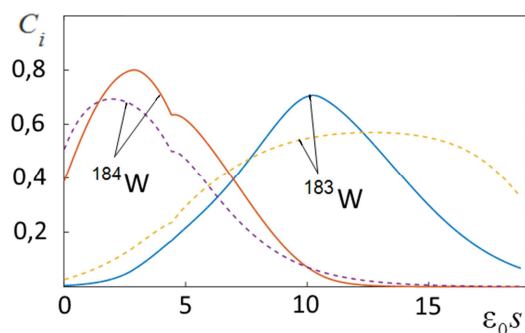




Р и с. 2. Распределение концентрации промежуточных изотопов вольфрама для каскада монотонного потока (---) и потока с расширением (—)

рация обоих изотопов для данного случая получила значительное приращение по сравнению с каскадом монотонного профиля потока.

**Заключение.** Таким образом, разработанная схема каскада позволяет одновременно концентрировать два изотопа промежуточных массовых чисел до концентрации выше предельно достижимой на выходе ординарных каскадов. На примере смеси изотопов вольфрама показана возможность одновременного концентрирования  $^{183}\text{W}$  и  $^{184}\text{W}$  до 70 и 80% соответственно. При этом дополнительный отбор может состав-

лять 50—70% основного (концевого) отбора каскада.

Исследование выполнено при поддержке гранта Российского научного фонда (проект № 18-79-00249).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Палкин В.А. Многопоточные каскады для разделения многокомпонентных изотопных смесей. — Атомная энергия, 2015, т. 119, вып. 2, с. 125—131.
2. Смирнов А.Ю., Сулаберидзе Г.А., Борисевич В.Д. Влияние профиля потока питания ступеней каскада на массоперенос промежуточных компонентов. — Теорет. основы хим. технологии, 2010, т. 44, № 6, с. 672—680.
3. Смирнов А.Ю., Сулаберидзе Г.А. Сравнение различных способов обогащения промежуточных компонентов в каскадах из одинакового числа разделительных элементов. — Атомная энергия, 2015, т. 117, вып. 5, с. 274—279.
4. Zeng S., Sulaberidze G.A., Jiang D. e.a. The Q-cascade explanation. — Sep. Sci. Techn. 2012, v. 47, № 11, p. 1591—1595.
5. Ingber L. Very fast simulated re-annealing. — Math. Comp. Model., 1989, v. 12, p. 967—973.

Поступила в Редакцию 14.03.19

УДК 621.039.31

#### РАДИОЛИЗ ОБОГАЩЕННОГО $^{232,234}\text{U}$ ГЕКСАФТОРИДА РЕГЕНЕРИРОВАННОГО УРАНА НА ЭТАПЕ ВРЕМЕННОГО ХРАНЕНИЯ НА РАЗДЕЛИТЕЛЬНОМ ПРОИЗВОДСТВЕ

Белов И.А., Гроль А.В., Невиница В.А., Повещенко О.Ю. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г Москва),  
Смирнов А.Ю., Сулаберидзе Г.А. (НИЯУ МИФИ, г. Москва)  
e-mail: neviniza\_va@nrcki.ru

Одними из факторов удорожания электроэнергии, вырабатываемой на АЭС, являются расходы на заключительной стадии топливного цикла [1]. Их снижение возможно, в первую очередь, за счет выделения урана и плутония из отработавшего топлива для последующего рециклирования, а также захоронения отходов. Более 95% изотопного состава отработавшего топлива приходится на уран, который составляет основную часть потока рециклируемых материалов. Вместе с тем рециклировать регенерированный уран сложнее, чем использовать для изготовления топлива природный уран. Основные трудности при использовании регенерата состоят в необходимости компенсировать обогащением наличие в его изотопном составе  $^{236}\text{U}$ , дополнительно поглощающего тепловые нейт-

роны, а также во многом ответственного за накопление в регенерате  $\alpha$ -излучающего  $^{232}\text{U}$ . Цепочка радиоактивного распада последнего включает в себя  $^{208}\text{Tl}$ , излучающий  $\gamma$ -кванты энергией около 2,6 МэВ. С одной стороны,  $^{232}\text{U}$  является одним из основных загрязнителей замкнутого по урану топливного цикла и его содержание в товарном низкообогащенном уране строго регламентируется [2]. С другой, основным  $\alpha$ -излучающим в регенерированном уране является  $^{234}\text{U}$ , содержание которого регулируется спецификациями ASTM и национальными техническими условиями [3]. Наличие  $\alpha$ -излучающих изотопов в регенерате урана важно контролировать с точки зрения не только безопасности предприятий, на которых дообогащается регенерат и изготавливается топливо, но и

возможных процессов диссоциации и рекомбинации гексафторида урана под воздействием  $\alpha$ -излучения [4]. Последнее важно при многократном рецикле урана, когда концентрация  $\alpha$ -излучающих изотопов в регенерате возрастает, а для его обогащения могут использовать двойные каскады, а не одиночный каскад газовых центрифуг [3, 5]. Большинство вариантов двойных каскадов характеризуется наличием отходов в виде загрязненной четными изотопами урана, особенно  $^{232,234}\text{U}$ , фракции с содержанием  $^{235}\text{U}$ , достигающим десятки процентов. Очевидно, что подобная фракция является высокоактивной, поскольку в ней сконцентрированы  $^{232,234}\text{U}$ . Однако она также содержит значительное количество  $^{235}\text{U}$ , поскольку обогащение последнего может составлять до 20% или выше.

В соответствии с Основными правилами учета и контроля ядерных материалов НП-030—12 материал этой высокозагрязненной фракции может быть переведен в категорию радиоактивных отходов, если его количество, находящееся в обращении в одной организации, не превышает 15 г. Таким образом, обращение с любым количеством данного материала, превышающим 15 г, необходимо осуществлять именно как с ядерным материалом с соблюдением требований ядерной и радиационной безопасности. Длительное хранение этого материала позволит снизить загрязнение  $^{232}\text{U}$  вследствие его распада и получить слаборадиоактивный уран обогащением 20% или выше, который впоследствии также можно использовать для производства топлива. Среди способов его хранения должны быть рассмотрены такие, как 1) обесфторивание с последующим хранением в виде  $\text{U}_3\text{O}_8$ , 2) хранение в виде гексафторида урана и разбавление гексафторидом отвального урана с последующим хранением с использованием способа 1 или 2.

С учетом того, что современные установки по конверсии обедненного гексафторида урана предназначены для переработки низкорadioактивного материала, первый способ может потребовать специальных установок для переработки гексафторида урана с более высокой по отношению к типичному отвалу разделительных производств активностью. Хранение в виде гексафторида урана требует обоснования безопасности из-за высокого тепловыделения, а также

радиационной стойкости при длительном 20—30 лет воздействии  $\alpha$ -излучения с одновременным выполнением требований ядерной безопасности вследствие 20%-ного обогащения. Третий способ является, возможно, наиболее простым, поскольку при соответствующем разбавлении обедненным ураном полученный гексафторид урана будет слаборадиоактивным и иметь концентрацию  $^{235}\text{U}$  ниже, чем в природной смеси. В этом случае его можно будет конвертировать по штатной процедуре, принятой на существующих установках по обесфториванию урана. При выборе любого из способов решение об обращении с высокообогащенной фракцией, образующейся при использовании двойных каскадов, следует принимать с учетом радиационной стойкости гексафторида урана к воздействию внутренних источников излучения в виде сконцентрированных в нем  $^{232,234}\text{U}$ .

В настоящей работе выполнен теоретический анализ радиолиза гексафторида урана, загрязненного внутренними источниками излучения. Основная цель — оценить его устойчивость при длительном воздействии излучения, обусловленного в несколько раз большим содержанием  $^{232,234}\text{U}$  по отношению к типичному для низкообогащенного урана.

Основными внутренними источниками  $\gamma$ -,  $\beta$ -,  $n$ - и  $\alpha$ -излучения, под воздействием которых может происходить радиолиз гексафторида урана, являются  $^{232}\text{U}$  и  $^{234}\text{U}$ . Их наличие в составе обогащаемого урана даже на уровне долей процента может инициировать сложные физико-химические процессы.

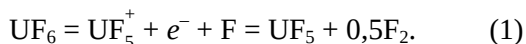
В настоящей работе выполнен расчетно-теоретический анализ радиолиза гексафторида урана, соответствующего высокообогащенным отходам двойного каскада. Изучаемый процесс рассматривали в цилиндрической емкости объемом  $0,2\text{ м}^3$ . Такие емкости могут использоваться для накопления гексафторида после выхода из разделительного каскада. Были приняты следующие физические параметры, характеризующие состояние газа после выхода из каскада газовых центрифуг: температура  $\sim 308\text{ К}$ , давление  $\sim 13\text{ кПа}$  [6]. Гексафторид урана с внутренними источниками излучения подвержен воздействию смешанного  $\gamma$ -,  $\beta$ -,  $n$ - и  $\alpha$ -излучения (табл. 1). Химический результат воздействия этих видов излучения можно считать аддитивным.

Т а б л и ц а 1. Исходный изотопный состав урана в  $UF_6$ 

| Параметр               | $^{232}U$            | $^{233}U$            | $^{234}U$            | $^{235}U$            | $^{236}U$            | $^{238}U$            |
|------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| Массовое число, а.е.м. | 232                  | 233                  | 234                  | 235                  | 236                  | 238                  |
| Массовая доля, %       | $2,36 \cdot 10^{-5}$ | $5,21 \cdot 10^{-5}$ | $6,81 \cdot 10^{-1}$ | 20                   | 6,54                 | 72,78                |
| Концентрация, $1/m^3$  | $7,34 \cdot 10^{17}$ | $1,62 \cdot 10^{18}$ | $2,12 \cdot 10^{22}$ | $6,23 \cdot 10^{23}$ | $2,04 \cdot 10^{23}$ | $2,27 \cdot 10^{24}$ |
| Масса, г               | $5,65 \cdot 10^{-5}$ | $1,26 \cdot 10^{-4}$ | 1,65                 | 4,86                 | 1,60                 | $1,79 \cdot 10^2$    |

Расчеты выполнены для двух случаев, отличающихся длительностью процесса, накоплением продуктов деления, изменением концентрации  $^{232,234}U$  вследствие распада. В первом случае время выдержки принято равным нулю, что соответствует состоянию гексафторида урана непосредственно сразу после выхода из каскада центрифуг. Второй случай соответствует выдержке гексафторида ~1,5 года (545 сут), в результате которой нуклидный состав урана изменяется и появляются продукты распада. В настоящей работе влиянием продуктов распада пренебрегали, кроме этого, на данной стадии исследований не учитывали процессы осаждения пентафторида урана на стенки сосуда.

При воздействии ионизирующего излучения на гексафторид урана образуются, в основном, пентафторид  $UF_5$  (образованием тетрафторидов также пренебрегали) и фтор  $F_2$  (стабильные продукты радиолиза) согласно уравнению



Согласно уравнению (1) изменение (увеличение) мольной концентрации  $UF_5$  равно изменению (уменьшению) концентрации  $UF_6$ , мольная концентрация  $F_2$  равна при этом половине концентрации  $UF_5$ .

Скорость радиолиза гексафторида урана и соответственно образования стабильных продуктов радиолиза пропорциональна мощности излучения, поглощенной в  $UF_6$ , коэффициентом пропорциональности является радиационно-химический выход диссоциирующих под воздействием излучения молекул  $UF_6$ , зависящий в общем случае от температуры и вида излучения [4]. В гомогенном приближении кинетику накопления продуктов радиолиза  $UF_6$  можно записать в виде

$$-dC(UF_6)/dt = G_{\text{эф}}(UF_6)I(t)/(100 \cdot 1,6 \cdot 10^{-19} N_A) + k_{\text{юбр}} C(UF_5)C(F_2), \quad (2)$$

где  $G_{\text{эф}}(UF_6)$  — радиационно-химический выход разложения  $UF_6$ , мол./100 эВ;  $I(t)$  — мощность излучения, поглощенная в гексафториде урана, Вт/м<sup>3</sup>;  $N_A$  — число Авогадро;  $k_{\text{юбр}}$  — константа скорости обратной реакции, м<sup>3</sup>/(моль·с);  $C(UF_6)$  — концентрация  $UF_6$  в заданном объеме, моль/м<sup>3</sup>;  $C(UF_5)$ ,  $C(F_2)$  — концентрация продуктов радиолиза, моль/м<sup>3</sup>.

Первый член в правой части уравнения (2) определяет скорость образования первичных продуктов радиолиза, второй характеризует скорость обратной реакции (рекомбинации  $UF_6$ ), зависящей от накопления продуктов радиолиза.

Мощность излучения, поглощенную в гексафториде, оценивали в пересчете на 1 м<sup>3</sup>. Из анализа табл. 2 следует, что максимальный вклад в радиолиз  $UF_6$  вносит  $\alpha$ -излучение — поглощенная гексафторидом мощность в 100 раз превышает поглощенную от остальных видов излучения. Зависимость поглощенной в гексафториде мощности излучения от времени выдержки незначительная — изменения в заданном интервале не превышают 12%. Мощность дозы рассчитывали с применением системы кодов SCALE (США).

Т а б л и ц а 2. Поглощенная мощность излучения в  $UF_6$  при разной выдержке, Вт/м<sup>3</sup>

| Выдержка, сут | Излучение            |                     |                      |                  | Суммарная мощность, $10^{-3}$ |
|---------------|----------------------|---------------------|----------------------|------------------|-------------------------------|
|               | $\alpha$ , $10^{-3}$ | $\beta$ , $10^{-5}$ | $\gamma$ , $10^{-8}$ | $n$ , $10^{-12}$ |                               |
| 0             | 2,36                 | 1,15                | 8,95                 | 5,18             | 2,37                          |
| 30            | 2,38                 | 1,19                | 9,31                 | 5,27             | 2,39                          |
| 90            | 2,41                 | 1,27                | 9,98                 | 5,58             | 2,43                          |
| 180           | 2,41                 | 1,27                | 9,98                 | 5,58             | 2,43                          |
| 365           | 2,57                 | 1,56                | 12,6                 | 6,29             | 2,58                          |
| 545           | 2,64                 | 1,71                | 13,9                 | 6,67             | 2,66                          |

Мощность поглощенной дозы рассчитывали в точке, соответствующей геометрическому центру сосуда, с учетом утечки нейтронов и  $\gamma$ -частиц за пределы объема сосуда по формуле

$$\sum_i^{NI} \frac{\bar{E}_i I_i}{m_{\text{UF}_6}} 3600,$$

где  $\bar{E}$  — средняя энергия  $\alpha$ -частиц  $i$ -го изотопа или средняя энергия  $\beta$ -частиц  $i$ -й энергетической группы, Дж;  $I_i$  — интенсивность излучения, част./с;  $m_{\text{UF}_6}$  — масса гексафторида в сосуде, кг.

В расчетах радиационно-химического выхода  $G$ , мол./100 эВ, продуктов радиолиза при совместном действии разных видов излучения использовано соотношение [7]

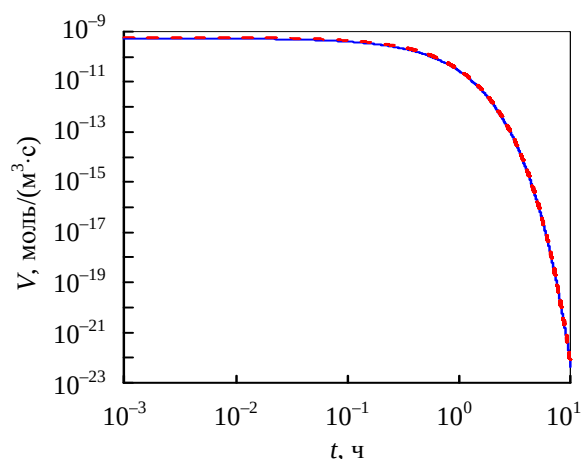
$$G_{\text{эф}}(\text{UF}_6) = G_{\gamma}x_{\gamma} + G_nx_n + G_{\alpha}x_{\alpha} + G_{\beta}x_{\beta},$$

где  $x_{\gamma, \beta, n, \alpha}$  — доля каждого вида излучения в суммарной мощности поглощенной дозы.

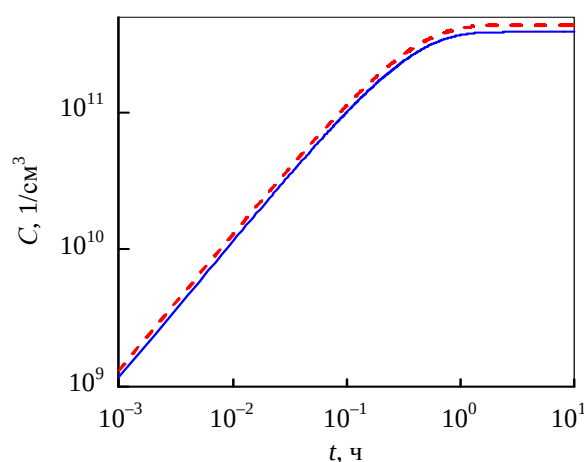
Радиационно-химический выход разложения  $\text{UF}_6$  в результате воздействия разных видов излучения на гексафторид был приближенно оценен по данным [4, 8].

Экспериментальных данных о кинетике обратной реакции (рекомбинации  $\text{UF}_6$ ) мало. Известно, что при исходном давлении  $\text{UF}_6 \sim 13$  кПа примерно через 10—15 ч облучения концентрация  $\text{UF}_6$ , а также продуктов радиолиза может выходить на равновесие, при котором  $dC(\text{UF}_6)/dt = 0$ . Следовательно, варьируя  $k_{\text{обр}}$  и оценивая при этом наработку продуктов радиолиза ( $\text{UF}_5$  и  $\text{F}_2$ ) за 10—15 ч облучения, по уравнению (2) при условии  $dC(\text{UF}_6)/dt = 0$  можно оценить константу скорости обратной реакции  $k_{\text{обр}}$ . Предварительно для каждого варианта определяли константу скорости обратной реакции  $k_{\text{обр}}$ . При этом характерное время установления равновесия принимали равным 10 ч, что в  $1,3 \cdot 10^3$  раз меньше максимальной выдержки 545 сут. Константа скорости обратной реакции составила  $k_{\text{обр}} = 3,33 \cdot 10^{-4} \text{ м}^3/(\text{моль} \cdot \text{с})$  для заданной выдержки.

**Результаты и их обсуждение.** Скорость радиолиза составляет  $\sim 5,4 \cdot 10^{-10}$  и  $6 \cdot 10^{-10}$  моль/( $\text{м}^3 \cdot \text{с}$ ) без выдержки и с выдержкой 545 сут соответственно, что примерно в 1,12 раза выше. Через 10 ч она снижается почти до нуля — устанавливается равновесное состояние (рис. 1). В равновесном состоянии концентрация  $\text{UF}_5$  без выдержки устанавливается на уровне  $\sim 3,75 \cdot 10^{11} \text{ 1/см}^3$ , при выдержке 545 сут —

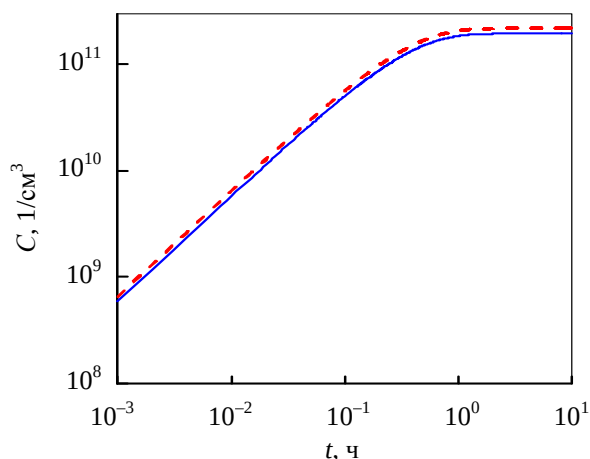


Р и с. 1. Временная зависимость скорости радиолиза  $\text{UF}_6$  без выдержки (—) и с выдержкой 545 сут (---)



Р и с. 2. Временная зависимость концентрации  $\text{UF}_5$  без выдержки (—) и с выдержкой 545 сут (---)

$4,2 \cdot 10^{11} \text{ 1/см}^3$ , что примерно в 1,12 раза выше (рис. 2). Для сравнения отметим, что концентрация гексафторида урана  $\text{UF}_6$  находится на уровне  $\sim 3,1 \cdot 10^{18} \text{ 1/см}^3$ . Следует отметить, что если согласно уравнению (1) пентафторид урана при радиолизе  $\text{UF}_6$  находится полностью или частично в ионизованном виде ( $\text{UF}_5^+$ ), то такую же концентрацию имеют и электроны. Концентрация электронов  $\sim 10^{11}—10^{12} \text{ 1/см}^3$  соответствует плазме тлеющего разряда. Таким образом, гексафторид урана при радиолизе под действием внутренних источников излучения высокой концентрации может находиться в состоянии слабоионизованной плазмы или плазмы тлеющего разряда (см. табл. 1, 2). В равновесном состоянии концентрация  $\text{F}_2$  без выдержки устанавливается на уровне  $\sim 1,87 \cdot 10^{11} \text{ 1/см}^3$ , при выдержке 545 сут —  $\sim 2,1 \cdot 10^{11} \text{ 1/см}^3$ , что в 1,12 раза выше (рис. 3).



Р и с. 3. Временная зависимость концентрации  $F_2$  без выдержки (—) и с выдержкой 545 сут (---)

Таким образом, расчетные исследования радиолиза гексафторида урана с относительно высоким содержанием  $^{232,234}\text{U}$  показали, что концентрация пентафторида урана, образовавшегося при радиолизе гексафторида урана, существенно в  $1 \cdot 10^7$  раза ниже концентрации гексафторида. Это без учета влияния примесей позволяет считать, что гексафторид в целом сохраняет свои свойства в рассмотренных условиях.

Авторы также выражают признательность А.Н. Шмелеву и Г.Г. Куликову, сделавшим ряд ценных замечаний.

Работа выполнена при поддержке НИЦ «Курчатовский институт», приказ от 05.07.2018 № 1602.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Похитонов Ю.А. Как можно снизить стоимость переработки облученного топлива и обеспечить надежную изоляцию всех отходов? — Радиохимия, 2017, т. 59, № 6, с. 481—487.
2. Кислов А.И., Титов А.А., Дмитриев А.М., Синцов А.Е. Радиационные аспекты использования регенерированного урана на ОАО «МСЗ» при производстве ядерного топлива. — Ядерная и радиационная безопасность, 2012, с. 52—59.
3. Бландинский В.Ю., Невиница В.А., Смирнов А.Ю. и др. Согласованный подход к моделированию выгорания при облучении и молекулярно-селективных процессов в разделительном каскаде для оценки перспектив раздельного рецикла регенерированного урана топлива в легководном реакторе. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядерно-реакторные константы, 2018, вып. 1, с. 68—75.
4. Shiflett C., Steidlitz M., Rosen F., Davis W. Jr. The chemical effect of alpha particles on uranium hexafluoride. — J. Inorg. Nucl. Chem., 1958, v. 7, p. 210—223.
5. Смирнов А.Ю., Невиница В.А., Фомиченко П.А. и др. Обогащение регенерированного урана в двойном каскаде газовых центрифуг с его максимальным возвратом в воспроизводство топлива. — Вестник НИЯУ МИФИ, 2018, т. 7, № 6, с. 449—457.
6. Орлов А.А., Малюгин Р.В. Анализ способов получения гексафторида урана, очистки его от примесей и заполнения в транспортные емкости. — Современные наукоемкие технологии. Региональное приложение, 2014, № 3(39), с. 89—98.
7. Кабакчи С.А., Булгакова Г.П. Радиационная химия в ядерном топливном цикле. М., РХТУ им. Д.И. Менделеева, 1997.
8. Дмитриевский В.А., Мигачев А.И. Диссоциация молекул  $\text{UF}_6$  под действием осколков деления ядер урана. — Атомная энергия, 1959, т. 6, вып. 5, с. 533—539.

Поступила в Редакцию 25.12.18

УДК 539.172.8.15

## ИЗМЕРЕНИЕ СЕЧЕНИЙ РЕАКЦИЙ $^{82,83,84}\text{Kr}(^3\text{He}, xn)^{82}\text{Sr}$ НА ЦИКЛОТРОНЕ У-150 НИЦ «КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ»

Загрядский В.А., Латушкин С.Т., Маламут Т.Ю., Новиков В.И., Оглоблин А.А.,  
Унежев В.Н., Чувилин Д.Ю. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)  
e-mail: zagryadskiy\_va@mail.ru

Настоящая работа относится к области получения на циклотроне радиоизотопов для ядерной медицины и посвящена измерению сечений реакций  $^{82,83,84}\text{Kr}(^3\text{He}, xn)^{82}\text{Sr}$ . Стронций-82 используют в  $^{82}\text{Sr}$ — $^{82}\text{Rb}$ -генераторах  $^{82}\text{Rb}$ , применяемых для кардиодиагностики методом позитронно-эмиссионной томографии. В настоящее

время  $^{82}\text{Sr}$  получают, как правило, по реакции  $\text{Rb}(p, 4n)^{82}\text{Sr}$  на ускорителях протонов энергией  $\geq 70$  МэВ [1—5]. В нашей стране из-за дефицита таких ускорителей возможности получения  $^{82}\text{Sr}$  указанным методом ограничены. В этой связи представляет интерес оценка альтернативных методов получения  $^{82}\text{Sr}$ , в частности, в реакциях