

УДК 546.718:621.039.7:539.174

ПОВЫШЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ ТРАНСМУТАЦИИ ^{129}I

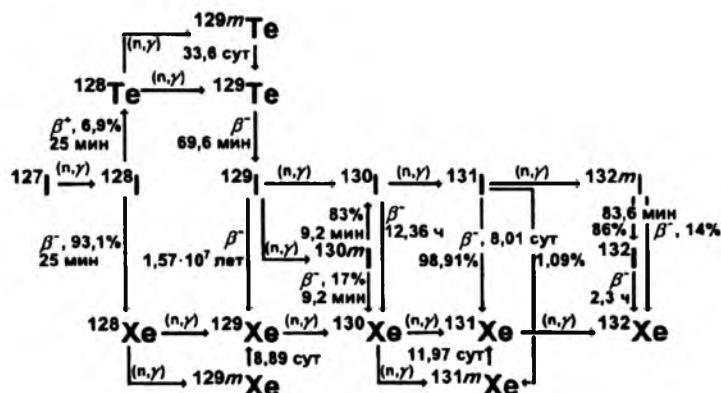
Козарь А.А. (Институт физической химии РАН)

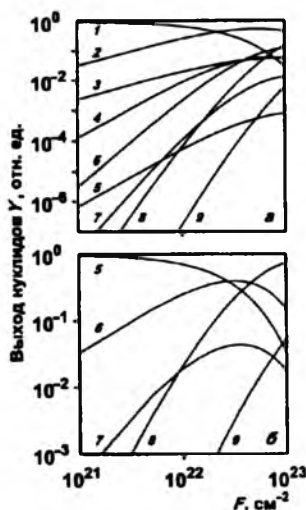
Ежегодно в мире нарабатывается около 2 т одного из наиболее опасных для окружающей среды долгоживущего ^{129}I с периодом полураспада $1,57 \cdot 10^7$ лет. Его суммарное накопление в выгруженном топливе к 2010 г. оценивается на уровне ~ 60 т [1, 2]. Выход ^{129}I при делении примерно равен 0,9%, содержание в отработавшем топливе водо-водяных реакторов с обычной глубиной выгорания 30—40 ГВт·сут/т составляет 210—270 г/т [3]. Длительная надежная изоляция ^{129}I в составе отвержденных радиоактивных отходов проблематична вследствие миграционных характеристик иода в биосфере, обусловленных повышенной летучестью, сложным химическим поведением и многообразием растворимых в воде форм, а также низкими коэффициентами сорбции по отношению к наиболее распространенным минералам и почвам [4—6]. По этой причине в настоящее время ^{129}I рассматривается в качестве одного из основных кандидатов на уничтожение путем трансмутации при облучении нейтронами теплового и резонансного спектра.

Необходимо, однако, отметить, что в отличие от своего главного конкурента на очередность в реализации трансмутационного обезвреживания осколочного ^{99}Tc , дающего при сжигании ценный платиноид рутений [7, 8], ^{129}I не имеет столь существенной коммерческой мотивации для уничтожения. Кроме того, степень изученности особенностей трансмутационного процесса для этого нуклида пока заметно ниже уровня научных разработок для ^{99}Tc , а современные экспериментальные достижения в сжигании ^{129}I не превышают выгорания 6% [9], в то время как ^{99}Tc — до 30% [10]. Иод является одним из незаменимых биогенных элементов, его соединения играют важную роль в процессах обмена веществ, содержание в организме человека составляет ~ 25 мг ($4 \cdot 10^{-5}\%$) [11], что может считаться дополнительным аргументом в пользу трансмутации ^{129}I .

Схема трансмутации ^{129}I . В отсутствие изотопного разделения иода после распада его короткоживущих изотопов в мишени, кроме ^{129}I , будет также присутствовать побочный стартовый нуклид стабильный ^{127}I , относительное содержание которого колеблется в диапазоне 12—25% в зависимости от предистории отработавшего топлива и в основном составляет 15—20% [12, 13]. Схема трансмутации ^{129}I и ^{127}I (рис. 1) для реальных условий облучения может быть существенно упрощена, поскольку для нуклидов, имеющих конкурирующие каналы перехода, вследствие невысоких сечений нейтронного захвата с подавляющей вероятностью реализуется β -распад.

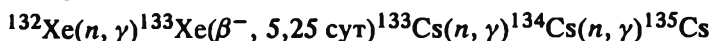
Сечения радиационного захвата тепловых нейтронов ядрами ^{129}I и ^{127}I составляют 27 б и 6,2 б соответственно, системы их резонансов находятся в области от 50 эВ до 4 кэВ и дают резонансные интегралы 36 б и 147 б. Скорость

Рис. 1. Схема трансмутации ^{127}I и ^{129}I



Р и с. 2. Динамика трансмутации ^{127}I (а) и ^{129}I (б) в зависимости от флюенса тепловых нейтронов в спектре жесткостью 0,2: 1 — ^{127}I ; 2 — ^{128}Xe ; 3 — ^{128}Te ; 4 — ^{129}Xe ; 5 — ^{129}I ; 6 — ^{130}Xe ; 7 — ^{131}Xe ; 8 — ^{132}Xe ; 9 — остальные нуклиды (^{133}Xe , $^{133-135}\text{Cs}$ и др.)

сжигания этих изотопов сравнивается при жесткости спектра $\gamma_0 \sim 0,2$ (рис. 2). Следует отметить, что при большом флюенсе нейтронов по цепи



нарабатывается долгоживущий ^{135}Cs (период полураспада $2,3 \cdot 10^6$ лет), который сам стоит в ряду главных кандидатов на уничтожение.

Изменение концентрации ^{127}I в мишени. При жесткости нейтронного спектра $\gamma < \gamma_0$ в процессе неоднократного повторения цикла облучение—переработка (рециклирования) мишени происходит постепенное накопление ^{127}I , и эффективность трансмутации основного стартового нуклида снижается. Вследствие того, что сечения радиационного захвата нейтронами $^{129,127}\text{I}$ меньше их резонансных интегралов $\sigma^{129} < I^{129}$ и $\sigma^{127} < I^{127}$, в объемной мишени иода жесткость спектра убывает в направлении от поверхности к центру, поэтому рост содержания ^{127}I может иметь место и в случае, когда само трансмутационное устройство обладает спектром с $\gamma > \gamma_0$.

Если поступающий на облучение элемент состоит из n изотопов относительной концентрацией c_0^i ($i = 1, \dots, n$) и выгоранием за кампанию q_i , то в отсутствие переходов

между ними содержание m -го изотопа в $(k+1)$ -й загрузке ($k \geq 1$) после рециклирования мишени рассчитывается с помощью рекуррентных соотношений

$$c_1^m = c_0^m; \sum_{i=1}^n c_0^i = \sum_{i=1}^n c_k^i = 1; c_{k+1}^m = c_k^m(1 - q_m) + c_1^m \sum_{i=1}^n c_k^i q_i. \quad (1)$$

В случае трансмутации иодной мишени $n = 2$, $c_0^1 = c_0^{129}$, $c_0^2 = c_0^{127}$, $q_1 = q_{129}$, $q_2 = q_{127}$, и концентрация ^{127}I в ней изменяется согласно выражениям

$$c_1^{127} = c_0^{127}; c_{k+1}^{127} = c_0^{127} \left(q_{129} + c_k^{127} (q_{127} - q_{129}) \right) + c_k^{127} (1 - q_{127}).$$

При исследовании поведения функцию c_k^{127} удобнее выражать через начальную концентрацию ^{127}I в мишени, хотя это и приводит к громоздкой формуле

$$c_k^{127} = c_0^{127} + c_0^{127} (1 - c_0^{127}) \sum_{i=1}^{k-1} (-1)^i C_i^k \left[(1 - c_0^{127})^{i-1} (q_{127})^i - (c_0^{127})^{i-1} (q_{129})^i \right] + \\ + \sum_{\substack{i,j=1, \\ i+j \leq k}}^{k-2} (-1)^{i+j} C_{i+j}^k (c_0^{127} C_i^{i+j+1} - C_i^{i+j}) (1 - c_0^{127})^i (c_0^{127})^j (q_{127})^i (q_{129})^j, \quad (2)$$

$$\text{где } C_i^k = \frac{1}{i!} \prod_{m=1}^i (k - m).$$

Полагая при $k \rightarrow \infty$ в соотношении (1) $c_{k+1}^m = c_k^m$, можно найти равновесную концентрацию m -го изотопа в мишени по формуле

$$c_{eq}^m = \frac{c_1^m}{q_m(1 - c_1^m)} \sum_{i=1, i \neq m}^n q_i c_{eq}^i, \quad (3)$$

где c_{eq}^i — равновесная концентрация i -го изотопа. Из уравнения (3) получим

$$c_{eq}^{127} = c_0^{127} q_{129} / (q_{127} - c_0^{127}(q_{127} - q_{129})). \quad (4)$$

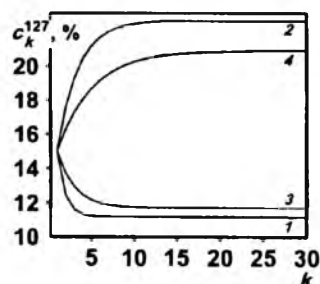
Как следует из выражения (2), вклад в c_k^{127} слагаемых, включающих высокую степень выгорания q_{129} и q_{127} , пренебрежимо мал, поэтому фактически содержание ^{127}I становится постоянным уже после нескольких циклов облучения, причем тем быстрее, чем выше q_{129} (рис. 3). Согласно соотношению (4) при сохранении вида знака неравенства между q_{129} и q_{127} равновесная концентрация ^{127}I слабо зависит от выгорания ^{129}I , в особенности в области $q_{129} < q_{127}$, и в этом случае ее колебания при изменении параметров кампании можно не учитывать. Повышение доли резонансных нейтронов в спектре позволяет сократить необходимую для регенерации мишеней радиохимическую мощность примерно на 5–10%.

Тем не менее стремление к увеличению жесткости спектра для снижения концентрации ^{127}I в иодной мишени за счет $q_{129} < q_{127}$ (см. рис. 3) ограничивается при высоком выгорании накоплением ^{131}Xe и ^{129}Xe (см. рис. 2), резонансные интегралы которых равны 900 и 250 б соответственно. Хотя захват нейтронов этой части спектра указанными нуклидами не оказывает существенного влияния на скорость трансмутации ^{129}I вследствие слабого перекрытия их резонансных пиков, резко возрастают общие затраты нейтронов, ценность которых в случае масштабной трансмутации радиоактивных отходов заметно увеличивается. По-видимому, одним из подходящих для трансмутации ^{129}I устройств можно считать реактор со слаборезонансным спектром жесткостью $\gamma \sim 0,5$, что примерно соответствует верхней границе этого параметра в энергетических реакторах типа ВВЭР-400, -1000 [14]. Рассматриваются возможности сжигания ^{129}I в перепрофилированных быстрых реакторах после формирования нейтронного спектра с помощью различных замедлителей [13, 15, 16].

Затраты нейтронов на трансмутацию. Ксеноновое отравление иодной мишени является лимитирующим фактором для достижения высокого выгорания ^{129}I . Выбор предельного выгорания может основываться на оценке соотношения между расходом нейтронов на полезную реакцию $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$ и затратами на реакции захвата остальными ядрами мишени только в тепловой части спектра, где влияние нейтронных потерь на скорость трансмутации ^{129}I является определяющим:

$$\delta_I = \frac{\sum_i \sigma_i^9 c_i^9 + \sum_i \sigma_i^7 c_i^7 + \sigma^{127} c^{127}}{\sigma^{129} c^{129}}.$$

Здесь σ_i^9, σ_i^7 — сечения захвата тепловых нейтронов ядрами продуктов трансмутации ^{129}I и ^{127}I i -го вида соответственно; $c^{129}, c^{127}, c_i^9, c_i^7$ — относительная концентрация ^{129}I и ^{127}I и их дочерних нуклидов i -го вида соответственно.



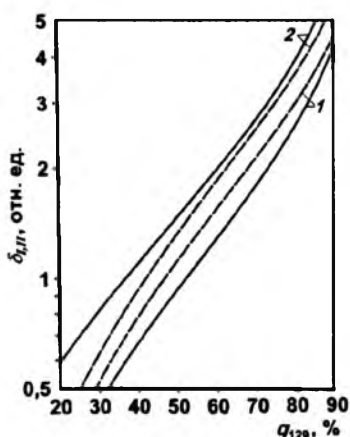
Р и с. 3. Зависимость концентрации ^{127}I в иодных мишенях от цикла облучения при его начальном содержании 15% для кампании с выгоранием ^{129}I и ^{127}I 50 и 70% (1), 50 и 30% (2), 30 и 40% (3), 30 и 20% (4) соответственно

Согласно принятой терминологии все реакции в цепи побочного стартового нуклида относятся к паразитным [14]. Однако в процессе облучения иодной мишени происходит не только выжигание, но и наработка ^{129}I из ^{127}I . Поскольку избежать этого вредного процесса невозможно, реакции захвата нейтронов дочерним ^{129}I следует считать условно полезными, равноправными с нейтронными захватами на ядрах стартового ^{129}I . Поэтому в приведенном соотношении c^{129} является полной концентрацией ^{129}I в мишени, включая ^{129}I , образующийся в цепи ^{127}I , а соответствующее дочернему ^{129}I слагаемое в числителе отсутствует. Это замечание носит, скорее, методологический характер, так как образование ^{129}I из ^{127}I незначительно и не влияет на результаты расчетов.

Если исходить из требований экономии нейтронов, необходимо учесть их резонансное поглощение по формуле

$$\delta_{\Pi} = \frac{\sum_i (\sigma_i^9 + \gamma I_i^9) c_i^9 + \sum_i (\sigma_i^7 + \gamma I_i^7) c_i^7 + (\sigma^{127} + \gamma I^{127}) c^{127}}{(\sigma^{129} + \gamma I^{129}) c^{129}},$$

где I_i^9, I_i^7 — резонансные интегралы членов трансмутационных цепей ^{129}I и ^{127}I соответственно.



Р и с. 4. Доля вредных реакций захвата нейтронов в иодной мишени с начальным изотопным составом 85% ^{129}I и 15% ^{127}I в спектре жесткостью 0,05 (---) и 0,5 (—), рассчитанная для критериев δ_I (1) и δ_{Π} (2), в зависимости от выгорания ^{129}I

В случае, когда основную ценность представляют только тепловые нейтроны, при их одинаковых затратах в соответствии с поведением критерия δ_I на рис. 4 увеличение жесткости спектра позволяет лишь в малой степени повысить выгорание ^{129}I . Так, выгорание мишени с 15%-ным начальным содержанием ^{127}I , при котором полезное потребление нейтронов сравнивается с их потерями, в случае изменения γ от 0,05 до 0,5 увеличивается с 46% всего только до 52%. Следовательно, в рамках критерия δ_I наработка продуктов трансмутации не влияет ни на скорость сжигания стартового нуклида, ни на экономичность этой операции.

В действительности более обоснованным является требование уменьшения полных нейтронных затрат на уничтожение ^{129}I , оцениваемых по δ_{Π} . В отличие от предыдущего случая расчета критерия δ_I рост жесткости спектра увеличивает относительные потери нейтронов, хотя и не очень заметно. Разное поведение функций $\delta_I(q)$ и $\delta_{\Pi}(q)$ отражается в различии знаков их частных производных: $\partial\delta_I/\partial\gamma < 0$, тогда как $\partial\delta_{\Pi}/\partial\gamma > 0$. Поскольку $\partial(\delta_{\Pi} - \delta_I)/\partial\gamma > 0$, то, как видно

из рис. 4, с ростом γ увеличивается и степень различия между потерями тепловых нейтронов и полными потерями. Таким образом, повышение γ для ускорения сжигания ^{129}I приводит к значительному росту поглощения нейтронов резонансного спектра продуктами трансмутации, что может служить основанием для остановки облучения в области низкого выгорания мишени: затраты нейтронов на неизбежные и паразитные реакции составят половину полезного потребления уже при выгорании 15—25% и сравняются с ним при выгорании 35—40%.

Минимальное допустимое выгорание ^{129}I . Нижняя граница области допустимого выгорания сжигаемого нуклида тесно связана с возможностью достижения самой цели трансмутации — уменьшения экологической опасности от присутствия данного вида

отходов в окружающей среде в заданное число раз. Среди продуктов трансмутации ^{129}I отсутствуют долгоживущие ядра, поэтому оценка результатов сжигания сводится к определению снижения массы этого нуклида, попадающей в биосферу в составе низко- и среднеактивных отходов. Это существенно отличает его от Np , Am , Cm и др., α -активность продуктов сжигания которых непосредственно после облучения выше, чем у стартовой загрузки, и необходимое снижение индекса токсичности при попадании отходов в организм человека с питьевой водой достигается лишь после их длительного хранения [17–19].

Ориентировочной целью уничтожения ^{129}I обычно считается уменьшение его безвозвратных потерь до 5–10% [20, 21], по более оптимистичным оценкам — до 2% [13]. В ином случае, несмотря на сокращение общей экологической опасности ^{129}I , положительный эффект от сжигания станет неочевидным из-за наличия фактора противоположной направленности: при общей годовой наработке P и выгорании за трансмутационную кампанию q необходимые производственные мощности по рециклированию мишеней составят P/q , локальная дозовая нагрузка на связанный с переработкой иода персонал возрастет в q^{-1} раз [8].

В настоящее время пурекс-процесс обеспечивает извлечение из отработавшего топлива около 95% иода, причем этот параметр сохраняется и в планах строительства во Франции в 2010–2020 гг. завода по переработке топлива и трансмутационных мишеней EFTRP [20], и в требованиях отраслевой программы Минатома России к радиохимической технологии, на которой будет базироваться замкнутый топливный цикл с трансмутацией долгоживущих компонентов отходов [22]. Кроме того, достижения в разработке технологии улавливания иода дают надежду на будущее сокращение его потерь до 2% [23].

Основные продукты трансмутации ^{129}I являются газообразными, за исключением следовых количеств ^{128}Te , образующегося из побочного ^{127}I , и изотопов цезия, накопление которых становится заметным только при высоком флюенсе нейтронов. Поэтому рециклирование мишеней представляет значительно более легкую задачу по сравнению с выделением иода из топлива. Следует ожидать, что относительные потери ^{129}I при радиохимической переработке облученных мишеней будут ниже указанных для топлива и не превысят 1–2% [13].

Полные потери сжигаемого радионуклида в окружающей среде можно определить по формуле [24, 25]

$$W_{\Sigma} = 1 - q(1 - w_0) / [1 - (1 - q)(1 - w)],$$

где q — выгорание за одну кампанию; w_0 — относительные потери при выделении из отработавшего топлива; w — относительные потери за один цикл регенерации мишени. Отсюда получим выражение для нижнего предела выгорания:

$$q_{\min} = \{1 + (W_{\Sigma} - w_0) / [w(1 - W_{\Sigma})]\}^{-1},$$

которое при $w_0 = w$ упрощается до $q_{\min} = (W_{\Sigma}^{-1} - 1) / (w^{-1} - 1)$. При ограничении $W_{\Sigma} < 10\%$ и реальной в ближайшем будущем ситуации, когда $w_0 \sim 5\%$, $w \sim 2\%$, минимально допустимое выгорание приближается к 30%. В случае ужесточения требований до $W_{\Sigma} < 5\%$ даже с учетом заметных успехов в развитии технологии улавливания иода и снижения элементарных потерь до $w_0 \approx 2\%$ и $w \sim 1\%$ выгорание за цикл должно будет превышать 25%.

Достижение столь высокого выгорания ^{129}I за кампанию невозможно при выполнении требований экономии нейтронов, поэтому возникает необходимость снижения доли паразитных реакций за счет удаления газообразных продуктов трансмутации по петлевому каналу в процессе облучения [26, 27].

Формы иодной мишени. Наиболее просто отвод дочернего ксенона осуществить в случае жидкой иодной мишени, однако степень научно-технического обоснования такой схемы пока еще недостаточно высока. Кроме того, для организации процесса на основе жидкой мишени характерен низкий уровень безопасности — вследствие высокой летучести иода и его соединений разгерметизация петли приведет к аварии с возможным выбросом ^{129}I в атмосферу.

Сегодня не осталось простых соединений иода с ядерно-инертными элементами, которые бы не рассматривались в качестве возможных химических форм мишени: $(\text{K}, \text{Na})\text{I}$, $(\text{Bi}, \text{Be}, \text{Ca}, \text{Cu}_2, \text{Mg}, \text{Pb}, \text{Sr}, \text{V}, \text{Zn})\text{I}_2$, $(\text{Ce}, \text{In}, \text{Y})\text{I}_3$, ZrI_4 и др. Их нейтронно-физические характеристики различаются незначительно и не влияют на выбор наиболее перспективной формы мишени. Хотя в экспериментах по облучению мишеней NaI и CeI_3 в течение 193 сут до флюенса $2 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-2}$ с тепловым компонентом $3,2 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-2}$ для первой из них было достигнуто выгорание ^{129}I около 5,13%, для второй — 5,87% [9], относительная разница выгорания в 12% может объясняться примерно таким же различием ядерной плотности иода в образцах. Возможно, что в первую очередь исключению из списка кандидатов подлежат соединения, обладающие высокой растворимостью в воде как более опасные в длительном хранении до промышленной реализации сжигания ^{129}I . Некоторые сомнения вызывает также применение мишени KI вследствие наработки в процессе облучения долгоживущего ^{40}K с периодом полураспада $1,262 \cdot 10^9$ лет, хотя и не очень значительной.

Соединения иода обладают относительно невысокой температурой плавления или разложения, в основном, 400—900 °С, а также низкой прочностью. Поэтому для повышения безопасности трансмутации они должны входить в состав прочного материала-разбавителя. Наиболее простым решением, по-видимому, является пропитывание пористых ядерно-инертных матриц, таких, как ZrC , ZrO_2 , MgO , Al_2O_3 и др., расплавами иодных соединений. Для топливных таблеток характерным размером ~ 1 см при размере пор ~ 50 мкм заполнение до 80% их свободного объема может легко достигаться уже после одного пропитывания [27]. Такие мишени обладают жестким пространственно-непрерывным каркасом, ограничивающим их разрушение при химических изменениях иодного компонента в процессе облучения, их высокая газопроницаемость обеспечивает возможность удаления продуктов трансмутации [26—28]. Аналогичные мишени могут также быть получены методами прессования в условиях, когда фракция разбавителя намного мельче фракции частиц соединения иода, за счет чего создается скелет мишени. Однако, несмотря на высокие диффузионные характеристики ксенона, его отвод из прессованных мишеней затруднен вследствие недостаточной газопроницаемости.

При уничтожении одного из атомов иода в молекулах, где их несколько, соединения частично будут разрушаться с выделением свободного иода, а также переходить в химически активные радикалы и ионы. В отличие от мишеней с гомогенно распределенными по объему иодсодержащими молекулами в гетерогенных мишенях влияние второго процесса на ее структуру не столь значительно вследствие малой поверхности контакта материала-разбавителя с включениями соединений иода.

Внутреннее давление ксенона. Удаление газообразных продуктов трансмутации $^{127,129}\text{I}$ имеет смысл также и для снижения давления на оболочку мишени, поскольку при протечках вместе с выходом ксенона возможен и создающий аварийную ситуацию выход паров иода.

Наиболее просто получить оценку парциального давления ксенона для соединений, содержащих один атом иода, т.е. имеющих вид MeI , где Me — металл. С погрешностью менее 1% можно считать, что масса образованного ксенона равна массе выгоревшего иода. Если начальный относительный свободный объем, не занятый материалами мат-

рицы и иодных соединений, составляет ϵ_0 , объем соединения иода равен ϵ , то, введя обозначение $\eta \equiv \epsilon_0/\epsilon$, показывающее, какую часть объема иодного компонента составляют пустоты в мишени, в отсутствие химических реакций получим зависимость давления ксенона под оболочкой от суммарного выгорания изотопов иода q в виде

$$P = RT[q^{-1}\eta V_{MeI} - (V_{MeI} - V_{Me})]^{-1},$$

где R — универсальная газовая постоянная; T — температура, К; V_{MeI} , V_{Me} — мольный объем MeI и Me соответственно.

В случае, когда $Me \equiv K, Na$, вследствие низкой температуры плавления следует использовать мольный объем жидких металлов. В отсутствие разбавителя $\epsilon_0 = 1 - \epsilon$, поэтому $\eta = \epsilon^{-1} - 1$ без изменения физического смысла параметра.

Пористость перспективных для сжигания ^{129}I материалов может достигать 70%. Если начальный свободный объем такой матрицы заполнить соединением иода в пределах 15–70%, то пустоты в мишени займут 20–60%, объем иодного компонента в ней составит 10–50%, откуда $\eta = 0,4$ –6. Для неразбавленной иодной мишени указанный диапазон значений η соответствует изменению относительного объема соединения иода в пределах 14–71%.

Даже при малом 30%-ном содержании иода в мишенях NaI или KI и таком же объеме скелета матрицы ($\epsilon = 0,3$, $\epsilon_0 = 0,4$, $\eta = 1,33$) уже при низком выгорании от 20% внутреннее давление ксенона при 400 °С составит десятки МПа (кривая 2 на рис. 5), так что увеличение концентрации ^{129}I для повышения эффективности трансмутации становится проблематичным. Значительное давление под оболочкой мишени противоречит необходимости поддержания высокого уровня безопасности схемы сжигания ^{129}I , что является еще одним аргументом в пользу отвода дочерних газов в процессе облучения.

Заключение. Ожидаемая степень уменьшения экологической опасности ^{129}I путем трансмутации значительно ниже, чем в случае актиноидов и ^{99}Tc [19, 24, 25], поэтому он не является первым среди кандидатов на ядерное разрушение. Вследствие низкой скорости сжигания ^{129}I для его эффективной утилизации требуются специализированные высокопоточные устройства с тепловым и промежуточным спектром нейтронов, дополнительную сложность в разработку которых вносит необходимость создания системы непрерывного удаления газообразных продуктов трансмутации. Однако особая биологическая роль иода в живой природе и трудности надежной локализации настоятельно требуют уничтожения его радиоактивного изотопа ^{129}I уже в ближайшем будущем.

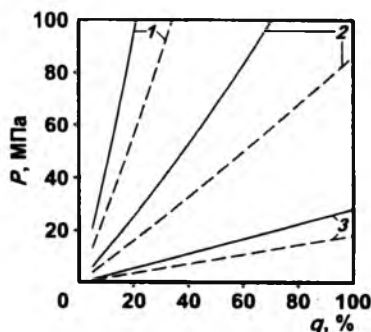


Рис. 5. Зависимость давления ксенона под оболочкой мишени NaI (—) и KI (---) от выгорания иода при 400 °С и параметре η 0,4 (1), 1,33 (2), 6 (3)

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kusters H., Kienzier B., Kolarik Z. e.a. The nuclear fuel cycle for transmutation: critical review. — In: Proc. of Intern. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems «GLOBAL-95». Versailles, France, September 11–14, 1995, v. 1, p. 1076–1083.
2. Поплавский В.М., Матвеев В.И., Работнов Н.С. Замыкание ядерного топливного цикла: баланс актиноидов и безопасность. — Атомная энергия, 1996, т. 81, вып. 2, с. 123–128.
3. Землянухин В.И., Ильенко Е.И., Кондратьев А.Н. и др. Радиохимическая переработка ядерного топлива АЭС. М.: Энергоатомиздат, 1989. 280 с.

4. Zhuang H., Zeng J., Zhu L. Sorption of radionuclides technetium and iodine on minerals. — *Radiochim. Acta*, 1988, v. 44/45, p. 143—145.
5. Rancon D. Comparative study of radioactive iodine behaviour in soils under various experimental and natural conditions. — *Ibid.*, p. 187—193.
6. Zhuang H., Zeng J., Xia D., Zhu Z. Retardation of technetium and iodine by antimony- and mercury-containing minerals. — *Radiochim. Acta*, 1995, v. 68, p. 245—249.
7. Козарь А.А., Перетрухин В.Ф. Возможность получения искусственного рутения из продуктов трансмутации ^{99}Tc . — *Атомная энергия*, 1996, т. 80, вып. 4, с. 274—279.
8. Козарь А.А., Перетрухин В.Ф. Трансмутация ^{99}Tc как новый источник стабильного рутения. — *Радиохимия*, 1997, т. 39, вып. 4, с. 294—299.
9. Konings R., Franken W., Conrad R. e.a. Transmutation of technetium and iodine — irradiation tests in the frame of the EFTTRA cooperation. — *Nucl. Technol.*, 1997, v. 117, p. 293—298.
10. Козарь А.А., Перетрухин В.Ф., Карелин Е.А. и др. Исследование трансмутации металлического ^{99}Tc в рутений при облучении в высокопоточном реакторе СМ. Тезисы докл. 3-й Рос. конф. по радиохимии. Санкт-Петербург, 28 ноября—1 декабря 2000 г. СПб, 2000, с. 107.
11. Ершов Ю.А., Попков В.А., Берлянд А.С. и др. Общая химия. Биофизическая химия. Химия биогенных элементов. Учеб. для мед. спец. вузов. М.: Высшая школа, 1993. 560 с.
12. Radioiodine Removal in Nuclear Facilities: Methods and Techniques for Normal and Emergency Situations. Techn. Reports Series N. 201. Vienna, IAEA, 1980.
13. Tomassi J., Delpech M., Grouiller J.-P., Zaetta A. Long-lived waste transmutation in reactors. — *Nucl. Technol.*, 1995, v. 111, p. 133—147.
14. Герасимов А.С., Зарицкая Т.С., Рудик А.П. Справочник по образованию нуклидов в ядерных реакторах. М.: Энергоатомиздат, 1989. 575 с.
15. Higano N., Wakabayashi T. Feasibility study on the transmutation of long lived fission products in a fast reactor. — In: Proc. of Intern. Conf. on Future Nuclear Systems «GLOBAL-97». Yokohama, Japan, October 5—10, 1997, v. 1, p. 1322—1326.
16. 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.
17. Захаров М.А., Козарь А.А., Никифоров А.С. Перспективы обезвреживания долгоживущих актинидов методом трансмутации. — Докл. АН СССР, 1990, т. 314, № 6, с. 1441—1444.
18. Никифоров А.С., Захаров М.А., Козарь А.А. Перспективы трансмутационного обезвреживания ^{237}Np и ^{241}Am при облучении их тепловыми нейтронами внутри пористых иммобилизаторов. — *Атомная энергия*, 1991, т. 70, вып. 3, с. 188—191.
19. Козарь А.А. Повышение экологической безопасности отходов после облучения актиноидов тепловыми нейтронами. — Там же, 1993, т. 75, вып. 3, с. 188—194.
20. Boussier H., Ouvrier N., Castelli P. e.a. Preliminary assessment of a reprocessing process with minor actinide and long lived fission product separation. — In: Proc. of Intern. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems «GLOBAL-95». Versailles, France, September 11—14, 1995, v. 1, p. 997—1007.
21. Grouiller J.-P., Faure C., Sala S., Boussier H. Potentialities and costs of partition and transmutation of long-lived radionuclides. — *Ibid.*, v. 2, p. 1884—1895.
22. Адамов Е.О., Габараев Б.А., Ганев И.Х. и др. Радиационные характеристики отработавшего ядерного топлива и отходов при неводных методах переработки. — *Атомная энергия*, 2000, т. 89, вып. 3, с. 203—211.
23. Веселов В.К., Галкин Б.Я., Исупов В.К. и др. Обращение с йодом-129 в процессе переработки ОЯТ. Тезисы докл. 3-й Рос. конф. по радиохимии. Санкт-Петербург, 28 ноября—1 декабря 2000 г. СПб, 2000, с. 122.
24. Козарь А.А., Перетрухин В.Ф. Рутений как продукт трансмутации ^{99}Tc : степень очистки, необходимая для применения. — *Известия вузов. Ядерная энергетика*, 1999, № 4, с. 67—76.
25. Козарь А.А., Перетрухин В.Ф., Гулев Б.Ф. Оценка необходимого коэффициента разделения ^{99}Tc и Ru после трансмутации ^{99}Tc для промышленного применения ядерного рутения. — *Радиохимия*, 2000, т. 42, вып. 6, с. 502—508.
26. Козарь А.А. Пористые мишени для хранения и трансмутации актиноидов и ^{129}I . Тезисы докл. конф. «Институт физической химии на рубеже веков». Москва, 21—23 марта 2000 г. М., 2000, с. 129.
27. Козарь А.А., Широкова И.Б., Плотникова Т.Э., Гулев Б.Ф. Пористость как необходимое свойство структуры мишеней для трансмутации ^{129}I . — В кн.: Матер. 6-го Всерос. симп. «Актуальные проблемы теории адсорбции и синтеза сорбентов». Москва—Клязьма, 24—28 апреля 2000 г. М., 2000, с. 195.
28. Козарь А.А., Плотникова Т.Э. Рост массы пористых материалов при циклической пропитке растворами имитаторов радиоактивных отходов. — В кн.: Матер. 5-го Всерос. симп. «Современные теоретические модели адсорбции в пористых средах». Москва, 24—28 мая 1999 г. М., 1999, с. 139.