

(см. табл. 3), массовое отношение Pd/Ag для растворов концентрацией 1 и 4 М равно 10^6 и $9 \cdot 10^6$ соответственно, что отвечает содержанию серебра в палладии на уровне 10^{-4} и $10^{-5}\%$ по массе.

Чистота палладия. Из реэкстрактов палладия, полученных с 1-й ступени, были выделены осадки трансдихлородиаммина палладия, которые затем восстанавливали до металла водородом в кварцевых лодочках. Для анализа образцы порошка металлического палладия растворяли в «царской водке». Использованные соляная и азотная кислоты квалификации «ос. ч.» дополнительно очищали перегонкой. Концентрацию серебра в полученных растворах определяли атомно-абсорбционным методом непосредственно на фоне макроосновы (палладия) и после отделения палладия экстракцией ди-н-гексилсульфоксидом [6]. Корректность обеих методик проверена методом добавок. Проведены также контрольные опыты на всех операциях анализа. Поскольку анализ проводили в обычных лабораторных условиях, содержание серебра в обоих образцах оказалось на уровне контрольного опыта ($2 \cdot 10^{-4}\%$). Это в основном согласуется с оценками содержания серебра в палладии на основании состава аммиачного реэкстракта.

Чистота выделенного палладия по серебру в 10 раз превосходит соответствующий показатель (0,005%) для аффинированного палладия (сорт 99,95, ASTM B589-82, США). По ГОСТу РФ 12340—81 для палладия марки ПдА-0 (99,98) содержание серебра отдельно не регламентируется, но в сумме с другими примесями не должно превышать 0,02%.

Исследования вместе с данными [3, 4] подтверждают перспективность рассматриваемых экстракционных систем для извлечения и очистки осколочного палладия с использованием органических сульфидов и после проверки на реальных растворах — отходах пурекс-процесса могут послужить основой для обоснования извлечения осколочного палладия из отходов переработки топлива АЭС.

Работа выполнена в рамках проекта МНТЦ 1052-98.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Арсеев Л.В., Захаркин Б.С., Луничкина К.П. и др. Продукты деления — палладий и родий: состояние в растворах, поведение при регенерации топлива АЭС, поиск путей селективного извлечения. — Атомная энергия, 1992, т. 72, вып. 5, с. 461—473.
2. Торгов В.Г. Серосодержащие экстрагенты для разделения благородных и цветных металлов. — Isotopenpraxis, 1984, Bd 20, № 9, S. 148—150.
3. Торгов В.Г., Татарчук В.В., Дружинина И.А. и др. Обоснование выбора экстракционной системы на основе сульфидов нефти для извлечения осколочного палладия. — Атомная энергия, 1994, т. 76, вып. 6, с. 478—485.
4. Торгов В.Г., Татарчук В.В., Дружинина И.А. и др. Поведение благородных металлов при экстракционном извлечении и аффинаже осколочного палладия. — Там же, 1996, т. 80, вып. 4, с. 267—273.
5. Белеванцев В.И., Целодуб Л.Д. Растворимость AgCl в водных растворах HCl и H₂AuCl₄. — Сибирский хим. журнал, 1991, вып. 3, с. 62—65.
6. Николаев А.В., Торгов В.Г., Гильберт Э.Н. и др. Сравнительная характеристика экстракционной способности ди-н-октилсульфида, ди-н-октилсульфоксида и ди-н-октилсульфона по отношению к Hg(II), Au(III), Ag(I), Pd(II), Pt(IV), Ir(IV) из азотно- и соляно-кислых растворов. — Известия СО АН СССР, сер. хим. наук, 1967, № 14, вып. 6, с. 120—122.

Поступила в Редакцию 22.03.2000

УДК 621.039.7

ЯДЕРНАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ ПРИ ОБРАЩЕНИИ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ, СОДЕРЖАЩИМИ ДЕЛЯЩИЕСЯ МАТЕРИАЛЫ

Внуков В.С., Сичкарук О.В., Чукасли Л.И.
(ГНЦ РФ — ФЭИ им. А.И. Лейпунского)

Безопасное обращение с радиоактивными отходами признано одной из актуальных проблем ядерной энергетики. В связи с этим исследуются и обсуждаются разные аспекты обращения с отходами и их воздействия на окружающую среду. В настоящей

статье рассматриваются условия, при которых в процессе обращения с отходами, содержащими малое удельное количество делящихся материалов в виде урана или плутония, может возникнуть самоподдерживающаяся цепная реакция деления, оцениваются ее последствия. Рассматриваются типичные отходы заводов по производству твэлов, из которых по технико-экономическим соображениям не имеет смысла извлекать делящиеся материалы, а также предприятий типа НПО «Радон», где хранят, захоранивают, битумируют, цементируют, остекловывают отходы, в том числе и содержащие делящиеся материалы. К ним можно отнести жидкие отходы концентрацией урана 1—5 мг/л, сбрасываемые в хвостохранилища или конденсируемые, а также низко- и среднеактивные твердые отходы с делящимися материалами в виде нерастворимых осадков, резины, графита, керамики печей, металлолома, полиэтиленовых, стеклянных изделий, оргстекла, фильтров, источников, ионообменных смол, отработанных масел, экстрагентов, цветных металлов и т.д. Ситуация и способы обращения с отходами типичны и для других заводов топливного цикла. При низком удельном содержании делящихся материалов в отходах объемы захораниваемых отходов составляют тысячи кубометров в отдельных местах, суммарное количество делящихся материалов — десятки, сотни, тысячи килограммов, что не исключает возможности возникновения самоподдерживающейся цепной реакции деления. Примером самоподдерживающейся цепной реакции деления, произошедшей в условиях, аналогичных для мест захоронения отходов, может служить природный ядерный реактор на урановом руднике в Габоне (месторождение Окло). 1900 млн лет назад, когда обогащение урана составляло ~ 3,6% по ^{235}U при массовой доле грунтовых вод в пласте ~ 6%, начал работать природный ядерный реактор в режиме медленного кипения на протяжении сотен тысяч лет. Самоподдерживающаяся цепная реакция деления стала возможна при содержании оксидов урана в руде ~ 10% по массе, что соответствует ~ 3 г ^{235}U на 1 кг. Такое же содержание может быть и в местах захоронения твердых отходов, что еще раз свидетельствует о важности обсуждаемой проблемы.

Способы переработки и захоронения отходов. В НПО «Радон» в первые годы с начала деятельности твердые отходы всех видов в разнообразных упаковках помещали в приповерхностные могильники. В дальнейшем было принято цементирование пустот между упаковками с отходами. Концентраты жидких отходов сливали в емкости — бетонные резервуары, облицованные изнутри нержавеющей сталью. В дальнейшем были разработаны установки для прессования, сжигания и битумирования. Соответствующие продукты: брикеты, золу, блоки битумного компаунда направляли на захоронение вместе с другими низкоактивными отходами. В последнее время проводятся работы, направленные на реализацию новой концепции. Отходы всех видов должны перерабатываться и упаковываться в 200-литровые бочки. Отходы с делящимися материалами подлежат кондиционированию в 200-литровых бочках, хранению и последующему вывозу с территории предприятия в могильник федерального значения. Краткие характеристики процессов, а также отходов, подвергающихся различным методам конденсирования, таковы. На сжигание направляются спецодежда, средства индивидуальной защиты, ветошь, бумага, древесные, жидкие органические отходы, масла из вакуумных установок. Коэффициент сокращения объема при этом составляет 70—100 раз. В конечном продукте в виде золы и сажки в основном содержится углерод. Прессованию подлежат оборудование, тара, материалы, лабораторная посуда, керамика, стекло, полимеры. Пресс развивает усилие 100 т, что позволяет сократить объем в среднем в 6 раз. Полученные брикеты загружают в 200-литровые бочки. Конечный продукт содержит O, C, Al, Ca, Si, Ni, F, Cl, Cr, Ti, Zr, Fe, Cu, химические соединения с водородом. Битумирование используют для отверждения жидких отходов. Жидкие отходы из накопителя-резервуара объемом 3 м³ подают в дозатор и испаритель, куда вводится расплавленный битум. Полученный компаунд содержит нитрат натрия, гидроксиды железа, карбонаты, оксалаты и другие соли, а также углерод. Цементирова-

нием омоноличивают низкоактивные твердые отходы в могильниках. Могильники заполняют отходами по отсекам ярусами толщиной не более 1,5 м, затем заливают цементным раствором. Объем твердых отходов в могильнике составляет $\sim 4500 \text{ м}^3$, цементного раствора $\sim 1500 \text{ м}^3$. В конечном итоге монолитный массив отходы + цементный камень содержит O, C, Al, Ca, Si, Ni, F, Cl, Cr, Ti, Fe, S. Цементированию в 200-литровых бочках подвергают золу, сажу после сжигания, прессованные отходы, радиоизотопную продукцию (пожарные извещатели дыма и т.д.), измельченные металлоконструкции, кабели, стройматериалы, грунт, руду. Полученные отходы содержат те же элементы, что и при цементировании в могильниках. Для хранения бочек с отвержденными отходами предполагается построить склад, представляющий собой наземное крытое сооружение, где бочки будут складировать в четыре яруса. Бочки с отходами планируют захоранивать в федеральных могильниках. На территории ОАО «Машиностроительный завод» есть наливное хвостохранилище для сбора растворов, которое заполнялось в течение 10 лет. Растворы, содержащие не более 5 мг/л урана, обрабатывали известковым молоком и направляли в хвостохранилище. Содержание урана в пульпе не превышает 1—5 мг/л. В результате обследования хранилища была выявлена зона осадка размером $\sim 15 \times 15 \times 6,1 \text{ м}$, объемом $\sim 1370 \text{ м}^3$, массой 2050 т, плотностью $1,5 \text{ г/см}^3$, влажностью $\sim 46\%$, средним содержанием урана $0,063\%$, средним обогащением $23,9\%$ по ^{235}U . Основу твердой фазы составляют CaF_2 , CaCO_3 , $\text{Ca}(\text{OH})_2$.

Анализ ядерной безопасности. При переработке и хранении может увеличиваться содержание делящихся материалов в отходах и при достижении определенных условий возникать самоподдерживающаяся цепная реакция деления. Ввиду многообразия видов отходов и неопределенности их состава трудно точно определить состав смесей, поэтому в дальнейшем будем вводить консервативные упрощающие анализ предположения. Анализ ядерной безопасности системы обращения с отходами необходимо разделить на три стадии:

анализ отходов с точки зрения опасности возникновения самоподдерживающейся цепной реакции деления;

анализ технологических процессов при переработке отходов;

анализ безопасности при долговременном хранении переработанных отходов.

Определим критерии ядерной безопасности, т.е. количество, содержание делящихся материалов и условия, при которых возможна самоподдерживающаяся цепная реакция деления. Сначала оценим эти критерии для кондиционирования и хранения твердых отходов и компаундов жидких отходов в 200-литровых бочках, так как этот процесс начался недавно и при необходимости может контролироваться с точки зрения ядерной безопасности. Безопасное количество для отдельной бочки должно быть определено с учетом того, что бочки в дальнейшем будут хранить или захоранивать в специальных хранилищах. Типичные условия хранения в них — установка ярусами, причем каждый ярус может цементироваться. Типичный размер склада 20—30 м, высота 4—5 ярусов бочек, что составляет 3,5—5 м. Таким образом, систему можно считать бесконечной по направлениям x , y , так как утечка нейтронов в этом направлении пренебрежимо мала, и конечной в направлении оси z (высоты). Следует отметить, что использование в качестве ограничительного параметра безопасной концентрации урана не является допустимым в случае хранения отходов, так как добавление отходов с низким сечением поглощения нейтронов в перезамедленную систему с водным замедлителем слабо меняет k_∞ системы вследствие низкой поглощающей способности рассеивателей. При этом происходит увеличение объема смеси, что приводит к уменьшению концентрации, т.е. безопасная концентрация зависит от объемной доли таких отходов, которая на практике является величиной неизвестной. Разделим все отходы

на две группы по признаку материала, на котором в основном происходит замедление нейтронов. Первая группа — отходы, содержащие в основном графит и в меньшей степени другие замедляющие материалы. Примером таких отходов может служить зола, сажа после сжигания горючих отходов, резина. Вторая группа — это отходы, содержащие в основном водородсодержащие замедлители. В некоторых работах, например, [1] предложено использовать в качестве критерия ядерной безопасности для больших хранилищ поверхностную плотность делящихся материалов. В табл. 1 приведена поверхностная плотность для различных соединений урана и плутония с коэффициентом запаса 1,43 или $0,7\kappa_{кр}$ [1, 2], обеспечивающим $k_{эф} \leq 0,95$ при наличии снизу и сверху бетонного отражателя. Видно, что минимальная поверхностная плотность достигается для систем с замедлителем в виде углерода. В работе [1] показано, что для смеси плутония с углеродом при учете поглощающей способности стенок бочек толщиной $\sim 1,5$ мм безопасная поверхностная плотность увеличивается примерно в 6 раз и может составить $0,15$ г/см². Добавление воды в систему уменьшает $k_{эф}$, так как минимальная поверхностная плотность была получена при оптимальном замедлении. Следует заметить, что при учете стальных стенок бочек толщиной 1,5 мм безопасные параметры — поверхностная плотность и соответственно количество плутония или урана в бочке для систем с графитом становятся сравнимы с параметрами для систем с водой. Этот эффект объясняется большой длиной миграции нейтронов в графите, которая сопоставима с размерами бочек.

Т а б л и ц а 1. Безопасная и критическая поверхностная плотность делящихся материалов, г/см² ²³⁵U или плутония

Соединение	Критическая	Безопасная
²³⁹ Pu + H ₂ O	0,2	0,14
U* + H ₂ O	0,37	0,26
U** + H ₂ O	0,5	0,35
²³⁹ Pu + C	0,036	0,025
U* + C	0,052	0,036
U** + C	0,06	0,042

*,**Уран обогащением 90 и 5% по ²³⁵U соответственно.

Рассмотрим хранилище, в котором бочки объемом 200 л, диаметром 560 мм и толщиной стальной стенки 1,5 мм расположены вплотную в четыре яруса по высоте. Исходя из поверхностной плотности с учетом стальных стенок допустимое количество плутония и ²³⁵U в бочке составит 100 и 150 г соответственно.

Для анализа ядерной безопасности необходимо учитывать неравномерное расположение делящихся материалов в бочках, изменение степени замедления нейтронов вследствие добавления или наоборот уменьшения количества воды в системе, смешанное расположение бочек с водородсодержащим и углеродным замедлителем, влияние гетерогенности системы, наличие в отходах полиэтилена или масел с меньшей критической массой урана и плутония, чем для водного замедлителя нейтронов, возможность попадания в хранилище отдельных бочек с большим содержанием делящихся материалов.

Предположим, что места наибольшего скопления делящихся материалов расположены в точках соприкосновения четырех соседних бочек. Минимальная критическая масса составляет 500 г для смеси плутония с водой с водяным отражателем, 360 г для смеси плутония с полиэтиленом с водяным отражателем, 226 г для систем плутония

с водой с графитовым отражателем. Для исключения самоподдерживающейся цепной реакции деления в каждой бочке должно находиться не более $226/4 \sim 56$ г плутония. Минимальная критическая масса для систем с ураном обогащением 90% по ^{235}U составляет 820 г для смеси урана с водой с отражателем из воды, 580 г для смеси урана с полиэтиленом с отражателем из воды, 363 г для смеси урана с водой с отражателем из графита. Для исключения самоподдерживающейся цепной реакции деления в каждой бочке должно находиться не более $363/4 \sim 90$ г урана или ~ 80 г ^{235}U . Наличие стальных стенок, которые не учитывались в оценках, обеспечит $k_{\infty} \leq 0,95$.

Расчеты для систем из плутония или урана с графитом показывают, что $k_{\infty} < 1$ наблюдается для перезамедленных систем. Поэтому добавление воды в систему будет уменьшать k_{∞} вследствие того, что сечение поглощения воды в тепловой области нейтронного спектра превышает во много раз сечение поглощения на углероде.

Проведены расчеты k_{∞} для 4-ярусного расположения 200-литровых бочек, в каждой из которых находится 100 г плутония, 100 кг графита. В центр системы помещена бочка, содержащая 250 г плутония концентрацией 45 г/л в смеси с водой. Дополнительно рассматривается добавление воды в бочки и изменение плотности воды между ними. Максимальное значение k_{∞} составило 0,9.

Расчеты k_{∞} системы из бочек, в каждой из которых гомогенная смесь плутония с графитом заменялась гетерогенной в виде шариков разного размера из плутония, окруженных углеродом, показали, что гомогенная система имеет большее значение k_{∞} .

Оценки показывают, что ограничение делящихся материалов в 200-литровой бочке до 50 г плутония и до 80 г ^{235}U обеспечивает ядерную безопасность для любых видов отходов при хранении.

Рассмотрим твердые низкоактивные отходы, поступающие на переработку в НПО «Радон». Предположим, что их активность обусловлена ураном или плутонием, тогда максимально возможное содержание урана обогащением 96% по ^{235}U составит 0,172 г на 1 кг отходов, плутония — 0,161 г на 1 кг. С учетом того, что твердые отходы перевозят и хранят перед переработкой в металлических контейнерах, в качестве безопасного предела удельного содержания можно рекомендовать 0,25 г ^{235}U на 1 кг отходов, 0,156 г плутония, исходя из рассчитанного для 200-литровых бочек значения безопасного количества 50 г плутония и 80 г ^{235}U . Таким образом, для твердых низкоактивных отходов возможное содержание плутония и урана меньше безопасных пределов, поэтому контроль за содержанием делящихся материалов не является необходимым при их приемке и хранении перед переработкой. Однако в процессе сжигания объем отходов уменьшается в 70—100 раз, и они могут перейти в разряд среднеактивных. Поэтому перед сжиганием необходимо определить содержание делящихся материалов в низкоактивных твердых отходах. Если эта величина не превышает 0,0156 и 0,025 г на 1 кг отходов для плутония и урана соответственно, то не требуется ограничений по загрузке для печи сжигания и упаковки полученных продуктов в бочки, если превышает, то необходимо ограничение делящихся материалов по количеству при загрузке в печь (не более 400 г ^{235}U или 250 г плутония). Аналогичные ограничения требуются для средне- и высокоактивных твердых отходов.

Оценим критерии ядерной безопасности для жидких отходов. Обычно относящиеся к таким отходам растворы и смеси делящихся материалов с водой имеют низкую концентрацию. Безопасная концентрация для водных растворов урана и плутония составляет 9 г ^{235}U и 7 г плутония на 1 л. Однако возможность выпадения делящихся ма-

териалов в осадок и получение большой концентрации в осадках побуждает искать критерии ядерной безопасности с учетом их образования. Кроме того, при использовании современной технологии цементирования, битумирования, остекловывания увеличивается концентрация делящихся материалов в целях уменьшения их объема. Установим сначала безопасные пределы для водных смесей отходов и их осадков, при которых $k_{\infty} \leq 0,95$. Такие исследования были проведены [3] и показали, что безопасная концентрация для смесей типа $\text{Pu} + \text{SiO}_2$ составляет 0,7 г/л. В принципе возможно достижение меньшей критической концентрации для смесей плутония с графитом. Например, при безопасном содержании для смеси плутония с графитом (0,055 г/кг углерода) безопасная концентрация составит $\sim 0,09$ г/л. Меньшая критическая концентрация может быть также получена для висмута, фосфата висмута, бериллия, свинца. Эти данные получены для сухих осадков. Однако на практике состав осадков более сложен. В дальнейшем будем основываться на анализе осадков в хранилище ОАО «Машиностроительный завод», куда сбрасывают жидкие отходы концентраций ~ 1 —5 мг/л урана, а также в емкостях с жидкими высокоактивными отходами диаметром 29 м на заводе по переработке топлива в Ханфорде [3, 4]. Анализ показал, что плотность осадков составляет в обоих случаях $\sim 1,5$ г/см³, влажность ~ 44 —46%. Минимальная критическая концентрация плутония для идеализированных осадков в емкостях без учета поглотителей составила 2,6 г на 1 л, полученные для сухого осадка. При увеличении влажности осадка она возрастает, например, при влажности 25% до $\sim 4,2$ г/л. Введем понятие «коэффициента концентрации», которое определим как число увеличения концентрации при выпадении делящихся материалов в осадок. При исходной концентрации 1—5 мг/л средняя концентрация в осадках типа CaF_2 , CaCO_3 , $\text{Ca}(\text{OH})_2$ составила 0,9 г/л на ОАО «Машиностроительный завод», коэффициент концентрации 180—900. Для емкостей в Ханфорде при средней исходной концентрации $\sim 2,5$ мг/л максимальная составила 0,5 г/л в осадках, коэффициент концентрации 200. Поскольку точных данных о сбрасываемых растворах нет, примем консервативно коэффициент концентрации равным 1000. Тогда получим, что если в исходном растворе концентрация плутония не превышает 2 мг/л, то выпадение раствора в осадок не представляет опасности. В качестве примера такого подхода к ядерной безопасности можно ввести ограничения, принятые для емкостей в Ханфорде, где безопасным считается слив растворов концентрацией плутония 13 мг/л, при этом дополнительно требуется, чтобы концентрация плутония в осадках не превышала 1 г/л. Оценим активность растворов, не представляющих опасность с точки зрения возникновения самоподдерживающейся цепной реакции деления, для растворов плутония $\sim 10^{-4}$ Ки/л, аналогично для растворов урана можно консервативно принять $\sim 10^{-7}$ Ки/л.

Отдельного рассмотрения требуют жидкие отходы, где основным химическим элементом, который выпадет в осадок, является углерод. Такие процессы наблюдаются при известковании растворов. В этих случаях в качестве безопасной концентрации урана в осадках следует принимать 0,7 г/л.

Анализ ядерной безопасности при обращении с твердыми отходами. Рассмотрены типичные отходы, которые образуются на ОАО «Машиностроительный завод» и которые предполагается хранить или отправлять на переработку в НПО «Радон». Расчеты для определения безопасного удельного содержания ^{235}U в отходах проведены по программе МКФК-2 с упрощающими консервативными предположениями о составе отходов, так как массовая доля отдельных компонентов может изменяться в определенных интервалах. Безопасное удельное содержание определялось для тройной смеси $\text{U} + \text{отходы} + \text{H}_2\text{O}$ (табл. 2).

Т а б л и ц а 2. Безопасное удельное содержание делящихся материалов
для твердых отходов при $k_{зф} = 0,95$

Отходы	Химический состав, массовая доля компонентов, %	Обогащение урана, %	Безопасное удельное содержание, г ^{235}U /кг отходов
Резина	C 70—90	4,4	0,78
	H 3—10		
	O 1—10		
	N 1—5		
	S 3—10		
Графит	C ~ 100	90	0,48
		4,4	0,09
		90	0,08
Керамика печей	O 50—70	4,4	3,6
	Si 20—30		
	Al 10—20		
	Fe 1—2		
Полиэтиленовые изделия	C 86	90	2,1
	H 14	4,4	12
		90	13,5
Фторопласт	F 41—76	4,4	7
	C 21—24		
	H 0—7		
	Cl 0—30		
Оргстекло	C 60—80	4,4	6,9
	H 4		
	O 10—30		
	N 3		
Ионообменные смолы	C 73—80	90	3,9
	H 7—9	4,4	8,5
	O 5—7		
Селикагель	Si 47	4,4	1,5
	H 53		
Циркониевые отходы	Zr 100	4,4	1,6
		90	0,9
Пластикат, ткань ПВХ	C 38	4,4	38
	H 5		
	Cl 57		
		90	8,1

Одним из важнейших критериев для определения возможности возникновения самоподдерживающейся цепной реакции деления при захоронении отходов является степень концентрации делящихся материалов, а также процессы, при которых они отделяются от нуклидов, поглощающих нейтроны, например, от железа или хлора. Эти процессы являются индивидуальными для каждого места захоронения, зависят от типа отходов (жидкие, твердые), химических и физических процессов и требуют исследований в каждом конкретном случае. Перечислим некоторые процессы, которые требуют изучения:

химические процессы — гидролиз, сорбция делящихся материалов, восстановительно-окислительные процессы, температурные эффекты, pH-эффекты, эффекты радиолиза, экстракция и реэкстракция;

механические процессы — фильтрация, зависящая от состава породы;

физические процессы. Поскольку плотность оксидов плутония и урана отличается от плотности других оксидов, присутствующих в отходах, возможно их разделение под действием гравитационных сил.

Исследования, проведенные в Ханфорде для баков с высокоактивными отходами, показывают, что, хотя теоретически коэффициент концентрации может достигать несколько сотен, реально он не превышает 20. Поэтому, очевидно, верхняя оценка коэффициента концентрации 1000, принятая в настоящей работе, будет консервативной.

Возможность и последствия возникновения самоподдерживающейся цепной реакции деления в отходах. В работе [5] приведены расчеты по определению условий критичности для низкоактивных твердых отходов и оценке потенциальной дозы облучения при самоподдерживающейся цепной реакции деления для подземных хранилищ в штате Юта (США). Предполагалось, что отходы активностью 770 пКи/г захораниваются на разную глубину. Предполагалось, что обогащение урана равно 100%.

Таким образом, можно оценить, что содержание ^{235}U в отходах составляет $77 \cdot 10^{-11}$ Ки/г/2, $1 \cdot 10^{-6}$ Ки/г $^{235}\text{U} = 0,38$ г ^{235}U /кг ($\sim 0,6$ г/л). Изучались возможность и сценарии миграции урана и увеличения концентрации, которое может привести к возникновению самоподдерживающейся цепной реакции деления. В целях консервативности предполагалось, что погрешность расчетов $k_{\text{эф}} \sim 0,05$, поэтому за критическое значение принималось $k_{\text{эф}} = 0,95$. Рассматривались системы $\text{U} + \text{SiO}_2 + \text{H}_2\text{O}$.

Один из сценариев самоподдерживающейся цепной реакции деления заключается в том, что в результате миграции концентрация урана увеличивается в 3,6 раза. Этот сценарий характерен для мест захоронения, находящихся на глубине 3,6 м. В другом сценарии концентрация урана увеличивается в 10,5 раза. Этот сценарий имеет место для глубины захоронения $\sim 4,5$ м. Рассматривали два места расположения персонала на месте самоподдерживающейся цепной реакции деления — 1 м выше поверхности и 1 м выше поверхности и 90 м в сторону от самоподдерживающейся цепной реакции деления. Теоретически процессы, которые приводят к миграции и концентрации урана, аналогичны происходящим при образовании залежей руды, хотя практические измерения показывают, что для имеющихся захоронений урана такие процессы не происходят. Рассматривали разную геометрию — сферу, цилиндр, плоскую пластину. Оценивали самоподдерживающуюся цепную реакцию деления, которая может произойти при минимальной и максимальной концентрации урана. Предполагалось, что цепная реакция деления происходит при минимальной концентрации урана 2,15 г/л в системе $\text{U} + \text{SiO}_2 + \text{H}_2\text{O}$ в виде плоского цилиндра толщиной 250 см или при максимальной концентрации урана 6,3 г/л в плоском цилиндре толщиной 94 см. На начало цепной реакции деления в первой системе находилось 44,4 г/л, во второй 17,1 г/л воды. Сценарий аварии — медленное введение малой реактивности, затем возникновение кипения воды и установление постоянного уровня мощности. Количество воды, которое должно испариться, чтобы самоподдерживающаяся цепная реакция деления прекратилась, оценивается $2,8 \cdot 10^4$ л для случая с минимальной концентрацией урана и $4,1 \cdot 10^4$ л для случая с максимальной концентрацией урана. Учитывая, что для испарения 1 л воды необходимо 10^{17} делений, общее число делений для первого случая составляет $2,8 \cdot 10^{21}$, для второго — $4,1 \cdot 10^{21}$. Доза, которую получит персонал, приведена в табл. 3. Различие дозы обусловлено разной толщиной земли в обоих случаях до поверхности земли и расстоянием персонала от места возникновения самоподдерживающейся цепной реакции деления.

Т а б л и ц а 3. Поглощенная доза в зависимости от места возникновения самоподдерживающейся цепной реакции деления

Концентрация урана, при которой возникла самоподдерживающаяся цепная реакция деления, г/л	Расстояние от места самоподдерживающейся цепной реакции деления*, м	Нейтронная доза, рад	Доза γ -излучения, рад
6,3	0	34,4	21,7
2,15	0	98,6	58,8
6,3	90	0,045	0,012
2,15	90	0,131	0,034

*Расстояние от вертикальной оси в обоих случаях на 1 м от поверхности земли.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Anno J., Simonneau M., Gnerre D. Criticality safety study of Pu contaminated carbon waste stored in 100L steel drums. — In: The Fifth Intern. Conf. on Nuclear Criticality Safety, v. II, Albuquerque, New Mexico, USA, 1995, p. 11.29—11.35.
2. Maubert L., Standart DE Criticalite. CEA-N-2051, IPSN, 1978, p. 38.
3. Rogers A., Harris H., Kavin N. e.a. Criticality parameters for tank waste evaluation. — In: Proc. of the Topical Meeting of Criticality Safety Challenges in the Next Decade, Chelan, Washington, 1997, p. 40—47.
4. Greenborg J., Barney C., Rogers C. Hanford tank farm nuclear criticality review. — Ibid., p. 48—55.
5. Hopper C., Parks C. Potential for and consequences of criticality resulting from hydrogeochemically concentrated fissile uranium blended with soil in low-level waste disposal facilities. — Ibid., p. 73—79.

Поступила в Редакцию 17.03.2000

УДК 621.039.343

УСТАНОВКА ДЛЯ РАЗДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ МЕТОДОМ ИЦР-НАГРЕВА

Волосов В.И., Котельников И.А., Чуркин И.Н., Кузьмин С.Г., Стешов А.Г.

(Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН),

Тимофеев А.В. (РНЦ «Курчатовский ин-т»)

Изотопы разделяют несколькими методами. Однако каждый из них имеет ограничения: в газодиффузионном методе это проблема газовой фазы, ограничивающая получение многих элементов [1, 2], в электромагнитном методе — низкая производительность и высокие энергозатраты [3], лазерные методы разделения не имеют сегодня за редким исключением промышленного применения [4].

Универсальным является метод разделения изотопов с использованием селективного ИЦР-нагрева плазмы (ИЦР-метод) [5, 6]. В принципе этот метод позволяет создать технологию производительностью, существенно превышающей производительность электромагнитных устройств. Последние эксперименты показали принципиальную реализуемость этого метода [7—10]. Однако до последнего времени на установках по ИЦР-разделению изотопов не удалось получить высокие производительность и качество разделения изотопов.

Все это свидетельствует о необходимости дальнейшего развития метода. Любая установка по ИЦР-разделению изотопов включает в себя три основных элемента: систему получения плазмы, систему селективного ИЦР-нагрева ионов и систему отбора целевого изотопа. В настоящей работе обсуждаются принципиально новые решения всех трех систем. По нашему мнению, их реализация позволит существенно повысить эффективность ИЦР-метода разделения изотопов [11—16]. Подобные установки могут применяться для разделения любых изотопов, однако в связи с актуальностью задачи получения в больших объемах изотопов гадолиния и, в частности, изотопа массой 157 численные оценки приводятся применительно к этой задаче.

Физические принципы основных элементов установки. Одной из ключевых проблем в установках для разделения изотопов методом ИЦР-нагрева является наличие производительного источника плазмы с тяжелыми ионами. Желательно, чтобы этот источник был универсальным: смена вида разделяемых элементов не должна требовать полной замены источника.

Обычно в перспективных конструкциях промышленных установок для разделения изотопов ИЦР-методом предлагается увеличивать производительность за счет увеличения сечения потока плазмы. При этом плотность потока плазмы остается неизменной (см., например, работы [17, 18]). В источнике такого типа плазма создается СВЧ-разрядом, который поджигается вдоль поверхности пластины из распыляемого вещества. Энергия ионов в таком источнике составляет единицы электронвольт, плот-