

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Солонин М.И., Поляков А.С., Никипелов Б.В. и др. Замыкание уран-плутониевого цикла: опыт, перспективы решения, нормативно-законодательная база, обращение с отходами. X ежегодная конф. Ядерного общества России, 28 июня— 3 июля 1999, Обнинск.
2. Розен А.М. и др. — Атомная энергия, 1985, т. 59, вып. 6, с. 413.
3. Polyakov A.S., Koltunov V.S., Marchenko V.I. et al. Trends for minimization of radioactive waste arising from spent nuclear fuel reprocessing. — In: Intern. Conf. Global'99, August 29 — September 3, 1999, Jackson Hole, Wyoming, USA, 1999.
4. Волк В.И. Новые подходы к процессу переработки отработавшего ядерного топлива. 2-я Межд. конф. и выставка «Радиационная безопасность». 9—12 ноября 1999 г. С.-Петербург
5. Адамов Е.О., Ганев И. Х., Лопаткин А. В. и др. Трансмутационный топливный цикл в крупномасштабной ядерной энергетике России. Монография. М., НИКИЭТ, 1999. 252 с.

РАЗРАБОТКИ НПО “РАДИЕВЫЙ ИНСТИТУТ” В ОБЛАСТИ ОБРАЩЕНИЯ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ ЯТЦ

*Римский-Корсаков А.А., Романовский В.Н., Любцев Р.И., Лазарев Л.Н.
(НПО “Радиевый институт” им. В.Г. Хлопина)*

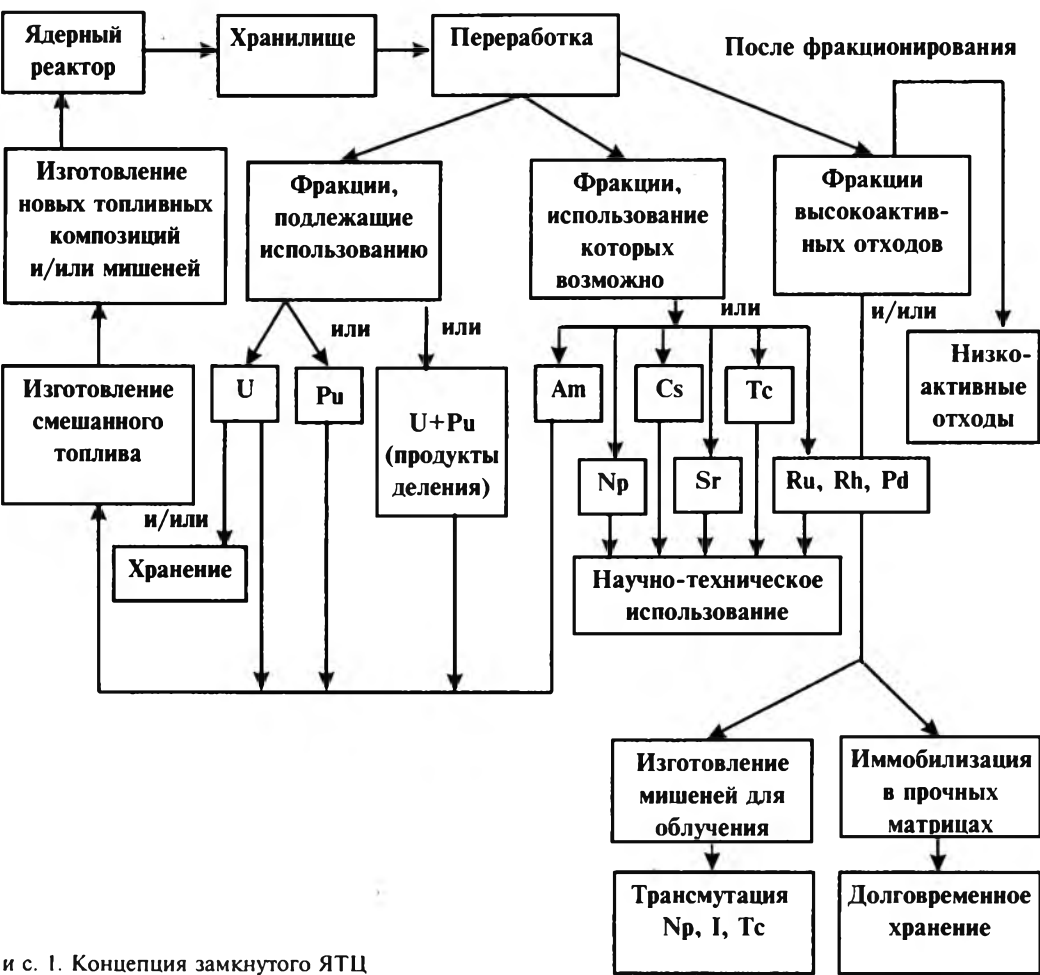
Безопасное обращение с радиоактивными отходами является одной из тех проблем, от которых в значительной мере зависит судьба ЯТЦ в целом, возможные масштабы и динамика развития ядерной энергетики. Отработавшее топливо содержит большое количество, в том числе особо опасных радионуклидов, обладающих разнообразными ядерно-физическими, радиационными и физико-химическими свойствами. Задача заключается в том, чтобы для каждого из них найти такой способ обращения, который гарантировал бы безопасность для внешней среды на протяжении всего времени его существования (табл. 1).

Т а б л и ц а 1. Радионуклиды, определяющие активность и токсичность отработавшего топлива

Временной интервал, год	Определяющие радионуклиды
До 100	^{55}Fe , ^{58}Co , ^{59}Ni , ^{90}Sr , ^{106}Ru , ^{125}Sb , $^{134},^{137}\text{Cs}$, ^{144}Ce , ^{147}Pm , $^{154},^{155}\text{Eu}$
100—1000	^{137}Cs , ^{151}Sm , $^{59},^{63}\text{Ni}$, ^{60}Co
1000—10000	$^{239},^{240}\text{Pu}$, ^{241}Am
10^4 — 10^5	^{237}Np , $^{239},^{240}\text{Pu}$, ^{243}Am , ^{14}C , ^{59}Ni , ^{93}Zr , ^{94}Nb
$>10^5$	^{129}I , ^{99}Tc , ^{239}Pu

Наиболее полно и радикально эта задача может быть решена только в рамках реализации замкнутого ядерного топливного цикла. Его центральным звеном является радиохимическая переработка, которая позволяет разделить отработавшее топливо на фракции индивидуальных и/или группы радионуклидов, причем каждая фракция имеет определенное назначение и своей специфичный способ обращения (рис. 1).

Таким образом, концепция замкнутого ЯТЦ позволяет решить две основные задачи: выделение из отходов полезных радионуклидов, которые могут быть или рециклированы в энергетических реакторах для получения дополнительной энергии (U , Pu , Am), или использованы в других областях промышленности, техники, науки (^{237}Np , ^{244}Cm , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , платиновые металлы и др.) (табл. 2);



Р и с. 1. Концепция замкнутого ЯТЦ

Т а б л и ц а 2. Некоторые области возможного использования радионуклидов из отработавшего ядерного топлива

Радионуклид	Область возможного применения
U	В ядерных реакторах как делящийся и воспроизводящий материал
²³⁹ Pu, ²⁴¹ Am	В ядерных реакторах как делящийся материал
²³⁷ Np	Источник получения ²³⁸ Pu
²³⁸ Pu	Изготовление энергетических генераторов
²⁴⁴ Cm	Изготовление источников нейтронов
⁹⁰ Sr	Изготовление энергетических генераторов, источников света, генераторов ⁹⁰ Sr/ ⁹⁰ Y для медицинских целей
¹³⁷ Cs	Изготовление мощных источников γ-излучения, в том числе заменяющих источники из ⁶⁰ Co (для сельского хозяйства, пищевой промышленности, медицины, обезвреживания коммунальных отходов и др.).
⁹⁹ Tc	Покрытие подводной части кораблей для защиты от отложений и обрастаний
Ru	Электроника, катализаторы, электрохимия, электрические контакты, сплавы и др.
Rh	Катализаторы в автомобильной и химической промышленности, сплавы, изготовление термопар и др.
Pd	Электроника, медицина (замена золота), сплавы и др.

внедрение технологии, обеспечивающей безопасную изоляцию от биосферы неиспользуемых радионуклидов и/или уничтожение особо опасных долгоживущих путем их трансмутации в облучательных установках для получения короткоживущих или стабильных нуклидов.

Мировая практика переработки отработавшего топлива предусматривает выделение из него и очистку только урана и плутония с направлением основной массы радионуклидов в высокоактивные отходы. Однако принятый способ обращения с ними — остекловывание, контролируемое долговременное хранение и последующее захоронение не удовлетворяет современным представлениям о безопасности, особенно если учитывать принцип эквивалентности радиационной нагрузки от размещенных в геологических формациях радионуклидов с радиационной нагрузкой от природного урана, выгоревшего в реакторе с образованием соответствующего количества радионуклидов. Удовлетворить этому принципу могут лишь отходы, образующиеся после глубокого фракционирования и извлечения из них основных дозообразующих радионуклидов. Радикальным способом решения проблемы обращения с долгоживущими радионуклидами является их трансмутация. Таким образом, селективное извлечение (фракционирование) долгоживущих радионуклидов, содержащихся в отработавшем топливе, является необходимым условием организации безопасного обращения с радиоактивными отходами. Кроме того, следует иметь в виду, что при остекловывании неразделенных высокоактивных отходов в процесс вовлекаются большие объемы балластного материала, что увеличивает объем остеклованных и соответственно повышает стоимость обращения на стадии как варки стекла, так и контролируемого хранения и захоронения. Некоторые макрокомпоненты могут оказывать вредное влияние на варку стекла и снижать качество полученных стеклоблоков. В процессах фракционирования балластный материал сбрасывается вместе с радионуклидами, не подлежащими долговременному хранению, и переходит в категорию низкоактивных отходов. Выделенные фракции долгоживущих радионуклидов концентрируются в относительно небольших объемах и могут быть иммобилизованы в индивидуальные, специфичные для данной фракции матрицы в целях их утилизации, трансмутации или глубинного захоронения.

В НПО «Радиевый ин-т» им. В.Г. Хлопина исследования ведутся в трех основных направлениях:

разработка и оптимизация технологической схемы переработки отработавшего топлива и высокоактивных отходов для выделения необходимых фракций радионуклидов с заданной степенью чистоты;

поиск особо прочных матриц, которые специфичны для каждой фракции радионуклидов, подлежащих длительному хранению и/или захоронению, и разработка технологии иммобилизации;

изучение геологических массивов, пригодных для создания в них долговременных хранилищ и/или могильников, и определение оптимальных условий безопасного долговременного геологического хранения и/или захоронения иммобилизованных фракций радионуклидов.

Фракционирование высокоактивных отходов. В НПО Радиевый ин-т им. В.Г.Хлопина в течение последних 20 лет проводятся систематические исследования возможностей фракционирования применительно к технологии действующего радиохимического завода РТ-1 (ПО «Маяк») и создающегося завода РТ-2 (Горно-химический комбинат). Ключевой операцией разделении долгоживущих радионуклидов высокоактивных отходов является извлечение цезия, стронция, технеция, редкоземельных и трансплутониевых элементов, а также остатков урана, нептуния и плутония после пурекс-процесса. Как известно, в мировой практике для выделения этих компонентов разрабатываются различные процессы: осаждение, сорбция, экстракция, хроматография и др. Однако до промышленного масштаба в настоящее время доведена лишь экстракционная технология с использованием в качестве экстрагента хлорированного дикарболлида кобальта в полярном разбавителе. Основы экстракционного процесса были разработаны совместно специалистами Радиевого института и Института ядерных исследований (Чехия), после чего Радиевый ин-т совместно с ПО «Маяк» довел эту разработку до промышленного использования на радиохимическом заводе РТ-1. Хлорированный дикарболлид кобальта обладает

высокой химической стабильностью в кислой среде (до 12 моль/л HNO_3) и радиационной стойкостью. Его раствор в нитробензоле эффективно экстрагирует цезий из кислых водных растворов (3 моль/л HNO_3). Добавка в экстрагент полиэтиленгликоля позволяет экстрагировать стронций, а также трансплутониевые и редкоземельные элементы.

Оригинальной модификацией экстракционного процесса с использованием хлорированного дикарболлида кобальта следует считать разработанный и испытанный псевдомембранный способ, позволяющий в десятки раз повысить степень извлечения трехвалентных элементов. Это достигается путем изменения топологии связей между аппаратами в мембранном варианте по сравнению с линейным, что обеспечивает повышение эффективной емкости экстрагента.

В августе 1996 г. на заводе РТ-1 была введена в эксплуатацию первая в мире промышленная установка УЭ-35 для выделения радионуклидов из высокоактивных отходов. Ее первая очередь предусматривает селективное извлечение цезия и стронция. Установка успешно функционировала в течение трех месяцев, после чего была остановлена ввиду финансовых трудностей. Однако в сентябре 1998 г. она была вновь пущена и работает по сегодняшний день.

За время работы получены концентраты цезия и стронция суммарной активностью более $15 \cdot 10^6$ Ки. Средние показатели по степени извлечения цезия и стронция были на уровне 98,5%. Концентраты цезия и стронция направляли на остекловывание, удельная активность стекловых составов составила ~ 550 Ки/кг. Повышение затрат за счет работы установки фракционирования на 5% привело к снижению себестоимости производства высокоактивного стекла на 60%.

Глубокое выделение актиноидов и редкоземельных элементов может быть достигнуто применением монодентатных нейтральных и фосфорорганических экстрагентов. Наибольшей экстракционной способностью среди них обладают фосфиноксиды, из которых ввиду повышенной растворимости в органических растворителях был выбран фосфиноксид разнорадикальный, а именно изоамилдиалкилфосфиноксид, в котором алкильные радикалы имеют нормальное строение с числом атомов углерода от 7 до 9. Этот экстрагент был опробован на реальных высокоактивных отходах и показал высокую степень извлечения актиноидов до 99%. На его основе синтезированы твердые экстрагенты, в которых макропористая полистиролдивинилбензольная матрица содержит до 50% фосфиноксида. Сорбент проверен в промышленном масштабе на колонне объемом 60 л. Была подтверждена высокая степень извлечения актиноидов и их концентрирования в десорбате.

Особенностью реагентов на основе разнорадикальных фосфиноксидов является возможность извлечения наряду с актиноидами технеция. Степень его извлечения из реальных отходов составила около 70%.

В современной мировой практике для выделения актиноидов из высокоактивных отходов исследуются возможности трукс-процесса, основанного на использовании бифункциональных нейтральных фосфорорганических соединений. Оригинальная модификация этого процесса разработана Радиевым институтом совместно с Институтом геохимии и аналитической химии. В классическом трукс-процессе фенилоктил-изобутил-карбамоилфосфиноксид разбавляется додеканом с добавкой ТБФ в качестве солюбилизатора. В предлагаемой модификации экстрагентом является дифенил-дибутил-карбамоилфосфиноксид в полярном фторорганическом разбавителе (фторополе). Исключение из состава экстрагента ТБФ исключает и необходимость операции отмывки экстрагента от продуктов его разрушения.

Модифицированный трукс-процесс проверен на модельных отходах кислотностью 5 моль/л на установке с центробежными экстракторами. Для реэкстракции Fe(II), Zr(IV) и Mo(VI) использовали ацетгидроксамовую кислоту, для трансплутониевых и редкоземельных элементов — 0,01 моль/л HNO_3 . Было извлечено более 99,5% трансплутониевых и редкоземельных элементов при коэффициенте концентрирования 4—6 и коэффициентах очистки от Fe, Zr и Mo более 50. Эти результаты подтверждены на реальных отходах в статических условиях.

На основе предыдущих процессов разработан процесс с универсальным экстрагентом (унекс-процесс). С помощью экстрагента, представляющего собой смесь хлорированного дикарболлида кобальта, дифенил-дибутил-карбамоилфосфиноксида с добавкой полиэтиленгликоля в специальном разбавителе, извлекается из кислотных отходов одновременно Cs, Sr, U, Np, Pu, Am, Cm и редкоземельные элементы. Проведенные в 1998 г. на каскаде центробежных экстракторов в Айдахо (США) испытания показали степень извлечения Cs 99,95%, Sr 99,985% и суммарную α -активность 95,2%.

В настоящее время изучается взрыво- и пожаробезопасность процесса, токсичность и коррозионная агрессивность реагентов. До сих пор эти вопросы были детально проработаны только для хлорированного дикарболлида кобальта.

Подготовка к пуску на ПО "Маяк" второй очереди установки УЭ-35 предполагает глубокое выделение Cs, Sr, U, Np, Am, Cm, редкоземельных элементов и Tc. Для создания технологии изучают три возможных экстракционных процесса. Первый предусматривает выделение актиноидов, редкоземельных элементов и технеция с помощью разнорадикальных фосфиноксидов из рафинатов после извлечения цезия и стронция экстракцией хлорированного дикарболлида кобальта. Этот процесс успешно испытан совместно специалистами Радиевого института и Национальной лаборатории в Айдахо на стенде центробежных экстракторов на реальных кислотных высокоактивных отходах.

Второй возможный вариант для выделения актиноидов и редкоземельных элементов из высокоактивных отходов на ПО "Маяк" основан на российском труэкс-процессе. Результаты динамических испытаний на имитаторах были подтверждены статическими тестами на реальных рафинатах после выделения цезия и стронция на установке УЭ-35. За четыре контакта в этих опытах была достигнута степень извлечения α -излучающих нуклидов 99,97%.

Третий альтернативный вариант второй очереди установки УЭ-35 на ПО "Маяк" предусматривает использование единого технологического процесса для выделения цезия, стронция, актиноидов и редкоземельных элементов. Основы этого процесса разработаны совместно специалистами Радиевого института и Национальной лаборатории в Айдахо и доведены до уровня динамических испытаний в многоступенчатых центробежных экстракторах на реальных кислотных отходах.

Реализация технологии глубокого фракционирования высокоактивных отходов на ПО "Маяк" позволит полностью перевести жидкие отходы военного производства в стеклоподобные материалы для последующего безопасного контролируемого хранения.

Уровень разработки разделительной технологии в России, достигший промышленного внедрения, вызвал интерес к сотрудничеству в этой области специалистов США. Известно, что ядерный оборонный комплекс США, как и российский, накопил огромное количество высокоактивных отходов, которые хранятся в емкостях в ожидании переработки. Конечной целью переработки является включение содержащихся в них радионуклидов в твердые матрицы для временного контролируемого хранения и последующего захоронения.

Поскольку отходы оборонного комплекса США, как и российские, имеют сложный состав и содержат большое количество солей, для минимизации количества отвержденных необходимо выделение радионуклидов в малые объемы. Это, в свою очередь, требует разработки разделительной технологии применительно к конкретным отходам того или иного ядерного предприятия. В рамках сотрудничества между Минатомом РФ и Министерством энергетики США НПО "Радиевый ин-т" с 1993 г. разрабатывает эффективные экстракционные процессы для выделения радионуклидов из отходов оборонного комплекса Ханфорда и Айдахо. Разрабатываемая технология основана на использовании в качестве экстрагентов ЭДК, разнорадикальных фосфиноксидов, КМФО в специфических разбавителях. Разработки начинались с лабораторных исследований и в настоящее время достигли уровня динамических испытаний на установках в США с использованием реальных отходов.

Конкретными объектами для разделения были щелочные отходы Ханфорда, кислотные жидкие высокоактивные отходы и кальцинаты Айдахо. В результате серии исследований разработаны и испытаны следующие процессы:

селективное выделение цезия с помощью хлорированного дикарболлида кобальта из кислотных отходов Айдахо;

выделение цезия и стронция с помощью хлорированного дикарболлида кобальта из щелочных декантатов отходов Ханфорда;

двухэкстрагентное выделение цезия и стронция с помощью хлорированного дикарболлида кобальта, актиноидов и технеция с помощью разнорадикальных фосфиноксидов для переработки растворенных твердых отходов Ханфорда и жидких кислотных Айдахо;

одноэкстрагентное выделение цезия, стронция и актиноидов экстрагентом на основе хлорированного дикарболлида кобальта и КМФО из кислотных отходов и растворов кальциноватов Айдахо.

В качестве экстракционного оборудования в испытаниях использовали смесители-отстойники с пульсационным перемешиванием и транспортированием фаз, а также центробежные аппараты производства США (Аргоннская национальная лаборатория) и России (московский Институт монтажной технологии). Результаты испытаний российской технологии показали, что достигнутая степень извлечения всех долгоживущих радионуклидов из отходов оборонного комплекса США позволяет перевести основную массу этих отходов в категорию низкоактивных класса А. Долгоживущие радионуклиды при этом концентрируются в малых объемах резкстрактов, обеспечивающих минимальное количество твердых отходов после процесса отверждения.

Следующим этапом разработки разделительной технологии будет создание опытно-промышленных установок для испытаний разработанных схем в опытно-промышленном масштабе.

Дальнейшие усилия российских исследователей направлены на повышение степени извлечения долгоживущих радионуклидов, а также изучение безопасности технологии и оборудования.

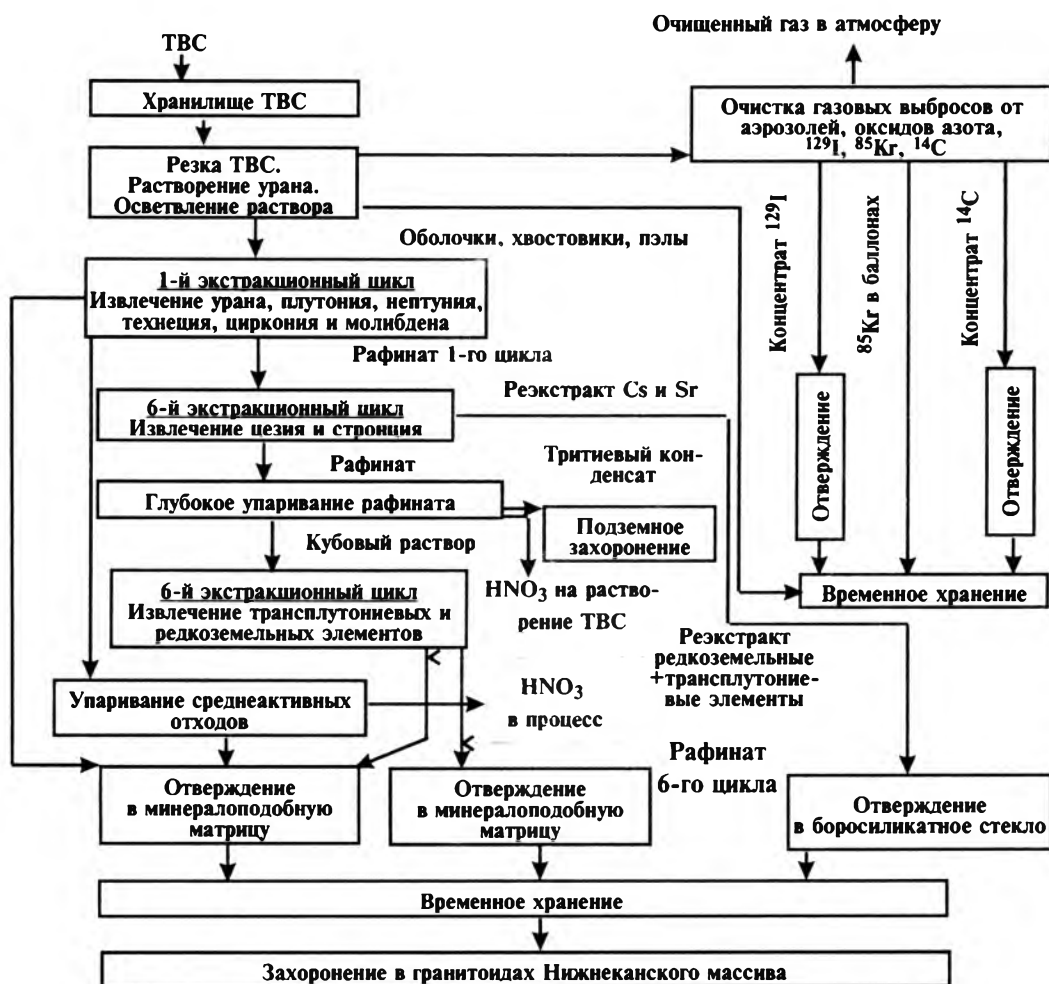
Таким образом, решение проблемы обращения с отходами в рамках концепции замкнутого ЯТЦ позволяет одновременно использовать технологию ядерной энергетики для решения еще одной сложной задачи — переработки большого количества высокоактивных отходов, оставшихся в ядерных странах в наследство от военного производства.

Фракционирование в пурекс-процессе переработки отработавшего топлива. Фракционирование высокоактивных отходов приводит к необходимости создания дополнительных технологических цепочек, что повышает стоимость и усложняет общую технологическую схему переработки отходов. Для сокращения числа операций в общем процессе переработки целесообразно максимально совместить операции выделения урана и плутония с фракционированием продуктов деления и актиноидов — Np, Am, Cm. Высокая селективность извлечения и разделения должна предотвращать распределение локализуемых элементов между большим числом потоков технологической схемы. В головных операциях необходимо обеспечить удаление из исходного раствора, улавливание и отверждение ^{129}I и ^{14}C с получением форм, пригодных для захоронения. В частности, это может быть иодид меди (I) или более устойчивый в химическом отношении аналог природных минералов материал, содержащий графит, аморфный углерод и несколько процентов по массе фуллеренов. По-видимому, окажется необходимым улавливать и хранить радиоактивные благородные газы, а именно ^{85}Kr . Все эти решения разработаны для включения в проект завода РТ-2.

В соответствии с общей концепцией завода РТ-2 по глубокому фракционированию, при котором продукты деления локализуются в зависимости от их токсичности, периода полураспада и степени воздействия на среду обитания человека, экстракционный цикл претерпел значительные изменения по сравнению с классической схемой пурекс-процесса. В ходе испытаний и анализа результатов было показано, что наиболее эффективным для глубокого фракционирования оказывается количественное извлечение в первом экстракционном цикле всех экстрагируемых элементов — U, Pu, Np, Tc, Zr, Mo и последующее их разделение на отдельные потоки. При этом достигается снижение удельного объема высокоактивного рафината за счет образования двух дополнительных потоков среднеактивных отходов, один из которых содержит цирконий, второй — нептуний и технеций. Выведение циркония составляет более 95%, нептуния — до 99%.

В соответствии с этими исследованиями разработан модифицированный пурекс-процесс для завода РТ-2, предусматривающий проведение следующих операций в первом цикле с использованием экстрагента на основе ТБФ в легком углеводородном разбавителе (рис. 2): совместная экстракция U, Pu, Np, Zr, Tc и Mo с промывкой экстракта; реэкстракция циркония; доизвлечение урана и плутония из реэкстракта циркония; реэкстракция нептуния и плутония; доизвлечение урана и технеция из реэкстракта нептуния и плутония; разделение нептуния и плутония; промывка экстракта нептуния от плутония; реэкстракция технеция и нептуния; отмывка урана из реэкстракта технеция и нептуния; реэкстракция урана; карбонатно-щелочная и кислотная регенерация оборотного экстрагента.

Среднеактивными отходами первого экстракционного цикла являются реэкстракт циркония и совместный реэкстракт Np и Tc, которые вместе с рафинатами циклов аффинажа U и Pu подвергаются концентрированию в узле упаривания среднеактивных



Р и с. 2. Принципиальная технологическая схема фракционирования для завода РТ-2

отходов и присоединяются к фракции трансплутониевые +редкоземельные элементы для совместного отверждения в составе кристаллических и минералоподобных матриц. Необходимо отметить, что наличие циркония в составе раствора, подлежащего отверждению, способствует использованию в качестве вмещающего матричного материала композиции на основе кубического ZrO_2 или титаната циркония. Эти исследования проводились также в Радиовом институте и показали, что указанные термодинамически устойчивые кристаллические материалы имеют по сравнению со стеклами большую емкость, лучшие механические и термофизические характеристики, а также меньшую скорость выщелачивания.

Отверждение радиоактивных отходов. Захоронение в геологические формации будет необходимо при любом способе обращения с высокоактивными отходами, даже в случае успешной реализации программы трансмутации. Поэтому одним из направлений работ является разработка способов иммобилизации подлежащих захоронению фракций отходов с выбором матриц, специфичных для каждой фракции и надежно удерживающих радионуклиды данной фракции в предполагаемых условиях их захоронения. Так, для фракции Cs—Sr в проекте завода РТ-2 предусмотрено использование боросиликатного стекла. Эта фракция содержит достаточно чистый концентрат цезия и стронция, не требует сверхдлительного хранения (см. табл. 1), но обладает высоким тепловыделением (~85% тепла образуется за счет их распада после 10 лет выдержки топлива). Проведены исследования, направленные на оптимизацию состава боросиликатного стекла с учетом ограничений тепловыделения. В соответствии с диаграммой плавкости многокомпонентной системы была установлена область состава стекол, устойчивых к выщелачиванию и кристаллизации и содержащих 10—15% по массе продуктов деления. При включении в боросиликатное стекло неразделенных отходов содержание оксидов цезия и стронция не превышает 2% по массе.

Наиболее прочные матрицы, которые могут удерживать радионуклиды в течение геологически значимых периодов времени, выбираются на основе принципа геологического подобия. В качестве прототипа матрицы подбираются геологически устойчивые минералы, обладающие селективным сродством и высокой емкостью удерживания иммобилизуемых радионуклидов.

В противоположность остекловыванию, в котором элементы гомогенно распределяются по всему объему, в кристаллических матрицах они занимают определенные места. Это дает возможность подбирать для каждого включаемого элемента изоморфные или квазиизоморфные кристаллические решетки, которые будут обладать повышенной прочностью удерживания в сравнении с метастабильным стеклом. Начиная с 1990 г. изучали разные виды кристаллических матриц, пригодных для иммобилизации трансурановых элементов и других долгоживущих радионуклидов. Теоретические и экспериментальные исследования показали, что одной из наиболее устойчивых матриц для иммобилизации актиноидов является циркон $(Zr,An)SiO_4$, где $An = U, Pu, Np, Am, Cm$. В то же время было показано, что аморфный гидросиликат циркония, который является сырьем для синтеза циркона, также является химически прочным материалом, имеющим устойчивый природный аналог (гель-циркон), и стабилизация отходов актиноидов возможна уже на стадии подготовки исходного сырья. Другой прочной актиноидсодержащей матрицей является диоксид циркония $(Zr,An)_2O_2$.

Перспективным типом матрицы является кристаллическая керамика на основе гранита и перовскита $(Y,Gd,Ca,Fe,...)_3(Al,Ga,Fe,...)_5O_{12}$ и $(Y,Gd,Ca,...)(Al,Ga,Fe,...)O_3$, которая может быть получена плавлением. Эта керамика пригодна для иммобилизации отходов актиноидов сложного химического состава, так как комбинация гранита с перовскитом обеспечивает возможность включения в их решетки почти всех разновалентных актиноидов и большинства нерадиоактивных элементов без образования самостоятельных фаз актиноидов. Такими отходами, в частности, являются отходы военного производства, содержащие оружейный плутоний.

Предлагаемые кристаллические матрицы могут быть использованы и как форма иммобилизации отходов для их последующего долговременного хранения и/или захоронения, и как керамическое топливо для трансмутации актиноидов.

Разработан процесс иммобилизации фракции трансплутониевые+ редкоземельные элементы в керамику типа монацитов на заводе РТ-1. Предлагается после экстракционного выделения цезия и стронция на установке УЭ-35 осаждать оксалаты этих элементов. В раствор осадка оксалатов добавляют монофосфорную кислоту и после кальцинации полученной смеси монофосфаты трансплутониевых и редкоземельных элементов компактируют прессованием. Плотность керамических образцов достигает 98% теоретической плотности кристаллического монофосфата лантана, химическая устойчивость соответствует данным для монацитов.

Разрабатывается принципиально новый процесс отверждения фракции в однофазной проводящей керамике типа перовскита $M^{III}CrO_3$, где $M^{III} = Am + Cm +$ редкоземельные элементы, а также в керамику, легированную оксидом двухвалентного металла $M_{1-x}^{II}M_x^{III}CrO_3$, для повышения ее проводимости. После смешивания растворов отверждаемой рассматриваемой фракции с растворами нитрата хрома и, возможно, нитрата легирующего металла M^{II} проводится кальцинация осадка в атмосфере воздуха и компактирование изостатическим прессованием в завариваемых контейнерах из нержавеющей стали. Полученная керамика обладает высокой плотностью (~ 7 г/см³) и емкостью по оксидам ($\sim 68\%$ по массе.). Скорость выщелачивания катионов в дистиллированную воду при 90 °С составляет $10^{-7} - 10^{-8}$ г·см²·сут⁻¹.

Изучено влияние степени легирования керамики на электропроводность. Установлено, что эффективным легирующим агентом является оксид меди (II). Другой принципиально новый способ иммобилизации отходов, разрабатываемый совместно с КНЦ СО РАН и Горно-химическим комбинатом, заключается в локализации и концентрировании радионуклидов и сопутствующих минеральных солей в матрице керамического компаунда путем многократной пропитки керамического блока жидкими отходами. В результате последующего периодического или непрерывного удаления влаги из объема блока методом испарения происходит концентрирование и отверждение минеральной составляющей жидких отходов. На следующей стадии блоки подвергают термической обработке, в процессе которой происходит разложение солей до труднорастворимых оксидов и локализация радиоактивных компонентов в матрице. Предварительные эксперименты показали, что скорость выщелачивания плутония водой снижается в несколько раз после разложения солей с образованием оксидов и полностью блокируется после компактирования керамического блока.

Разрабатываемая технология кондиционирования отходов имеет преимущества: операции насыщения и сушки проводятся при комнатной температуре; емкость насыщения радионуклидами в 1,5–2 раза выше, чем у силикагеля и пеноко-рунда;

для изготовления микросфер используются зольные отходы энергетики, работающий на угле.

Кроме того, отличительной характеристикой разрабатываемой технологии отверждения жидких отходов с использованием пористых керамических блоков на основе стеклокристаллических микросфер является возможность многобарьерного принципа защиты на уровне самой матрицы. Широкие возможности изменения состава и свойств нового типа блоков на основе стеклокристаллических микросфер позволяют использовать их также в процессах локализации, транспортирования, дезактивации и захоронения особо опасных жидких отходов и ультрадисперсных пульп.

Выбор участка для геологического захоронения высокоактивных отходов. С конца 1992 г. НПО «Радиевый ин-т» является головным исполнителем и координатором научно-исследовательских и проектно-изыскательских работ по поиску и выбору площадки для создания могильника отвержденных отходов.

В результате проведения организациями Минатома, Миннауки, РАН, а также Красноярского края комплексных работ в южной части Енисейского края были найдены и предварительно изучены два участка, потенциально пригодные для создания могильника. Участки получили название «Итатский» и «Каменный», они находятся на расстоянии 25–30 км от Горно-химического комбината в северной части Нижнеканского гранитоидного массива (рис. 3, 4). В пределах данных участков было показано наличие достаточно монолитных бло-

ков, сложенных гранитоидными породами, с удовлетворительным соответствием их свойств требованиям использования в качестве среды захоронения. Методологический подход к выбору площадок был основан на критериях, разработанных МАГАТЭ, с учетом концепции безопасной изоляции отходов в геологических формациях, социально-экономических и других критериев. Методы изучения, интерпретации и анализа данных выбирались с учетом конкретной задачи и экономической эффективности работ (электроразведочные работы, линеаментный, геоморфологический анализ, геологическое моделирование по данным гравиразведочных работ и др.).

Нижнеканский массив является одним из крупнейших гранитоидных массивов Средней Сибири. Среди гранитоидов, которыми он сложен, наибольшее распространение имеют биотитовые граниты и гранодиориты. Наиболее вероятный их возраст 910 ± 60 млн лет. Монолитный массив имеет мощность несколько километров, находится в состоянии долговременной тектонической стабильности (тектоническая активность завершена сотни миллионов лет назад), максимально возможная интенсивность землетрясения в районе исследований составляет 5 баллов. Размеры отдельных сравнительно однородных блоков гранитоидов (3–4 км) позволяют разместить все поверхностные и подземные сооружения могильника на одной рабочей площадке. Близость Горно-химического комбината способствует решению транспортно-коммуникационных проблем. В изучаемом районе отсутствует индустриально-экономическая деятельность, заселенность крайне низка.



Р и с. 3. Местоположение наиболее перспективных участков “Итатский” и “Каменный” (масштаб 1:200 000)

Условные обозначения:

- наиболее перспективные площадки (XII – “Северная” и XV – “Южная”), выделенные на основе анализа геофизических данных и оценки тектонического строения в масштабе 1:200 000.
- наиболее перспективные участки “Итатский” и “Каменный”, выделенные на основе анализа тектонического строения в масштабе 1:50 000 и результатов рекогносцировочных работ



Р и с. 4. Положение глобальных геологических структур по отношению к Горно-химическому комбинату и заводу РТ-2

воднения. Первостепенной задачей дальнейшего изучения массива является бурение глубоких скважин (2—3 км).

Важным обстоятельством является присутствие в гранитоидах таких минералов, как циркон, монацит, различные оксиды железа, сульфиды и др. С одной стороны, эти минералы усиливают горные породы, вмещающие могильник, с другой, позволяют захоранивать актиноиды в матрицах, геохимически совместимых с вмещающими породами. Экспериментально было показано, что Рн, Аи и Ст способны сорбироваться на цирконе и монаците, низкая десорбция позволяет предполагать механизм изоморфного замещения. Сорбционное удерживание существенно ограничивает дальность миграции радионуклидов.

Результаты геолого-геофизических исследований массива послужили основой для проектирования подземной исследовательской лаборатории. В настоящее время рассматриваются два варианта: на основе системы скважин, пройденных с поверхности, и на основе комбинаций штольни и скважин. Выбор варианта будет зависеть от научно-технических, организационных и экономических факторов.

Выводы. 1. Разработана технология глубокого фракционирования при переработке отходов, которая может быть реализована в промышленном масштабе и обеспечивает селективное выделение любых элементов или группы элементов. Работы продолжаются в направлении повышения безопасности, эффективности и селективности процессов. 2. Разработана технология отверждения фракций долгоживущих радионуклидов с их включением в специфичные матрицы, обеспечивающие возможность безопасного геологического захоронения. Работы продолжаются в направлении поиска специфичных матриц, удовлетворяющих требованиям их устойчивости. 3. Показана принципиальная возможность создания безопасного глубинного могильника для захоронения особо опасных долгоживущих радионуклидов в гранитоидах Нижнеканского массива. Продолжаются работы по изучению глубинного строения массива и потенциальных каналов миграции захораниваемых радионуклидов. Получены данные для обоснования проектирования подземной исследовательской лаборатории.

РАДИАЦИОННАЯ ЭКВИВАЛЕНТНОСТЬ ПРИ ОБРАЩЕНИИ С ВЫСОКОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ ЯТЦ

Ганев И.Х. (НИКИЭТ)

В качестве необходимых условий развития перспективной крупномасштабной ядерной энергетики можно назвать естественную, т.е. основанную на законах природы безопасность ядерных реакторов и естественную безопасность ЯТЦ [1]. Большое внимание со стороны общества привлекает безопасное обращение с радиоактивными отходами и, в первую очередь, с долгоживущими высокоактивными компонентами. Можно предположить, что естественная безопасность будет достигнута, если эквивалентная по вредному воздействию на человека активность долгоживущих компонентов отходов при их окончательном захоронении не превысит активности потребленного природного урана ($U_{пр}$) [2]. Ядерная энергетика станет в определенном смысле безотходной, так как в недра направят активность, равную активности взятого из недр урана.

Доля элементов, поступающая в отходы при переработке топлива [2]. Основное влияние на ЯТЦ оказывает степень извлечения элемента при переработке топлива. Для вариантов по доле элементов, поступающей в отходы, может быть рассчитана радиационно-миграционная эквивалентная активность отходов актиноидов ($A_{р/м-экв}$, Ки/т продуктов деления), образующихся в равновесном состоянии замкнутого топливного цикла естественно-безопасного реактора, например, БРЕСТ-300 [3]: