 0,38 év, α, e(g) (L) 1.10^{-5} Sv/Bq)

Radioaktív hulladékok eredete – 2/b Spallációs berendezések

Table 1: Elemental composition (weight-ppm) of LBE.

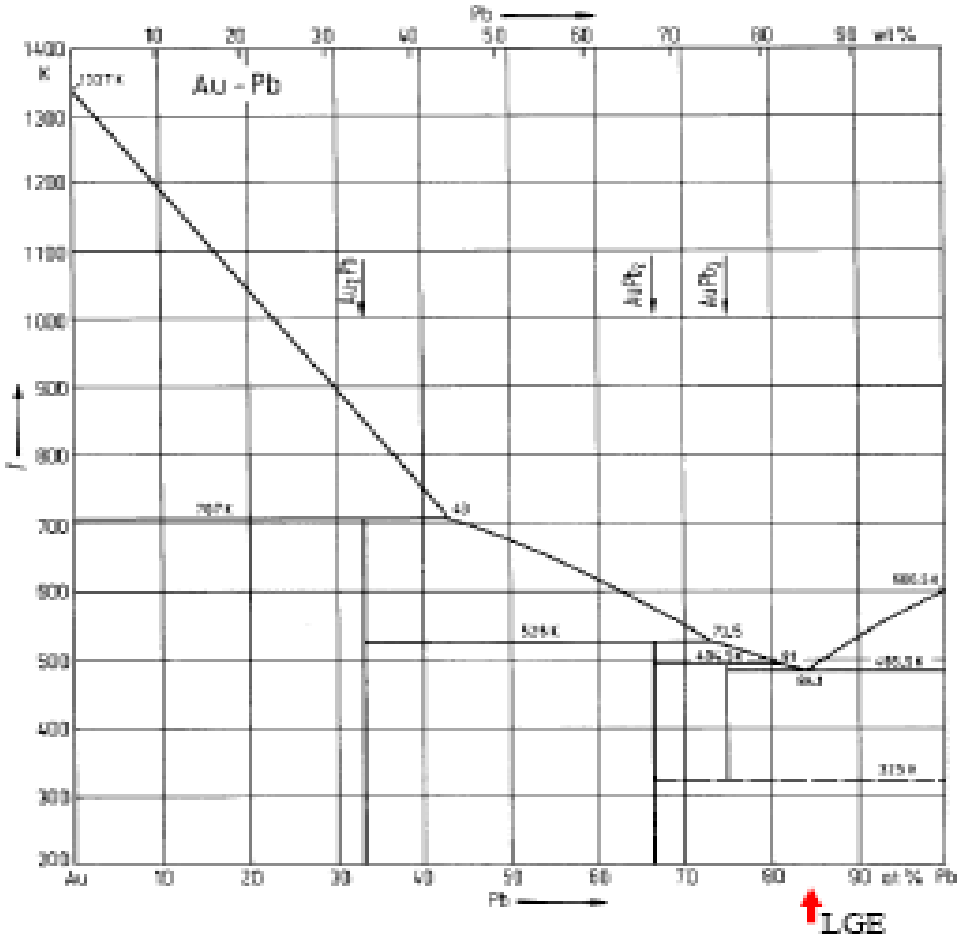
Element	weight-ppm
Ag	6.6
B	1.7
Bi	555000
Ca	0.39
Cd	0.6
Cr	0.4
Cu	2.1
Fe	0.2
In	28
Mg	0.2
Ni	2.4
Pb	455000
Sn	113
W	2.7

Ólom – bizmut vagy ólom – arany eutektikum?

Végső döntés: szilárd, forgatott és hűtött volfram céltárgy

- Lead containing 15.9 at-% of gold (LGE) melts 115°C lower than pure lead (327°C), i.e. at 212°C (for comparison LBE: 124°C). A phase diagram is attached. LGE allows an operation at sufficiently low temperatures for avoiding major corrosion effects (< 400°). Boiling of LGE starts at > 1700°C, i.e. in the same range as that of Lead and LBE, but at much higher temperatures than Hg (357°C).

Radioaktív hulladékok eredete – 2/b Spallációs berendezések



Phase diagram of Au-Pb (source: Landolt-Börnstein)

Ólom – arany eutektikum fázisdiagramja

Radioaktív hulladékok eredete
3. Orvosi sugárforrások - terápia

Brachyterápia: közeli szövetbesugárzás

Pl.: agydaganatok: a daganat cisztájába ^{90}Y-szilikát kolloid oldat;

a daganatszövetbe katéterekben ^{125}I (T= 60 nap, lágy X + γ)

vagy ^{192}Ir (T=74 nap, β^- + γ)

Hasonló célú sugárforrások: ^{226}Ra (α), ^{198}Au (β), ^{186}Re (β) utóbbiak rövid felezési idejűek, γ-val követhetők

Teleterápia: távoli irányított besugárzás ^{60}Co-val, gyorsító - fékezési röntgensugárzás

Radioaktív hulladékok eredete

3. Orvosi sugárforrások - diagnosztika

- Pajzsmirigyvizsgálat: régebben ^{131}I, újabban ^{99m}Tc (T=6 óra, γ [IT] – leányelem: ^{99}Tc – de gyorsan kiürül)

  „Tc-generátor” – ^{99}Mo-ból (T= 2,8 nap) „lefejtés” pertechnát-anionként
- Radioimmunoassay (RIA) – biológiai minták sejtbiológiai vizsgálati módszere, nyomjelzett szerves vegyületekkel - ^{3}H, ^{14}C radioizotópokkal

Radioaktív hulladékok eredete
4. Gazdasági („ipari”) sugárforrások

Radiográfia, építési és szerkezeti anyagok átvilágítása, csírátlanítás stb.:

hosszabb felezési idejű γ-sugárzók (^{137}Cs, ^{60}Co)

Kőzetek víztartalma: neutronforrások (pl. $^{241}Am(Be)$)

A radiológiai balesetek >95 %-a az orvosi és ipari forrásokkal történik! (Árnyékolás nélkül maradó források)

Radioaktív hulladékok eredete
5. Nukleáris fegyverkísérletek

Kihullás a tropopauza felett végrehajtott légköri robbantásokból:

^{239}Pu, ^{241}Am, ^{137}Cs stb. – hasonló radionuklidok, de más arányokban, mint a reaktorokból. ”Reaktor ujjlenyomat” radionuklidok nem keletkeztek.

Dózisjárulék: évi 1-10 μSv az északi féltekén

Radioaktív hulladékok eredete
6. TENORM

TENORM (^{238}U, ^{232}Th, ^{40}K …) – ot radioaktív hulladékként kezelendő mennyiségben produkáló eljárások:

1. *Bauxitbányászat, -feldolgozás*
2. *Cirkonhomok felhasználás, kerámiagyártás*
3. *Fémércbányászat, érckohászati feldolgozás*
4. *Foszfátérc feldolgozás, műtrágyagyártás*
5. *Geotermikus energia felhasználás*
6. *Kőolaj és földgáz kitermelés (beleértve a kutatófúrásokat is)*
7. *Ritkaföldfém bányászat, -feldolgozás*
8. *Szénbányászat, széntüzelésű erőművek*
9. *Uránércbányászat, -feldolgozás*

Radioaktív hulladékok feldolgozása

Feldolgozás (management) egymást követő lépései:

1. **Gyűjtés, osztályozás**
2. **„Kiindulási” minősítés**
3. **Tárolás (storage), szállítás**
4. **Hulladékkezelés (processing):**
   - **előkészítő műveletek**
   - **térfogatcsökkentés**
   - **kondicionálás**
5. **Végső minősítés**
6. **Átmeneti és/vagy végleges elhelyezés (disposal)**

Alternatív megoldások: kiégett nukleáris üzemanyag reprocesszálása, hosszú felezési idejű hulladékkomponensek transzmutációja

Radioaktív hulladékok feldolgozása

1. Gyűjtés, osztályozás:

- Folyamatos üzemi kibocsátás és egyéb tisztítás termékei: üzemi szűrők - kimerülés után radioaktív hulladék
- Üzemelés alatti, helyszínen maradó hulladék (időszakosan gyűjtik)
- Leszerelés (decommissioning – csak a leszerelés során gyűjtik)

Az üzemelés alatt keletkező hulladékok gyűjtési csoportjai:

- Halmazállapot szerint: - gáz (kompresszorral tartályba sűrítik vagy kiengedik) - folyadék
  - szilárd
- Felezési idő szerint (irányadó értékek: 65 nap, 30 év)
- Éghető – éghetetlen
- Aktivitáskoncentráció szerint (VLLW, LLW, ILW, HLW)
- Biológiai hulladék
- Vegyes hulladék (Mixed waste)

Radioaktív hulladékok feldolgozása

1. **Gyűjtés, osztályozás:** A hulladék gyűjtési körülményeit naplózni kell: halmazállapot, kémiai forma, radioizotópok, aktivitáskoncentráció, felületi dózisteljesítmény stb. adatokkal
2. **Kezdeti minősítés:**

   Osztályozás: veszélyességi mutató (S) alapján

   (Magyarországon: MSZ 14344/1 és 2/2022. OAH r.)

- Műszeres analízis: zárt tartályon át vagy mintavételezéssel, γ–spektrometriával
- Roncsolásos mintavétel: komponensekre bontás kémiai eljárásokkal, α– és β^-–sugárzók elválasztást követő analízise
- γ-dózisteljesítmény mérés: üzemi tároláshoz

1 μSv/h-300 μSv/h → LLW

300 μSv/h-10mSv/h → ILW

>10mSv/h → HLW

Radioaktív hulladékok feldolgozása

2. Minősítés:

Minősítés során dönteni kell a hulladékkezelés további menetéről, feladatairól:

- Tömöríthető? (Üveg, építőanyag hulladék külön kezelése)
- Illékony?
- Toxikus?
- Kulcsnuklidok (általában ^{137}Cs, ^{60}Co) bevezetése – γ–spektrometria

Dózistervezés:

A legkedvezőtlenebb hulladékos expozíciós forgatókönyv se eredményezzen nagyobb dózist a használatban levő radioaktív anyag hatásánál.

Minősítés in situ gamma-spektrometriával

WM2200 Series
Segmented Assay System

200 literes „szabványos” acélhordóban tárolt hulladékok minősítésére
-Forgó platform
-Egyenletesen függőlegesen mozgatott HP Ge detektor
-Szükség esetén árnyékolással

Radioaktív hulladékok feldolgozása

3. Tárolás, szállítás:

Tárolás: Külön és elhatárolva a minősítés alapján; az üzemhez tartozó területen – ugyanazon engedélyesé az üzem és a hulladék is.

Szállítás során a közúton való szállítás nem zárható ki. Nemzetközi előírások (ADR):

- » Járműre (autó, vonat, hajó)
- » Személyzetre
- » Útvonalra (közút: LLW,ILW; vasúti, tengeri: HLW)
- » Egy rakományban szállítható max. mennyiségek: A1, A2 (burkolati feltételek eltérőek) nuklidonként

Külső felületi dózisteljesítmény: max. 20 μSv/h

Járműburkolat (páncél): acél, ólom, bizmut, urán (!)

Részlet az ADR-ből

Nature of contents	Materials	Instruments and articles	
	Packages limits	Item limits	Package limits
Solids			
Special form	10^{-3} A_1	10^{-2} A_1	A_1
Other forms	10^{-3} A_2	10^{-2} A_2	A_2
Liquids	10^{-4} A_2	10^{-3} A_2	10^{-1} A_2
Gases			
Tritium	2.10^{-2} A_2	2.10^{-2} A_2	2.10^{-1} A_2
Special form	10^{-3} A_1	10^{-3} A_1	10^{-2} A_1
Other forms	10^{-3} A_2	10^{-3} A_2	10^{-2} A_2

Table 2.2.7.7.1.2.1 "Activity limits for excepted packages" ADR

A1 és A2-értékek: TBq nagyságrendben (veszélyes = „D” értékekhez hasonlóak vagy velük azonosak)

A sugárforrásokra és a radioaktív hulladékot tartalmazó szállítmányokra ugyanazon előírások vonatkoznak.

Radioaktív hulladékok feldolgozása

4. Hulladékkezelés

Előkészítő kémiai műveletek

pH beállítása

Ionerősség beállítása

Hordozók adagolása

Komplexképzők adagolása vagy komplexek bontása

Oxidációs állapot megváltoztatása (pl. „égetés” egy sajátos, specifikus formája: MEO – mediated electrochemical oxidation - Pu elválasztás része)

Radioaktív hulladékok feldolgozása

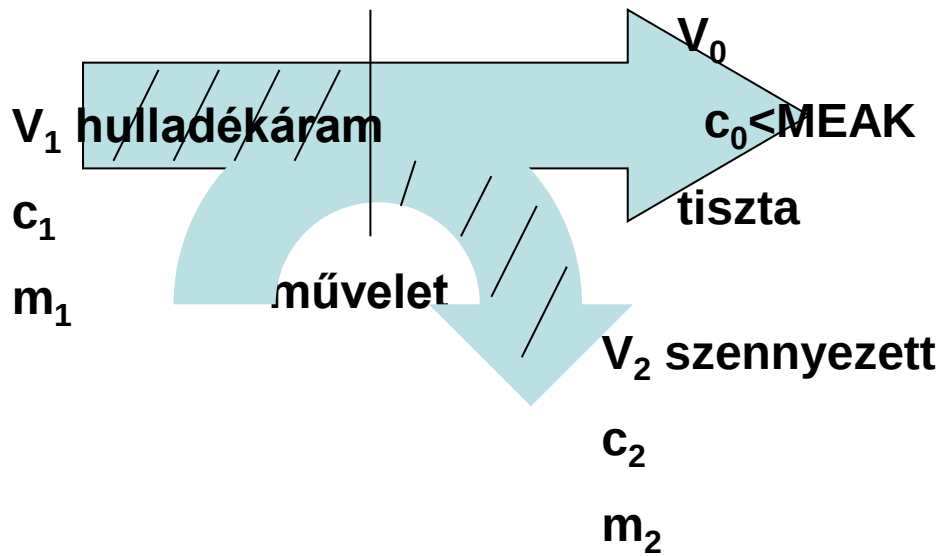
Hulladékkezelés műveletei - összefoglalás

Térfogatcsökkentés

- Általános: préselés, hőkezelés, bepárlás, szűrés, dekontaminálás
- Szelektív: felületi (szorpció - addíció, szubsztitúció), térfogati (extrakció, csapadékképzés) - dekontaminálás

Kondicionálás

- Cementezés (LLW, ILW)
- Bitumenezés (szerves LLW)
- Üvegesítés (HLW)



Radioaktív hulladékok feldolgozása – műveleti mutatók

- Térfogatcsökkentési tényező: az eredeti és a „sűrített” térfogat hányadosa

$$VRF = \frac{V_1}{V_2}$$ **vagy** $$MRF = \frac{m_1}{m_2}$$

- Dekontaminálási tényező: az eredeti és a „tiszta” koncentráció hányadosa

$$DF_i = \frac{c_{i,1}}{c_{i,0}}$$

Komponensenként KÜLÖN határozható meg, de az általános eljárásokra egységesen is megadható!

Radioaktív hulladékok feldolgozása

Térfogatcsökkentés: általános = mindegyik komponensre azonos mérvű.

Préselés: éghetetlen szilárd anyagokra, VRF= ~ 5-10 között
Tömörítés 50 bar nyomással; nem tömöríthető: üveg, tégla, beton
Hőkezelés: Égetés vagy hőbontás (incineration, calcination)
+ HEPA szűrő a füstgázzal távozó szennyezőkre
MRF = m_1/m_2 ~ 50-100 között; DF= szűrő dekontaminációs tényezője = c_1/c_0 ~ 10^4-10^5 (pl. a szűrőre vezetett gázokra)
Bepárlás – illékony folyadékokra
Szűrés – fluidumokban diszpergált szilárd anyagokra (csapadékképzés után is alkalmazható) jellemző mutató: DF (ált.)
Dekontaminációt: szilárd felület (szennyezett, c_1) + folyadék rendszer (tisztító) között; maradék felületi koncentráció: c_0 jellemző mutató: DF (ált.)
általános, ha a tisztító művelet minden radioizotópot eltávolít

Radioaktív hulladékok feldolgozása - Térfogatcsökkentés

<u>Préselés:</u> „supercompactor”

előtte

utána

Radioaktív hulladékok feldolgozása - Térfogatcsökkentés

Hőkezelés (égetés = oxidáció vagy hőbontás = kalcinálás) egy különleges megoldása:

„PLASMARC” plazma ív kemence (Svájc)

Olvadékot képeznek, amely öntőformába/hordóba önthető

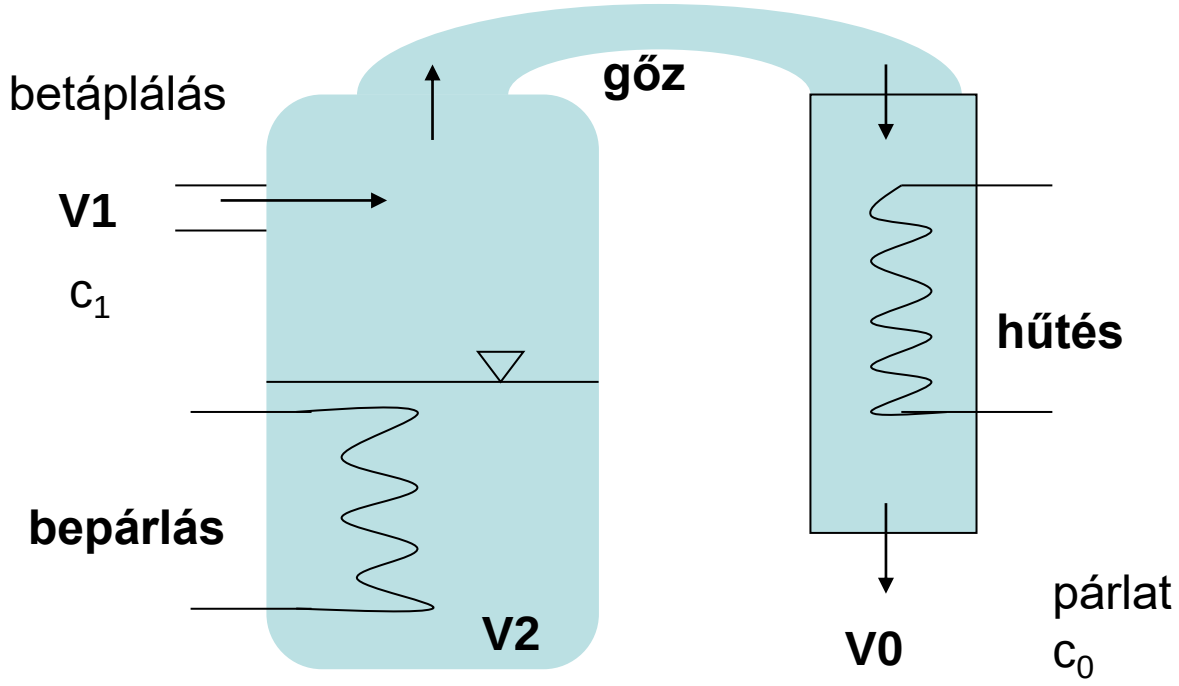
Kondicionálással közvetlenül összekapcsolható

Kezelhető hulladékok: szűrők, ioncserélő gyanták, bepárlási maradék, vegyes szilárd hulladék

Radioaktív hulladékok feldolgozása - Térfogatcsökkentés

<u>Bepárlás:</u> Folyadék fázisban, DF → ∞ ha a radioaktív anyagok nem illékonyak, csak a tisztítandó oldószer

VRF = 5 - 50



Radioaktív hulladékok feldolgozása

Térfogatcsökkentés szelektív módjai: valamelyik komponensre (radioizotóp v. izotópcsoport) specifikus a művelet.

Szokásos technológiai mutatók: DF, kapacitás

C = kezelt anyag [mól vagy kg]/kezelő anyag [m^2, m^3 vagy kg]

Felületi reakciók – szubsztitúciós vagy addíciós (szorpciós) mechanizmussal

Ioncsere: Felületi szubsztitúciós művelet; DF-vel jellemzik. A kezelt anyag folyadék. Az ioncserélők tisztíthatók, regenerálhatók. Lehetnek kation-, anion- és vegyes ioncserélők.

- Szerves műgyanták: DF = 10^3-10^4 a legtöbb radionuklidra, előny: nagy kapacitás, probléma: radiolízis (lánchasadás), ILW - HLW hulladékokhoz nem alkalmas, deformálódik, kicsi önhordóképesség - regenerálhatók. „Kevertágyas” – anion + kation
- Szervetlen: természetes és mesterséges anyagok

Radioaktív hulladékok feldolgozása - térfogatcsökkentés

Fő „ellenfél”: a jól oldódó alkálifémek (Cs), fémkomplexek ($Ag[NH_3]_2$), Co-EDTA, oxálsav, citromsav-komplexek)

Szervetlen ioncserélők

Általában kationcsere. Anioncsere is szükséges: (jód → I^- és IO_3^- ; technécium → TcO_4^-)

Szervetlen mesterséges kationcserélő ^{137}Cs és ^{134}Cs-hoz:

szilárd vázon $K_2Ni[Fe(CN)_6]$, (kálium-nikkel-hexacianoferrát) a kálium helyére kerül a cézium.

DF = 100

Tervezett újabb alkalmazás: Paks – FHF technológia részeként, Cs-elválasztáshoz

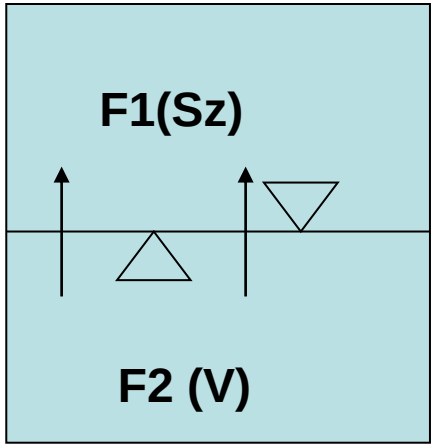
Radioaktív hulladékok feldolgozása - térfogatcsökkentés

Szervetlen természetes ioncserélők: ioncsere + szorpció együtt
Nem regenerálhatók, de olcsók. Összetett szerkezet miatt anion-és kationcserélők is!
ZEOLIT agyagásványok: ILLIT, MONTMORILLONIT, KLINOPTILOLIT
Elválasztáson kívül a hulladék <u>elhatárolásának</u> segédanyagai is:
- bentonit: SiO_2 + Al_2O_3 + Ca, K, Na, Fe stb. oxidjai + n.H_2O
 térfogatának 10-szeresét kitevő vizet képes megkötni
- perlit: vulkáni üveges kőzetből kialakított „felfúvódó” anyag

Radioaktív hulladékok feldolgozása - Térfogatcsökkentés

Extrakció: térfogati és addíciós művelet, folyadék-szilárd vagy folyadék-folyadék fázis között; nem elegyednek, de egy adott komponens át tud lépni F2-ből (vizes fázis) F1-be (szerves fázis).

$$DF = 10^2\text{-}10^3$$



Jellemző: K_c megoszlási hányados = c_{F1}/c_{F2}

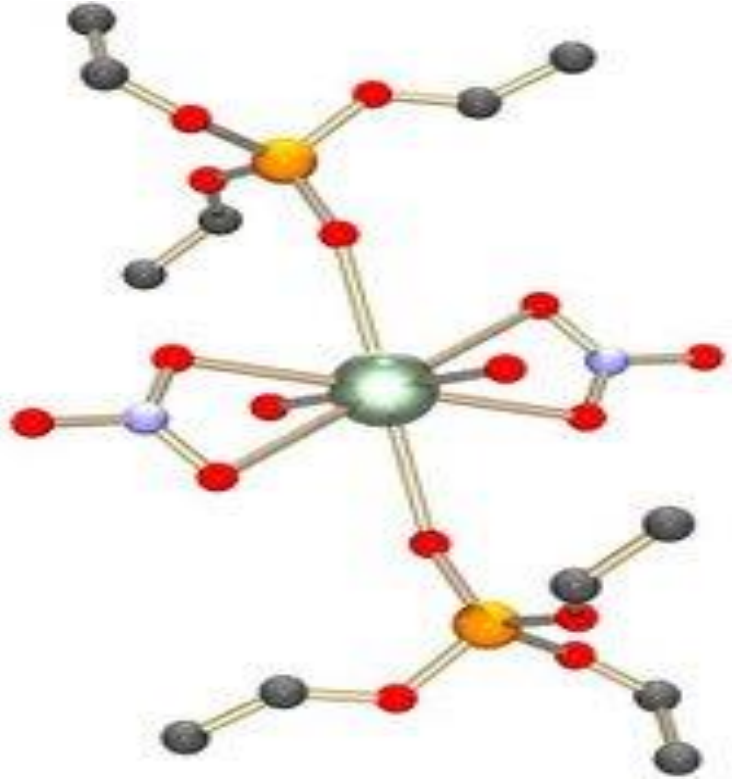
Gyorsítás: kevertetés, rázás

Tipikus felhasználás: reprocesszálás, urán és transzurán tisztítás, ahol kerozinban oldott TBP (tributil-foszfát) az extrahálószer → PUREX eljárás

Radioaktív hulladékok feldolgozása – térfogatcsökkentés- szelektív elválasztás

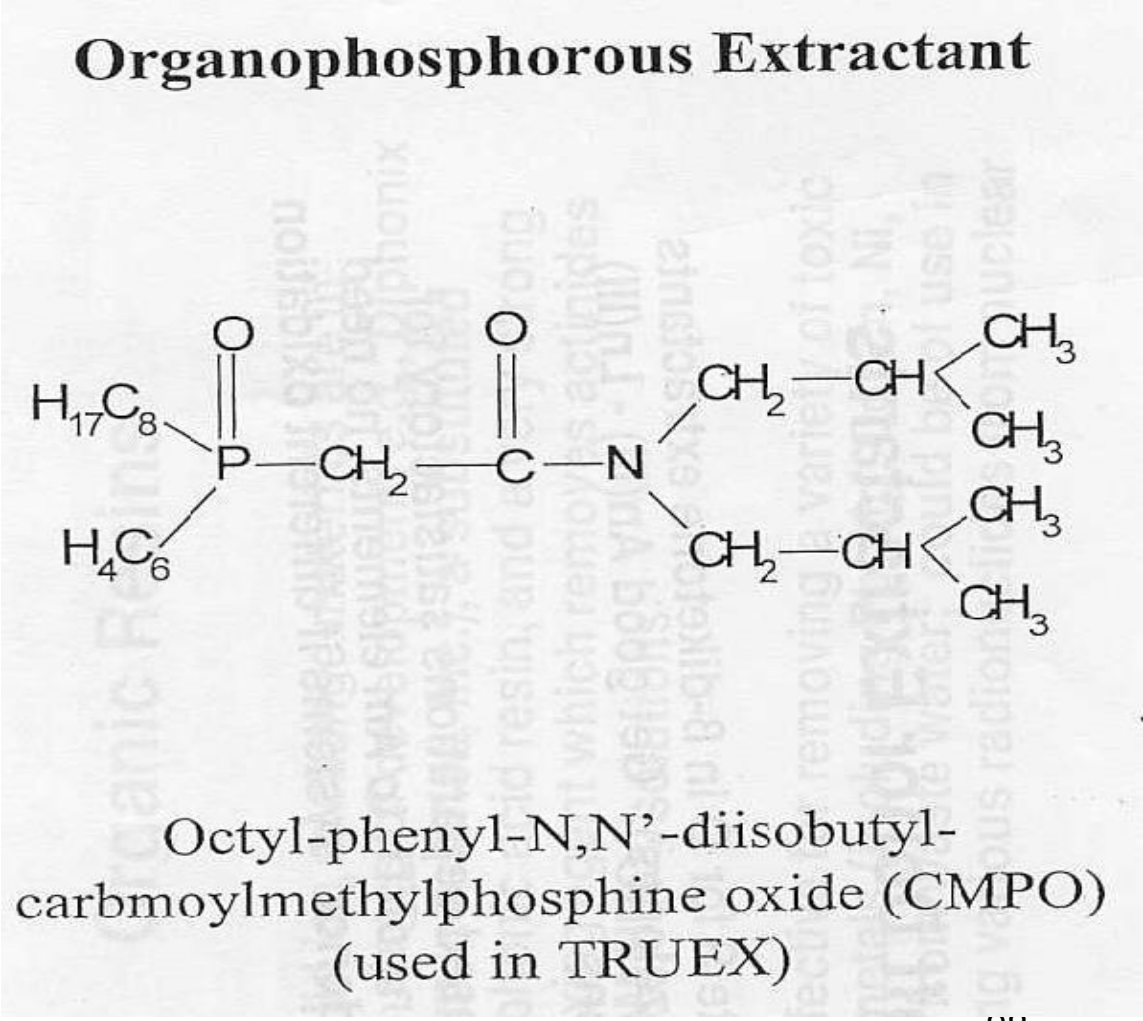
- Urán és plutónium extrahálószere: tributil-foszfát (TBP) – reprocesszálás, analízis

Uranil-nitráthoz kapcsolódó
két TBP-molekula
Oldószer: kerozin



Radioaktív hulladékok feldolgozása – szelektív elválasztás

Extraháló szer: CMPO a TRUEX - eljárásban



Radioaktív hulladékok feldolgozása

Kondicionálás: térfogatcsökkentés után (vagy szilárd/csapadékos hulladéknál) a szennyezett hulladékáram szilárdítására, immobilizálására törekszünk.

Mutatók:

•*mátrix/hulladék arány:* MWR

•*kimoshatóság* (leachability) → hatásfok [%] = kimosott anyag/kimosható anyag.

Nemzetközi gyakorlat (szabvány): általában annyi cm^3 vízzel, amennyi cm^2 a próbatest felszíne

•*mechanikai szilárdság* (dinamikus és statikus tesztek);

•*sugártűrés (*hőtűrés)

Radioaktív hulladékok feldolgozása

Kondicionálás szempontjai:

- Kezelőszemélyzet dózisa csekély legyen
- Rugalmas legyen a módszer: többféle hulladékot is fogadjon be a mátrix
- A mátrix és a befogadott hulladék homogén anyagot alkosson (zárványok ø)
- Hulladéktérfogat legyen minél kisebb
- Olcsóság
- Ellenálló legyen hőfejlődésre, radiolízisre

Radioaktív hulladékok feldolgozása

Kondicionálás:

Cementezés: mészkő+agyag (SiO_2, CaO, Al_2O_3 + H_2O), szervetlen és kristályos anyag, mátrix-hulladék arány (MWR) = 3:1 - 6:1 + adalékok (pl. bentonit, homok) a minőségi paraméterek (homogenitás) javítására
(közepesen jó hőtűrés, mechanikai szilárdság)
folyékony hulladékok: cementezés előtt felitatás kovaföldd el (= polikovasav + agyagásványok)
MOWA: paksi (tervezett, engedélyezett) eljárás
Fémhordókba cementeznek: 200l / 400l-es standard méretek
Kis- és közepes aktivitású hulladékra alkalmazható

Bitumenezés: szerves mátrix, az ásványolaj lepárlásából visszamaradó, nagy molekulatömegű, fekete színű termoplasztikus kötőanyag; rossz mechanikai szilárdság, de kimoshatóság (víztaszító) szempontjából jó; olcsó

Cementező berendezés és egy próbadarab a Cernavodă-i (Románia) atomerőműben

Radioaktív hulladékok feldolgozása

Kondicionálás:

Üvegesítés (vitrifikáció): előkészítő művelete: hőbontás; SiO_2, Al_2O_3, Na_2O, BeO, B_2O_3, Li_2O; szervetlen és amorf anyag, hulladék nem zárványban, MWR= 5:1 - 10:1, kimoshatósága a legjobb, de drága (plazmaív kemence: 1100-1300 ^oC), kiváló sugárállóság – elsősorban HLW-re alkalmas

Beolvasztás: LLW fémhulladék kondicionálása (Leszerelési anyagokra) - oxidáció kizárásával fémtömbbe olvasztják a térfogatában szennyezett (felaktivált) szerelvényeket, majd acélhordóba öntve tárolják tovább.

Üvegesített radioaktív hulladék tárolókonténere és próbatestek (Svájc, Nagy-Britannia)

19.3.5-14. ábra: Üvegezett hulladékot tartalmazó konténer [19-32]

Radioaktív hulladékok feldolgozása

5. **Minősítés-2:** dózisteljesítmény mérés, gamma-spektrometria – a csomag megbontása nélkül

   „Record keeping” – ez az utolsó lehetőség a pontatlanságok, hibák felderítésére. „Scaling factor”-ok alkalmazása a kulcsnuklidok felhasználásával. Magyar hatósági nyilvántartás: RADIUM program (OAH – MTA EK EKBI)

Szállítás: telephelyről az elhelyezéshez – engedélyes-váltás!

Magyarországon: Paksi AE, MTA EK AEKI, BME nukleáris reaktorok hulladékai → Radioaktív Hulladékokat Kezelő Közhasznú Nonprofit kft. (RHK kft.)

Radioaktív hulladékok feldolgozása

6. Átmeneti és/vagy végleges elhelyezés:

Felszíni, felszínközeli (LLW) vagy mélységi tárolás (LLW,ILW,HLW)

Minősítés: RTOX (radiotoxicitás index) [μSv/év]

$$RTOX = \sum_i A_i(t) \cdot \left(\sum_j tf_{i,j} \cdot Q_j \right) \cdot e(g)_i$$

A: aktivitás-leltár (időfüggő)
i: a leltárban lévő összes radionuklid
Q: éves fogyasztás a j-edik, a tároló környékén előállított/jelenlévő élelmiszerből
tf: átviteli (mobilitási) tényező: az i- edik radionuklid átvitele a j-edik élelmiszerbe [(Bq/kg)/Bq]
e(g): a megfelelő belső dózistényezők, általában lenyelésre

Radioaktív hulladékok feldolgozása

Átmeneti és/vagy végleges elhelyezés:

Követelmények:

<u>Többszörös mérnöki gátak</u> (Multiple Engineered Barriers)

<u>Mélységi védelem</u> (Defence-In-Depth) = az egyik gát sérülése ne legyen hatással a többi védelemre

- EB1 – kondicionált forma
- EB2 – acélhordó (cement radiolízise → passziválja az acélt)
- EB3 – betonfalú épület + hordók közti rés öntöttbetonnal való kitöltése → felszínközeli vagy mélységi tárolás
- EB4 – „backfill” visszatöltés + bentonit, geopolimer
- EB5 – „fresh bedrock” befogadó, háborítatlan kőzet

Felszín: Lezárás után beton + földborítás - rekultiváció

A végleges elhelyezés típusai

IAEA-kategóriák:

- Near surface disposal facilities;
- Geological disposal facilities;
- Disposal facilities for uranium and thorium mine waste;
- (Borehole disposal facilities)

Csoportosítás biztonsági szempontból:

- A vízkivételre alkalmas vízzáró rétegek felett = felszínközeli
- A vízzáró rétegek alatt = mélységi

Radioaktív hulladékok feldolgozása

Átmeneti és/vagy végleges elhelyezés

- Átmeneti: telephelyen belül vagy önálló felszíni telephelyen nedves (medencés) vagy száraz (aknás vagy különálló) tárolás
- Végleges:

  LLW – ILW: felszínközeli vagy mélységi lerakóhely

  HLW: mélységi lerakóhely

Mélységi lerakók befogadó kőzete:

- felhagyott bánya;
- kősólencse;
- háborítatlan kőzettest: gránit, aleurolit stb.

- Alternatíva: reprocesszálás, transzmutáció (HLW-t is termel)

Radioaktív hulladékok feldolgozása

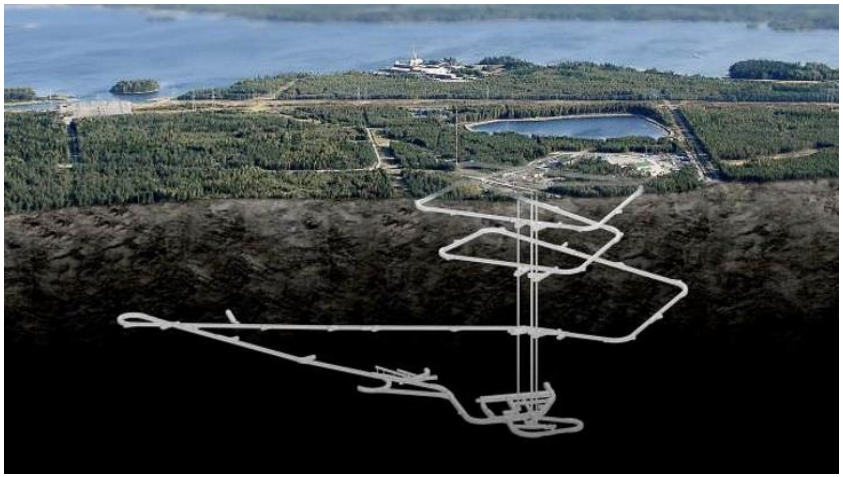
A legnagyobb véglegesnek szánt, felszínközeli tárolók (LLW, ILW):

L'Aube (Fr., 1 millió m^3)

Drigg (Sellafield) (NBr., 0,9 millió m^3)

Morvilliers (Fr., VLLW, 0,6 millió m^3)

Végleges, már üzemelő HLW lerakó nincs, létesítési engedéllyel rendelkező 2022-ben: Onkalo (Finnország)



Radioaktív hulladékok feldolgozása - Reprocesszálás

Kiégett fűtőelemek (SF) feldolgozása

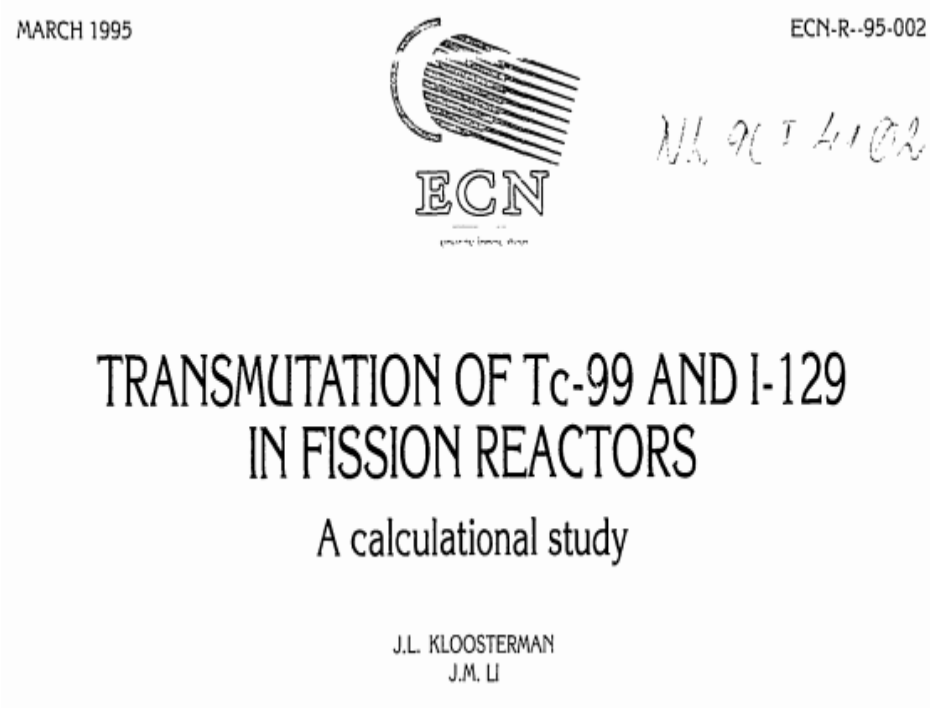
- SF darabolása, kémiai szétválasztás hasadóképes anyagokra (U, Pu), nem hasadó transzuránokra (Np, Am, Cm stb.) és hasadási termékekre;
- Új fűtőelem (pl. MOX: mixed oxide) előállítása
- A keletkező HLW kondicionálása
- Átmeneti elhelyezés, visszaszállítás, végleges elhelyezés…

Radioaktív hulladékok feldolgozása - Reprocesszálás

A BNFL reprocesszáló üzemének központi nedves tárolója – Sellafield.
A kép bal oldalán a forró kamrák láthatók.

Transzmutáció

Neutronbesugárzással rövid felezési idejűvé alakítják a hulladék hosszú felezési idejű komponenseit


MARCH 1995

ECN-R--95-002

ECN

TRANSMUTATION OF Tc-99 AND I-129 IN FISSION REACTORS

A calculational study

J.L. KLOOSTERMAN
J.M. LI

Neutronforrás: nagy fluxusú nukleáris reaktor, spallációs forrás
ADS = accelerator-driven system
Spalláció GeV energiájúra gyorsított protonokat vagy deuteronokat nehéz atomokba ütköztetve

Átalakítandó hulladék-komponensek: ^{129}I, ^{99}Tc, ^{126}Sn stb.