

# ГЕТЕРОГЕННАЯ ИММОБИЛИЗАЦИЯ ДЛЯ ПОВЫШЕНИЯ КОНЦЕНТРАЦИИ АКТИНОИДНЫХ ОТХОДОВ В МАТЕРИАЛАХ ИХ ДЛИТЕЛЬНОГО ХРАНЕНИЯ

**А.А. Козарь**

*Институт физической химии РАН, г. Москва*



Рассмотрена гетерогенная иммобилизация актиноидных отходов – включение их в матрицу-носитель в виде частиц отдельной фазы. На основе анализа возможных направлений выхода тяжелых ядер из шаровых и цилиндрических частиц отходов проведен расчет интенсивности генерации треков в матрице. Показано, что для существования в ней замкнутой области без повреждений объемное содержание актиноидов не должно превышать 50% для шаровых и 75% для цилиндрических частиц отходов. Получены зависимости кратности снижения дозовой нагрузки на гетерогенную матрицу по отношению к гомогенной от размеров актиноидных частиц. Установлено, что начиная с радиуса частиц  $10^{-5}$  м, когда количество повреждений падает в 5 раз, каждому порядку увеличения размеров актиноидной фазы соответствует примерно порядок снижения дозовой нагрузки.

Наиболее проблемной фракцией радиоактивных отходов (РАО) являются малые актиноиды (МА) –  $\alpha$ -излучающие изотопы Np, Am, Cm, значительная экологическая опасность которых сохраняется многие сотни тысяч лет [1–3]. Наряду с традиционным подходом к обезвреживанию МА путем захоронения в глубокие геологические формации активно разрабатывается и более радикальный метод обращения с этой фракцией – уничтожение трансмутацией в короткоживущие и стабильные нуклиды. Как в случае создания иммобилизационных систем для захоронения, так и в случае синтеза мишеней для ядерного сжигания, пригодных для долговременного компактного хранения МА до реализации этого метода их утилизации, необходимым считается стремление к повышению концентрации  $\alpha$ -излучателей в матрицах-носителях, что требует их высокой радиационной стойкости.

## ПОНЯТИЕ РАДИАЦИОННОЙ ГЕТЕРОГЕННОСТИ

Во всех ранее создаваемых материалах для иммобилизации  $\alpha$ -излучателей эта фракция не включалась в виде отдельной фазы, поэтому данные объекты имели гомогенную структуру по отношению к атомарному распределению актиноидов. В течение длительного времени основным направлением в разработке иммобилизаторов для МА было создание минералоподобных керамик, известных под названием синрок (Synroc – синтетический камень), моделирующих содержащие U и Th природные минералы, которые выдержали без существенного изменения физико-химических свойств дозовую нагрузку

от облучения  $\sim 10^{27}$   $\alpha$ -частиц/ $\text{м}^3$  [4]. Допустимая дозовая нагрузка для полученных искусственных матриц оказалась несколько ниже. После самооблучения от  $10^{24}$ – $10^{26}$   $\alpha$ -частиц/ $\text{м}^3$  эти минералы превращаются в смесь разупорядоченных областей и кристаллических структур примерно в равном соотношении объемов вследствие наложения треков ядер отдачи [5 – 8]. Расстояние действия указанных тяжелых частиц составляет  $(1-2) \cdot 10^{-8}$  м; на своем пути они производят несколько тысяч смещений атомов, повреждая микрообъемы  $10^{-24}$ – $10^{-23}$   $\text{м}^3$ , заведомо пересекающиеся после дозовой нагрузки  $10^{23}$ – $10^{24}$   $\alpha$ -частиц/ $\text{м}^3$ . Предел допустимой концентрации актиноидных РАО в минералоподобных керамиках обычно оценивается на уровне не выше 10% по массе, однако при этом в качестве основного компонента рассматривается относительно низкоактивный уран, оставшийся после регенерации топлива. Кроме того, обоснования емкости матриц по  $\alpha$ -излучателям зачастую ограничиваются структурно-химическими факторами, т.е. возможностью включения отходов в кристаллическую решетку иммобилизатора, а его долговременная радиационная устойчивость учитывается далеко не всегда.

Принципиальным ограничением на повышение радиационной стабильности гомогенных актиноидных иммобилизаторов является именно равномерность распределения атомов  $\alpha$ -излучателей по объему материала, в результате чего каждый распад ведет к повреждению композиции ядрами отдачи и гелия. Переход к включению актиноидной фракции РАО в виде отдельной фазы, т.е. к гетерогенной системе, приводит к поглощению части короткопробежного излучения в объеме самих частиц отходов МА и снижению дозовой нагрузки на матрицу-носитель [9 – 11]. Вдобавок, гетерогенные системы обладают высокой химической независимостью от характеристик атомов дочерних элементов, возникающих вследствие распада или деления актиноидов.

Очевидно, что преимущества в радиационной устойчивости химически гетерогенной композиции перед гомогенной будут сказываться только начиная с размеров частиц актиноидных отходов, сравнимых с длиной пробега тяжелых ядер. Следовательно, понятие радиационной гетерогенности является относительным и должно рассматриваться в применении к конкретному излучению. Так, при размерах частиц МА  $\sim 10^{-7}$  м система является радиационно гетерогенной по отношению к ядрам отдачи, пробег которых заметно ниже, но остается практически гомогенной относительно ядер гелия с пробегом  $\sim (1-2) \cdot 10^{-5}$  м.

Возможны различные принципы синтеза гетерогенных композиций в зависимости от их дальнейшего назначения. В рамках программы разработки ядерного топлива с инертной матрицей (IMF – Inert Matrix Fuel) развивается одна из технологий создания гетерогенных систем, где в материал таблеток включаются полученные методом «золь-гель» топливные частички [12,13]. Для топливных таблеток-мишеней также удобно применять методы прессования порошков с последующим отжигом. В этом случае частицы фракции материала-разбавителя должны быть много меньше актиноидных частиц для создания обволакивающего эффекта и формирования скелета матрицы. При создании иммобилизаторов для захоронения отходов возможно внесение частиц  $\alpha$ -излучателей в расплавы минералоподобных керамик, которые обычно имеют более низкую температуру плавления по сравнению, например, с оксидами и фосфатами трансурановых элементов. Наконец, МА могут вводиться в состав пористых ядерно-инертных материалов из растворов путем упаривания или циклического пропитывания, а также пропитыванием расплавами [14–17]. Рассмотрение последних композиций при неполном заполнении пор позволяет осуществить моделирование гетерогенных систем в наиболее общем виде, поскольку независимо от структуры иммобилизатора полости в нем, содержащие актиноидные частицы, могут считаться порами в материале матрицы.

Для обоснования принципов формирования гетерогенных систем с учетом оптимизации соотношения объемов компонентов и размеров актиноидных частиц необходимо

определить влияние этих факторов на величину дозовой нагрузки на каркас матрицы-носителя.

Поток частиц из поры. При моделировании структуры несплошных материалов пустоты в них обычно представляют в виде композиции цилиндрических и шаровых пор. Такая аппроксимация применима и к форме частиц актиноидных отходов в гетерогенных иммобилизаторах сплошного типа.

На рис.1 сплошными линиями показано центральное сечение шаровой поры, которое также можно рассматривать и в качестве поперечного сечения квазибесконечной цилиндрической. Пунктир относится к наложенному соответствующим образом осевому сечению цилиндрической поры. Поры имеют радиус  $R$  и заполнены так, что внутренний радиус шарового и цилиндрического слоев материала отходов составляет  $R_0$ . Элемент объема  $dV = \rho^2 \sin \theta \, d\rho \, d\theta \, d\varphi$  или  $dV = \rho \, d\rho \, d\varphi \, dz$  отходов с единичной объемной мощностью, расположенный в точке  $O'$  с координатами соответственно  $(\rho, \theta, \varphi)$  в сферической или  $(\rho, \varphi, z)$  в цилиндрической координатной системе с центром в точке  $O$ , со-

здает в материале матрицы поток треков  $dV \frac{\Omega(\rho)}{4\pi}$ , где  $\Omega(\rho) = \frac{\Delta S}{\bar{R}^2}$  – телесный угол, вырезанный порой из сферы с центром в точке  $O'$  радиусом, равным длине пробега тяжелых заряженных частиц в материале отходов  $\bar{R}$ ,  $\Delta S$  – площадь вырезанного сферического сегмента. Для шаровой поры  $\Delta S = 2\pi \bar{R}^2 (1 - \cos \bar{\theta})$ , где  $\bar{\theta}$  – величина угла  $\angle AO'B$ . По теореме косинусов для треугольника  $OA O'$  при  $\rho \neq 0$  имеем

$$\cos \bar{\theta} = -\cos(\pi - \bar{\theta}) = -\frac{\rho^2 + \bar{R}^2 - R^2}{2\rho \bar{R}},$$

откуда

$$\Omega_{sph}(\rho) = 2\pi \left( 1 + \frac{\rho^2 + \bar{R}^2 - R^2}{2\rho \bar{R}} \right).$$

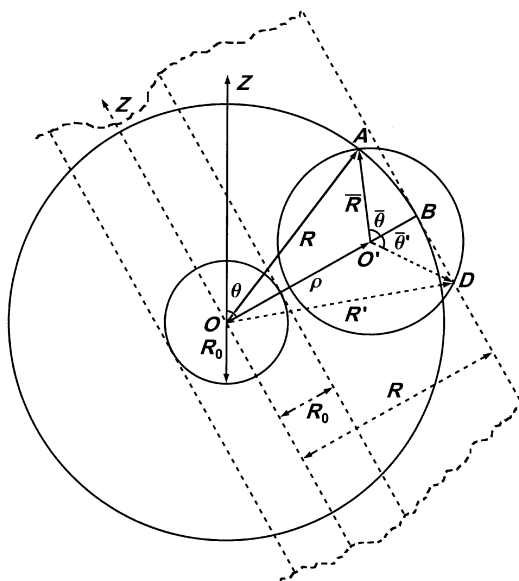


Рис. 1. Схема для расчета потока частиц: центральное сечение шаровой и поперечное цилиндрической поры (—) и осевое сечение цилиндрической поры (---)

В случае цилиндрических пор выражение для  $\Omega_{cyl}(\rho)$  включает в себя слагаемые, содержащие эллиптические интегралы, является чрезвычайно громоздким и поэтому практического значения не имеет. Приближение  $\Omega_{cyl}(\rho)$  можно получить, приняв во внимание, что, с одной стороны, вырезаемый цилиндром радиуса  $R$  из сферы радиуса  $\bar{R}$  телесный угол меньше угла, вырезаемого сферой радиуса  $R$ :  $\Omega_{cyl}(\rho) < \Omega_{sph}(\rho)$ . С другой стороны, искомый угол больше телесного угла  $\bar{\Omega}_{sph}(\rho) = 2\pi(1 - \cos\bar{\theta}') = 2\pi\left(1 - \frac{R-\rho}{\bar{R}}\right)$ , вырезаемого сферой радиуса  $R'$ , равного длине отрезка  $OD$ , где  $D$  – точка пересечения образующей цилиндра со сферой радиуса  $\bar{R}$ :  $\Omega_{cyl}(\rho) > \bar{\Omega}_{sph}(\rho)$ . Среднее арифметическое указанных выражений для нижней и верхней оценки телесного угла при  $\rho \neq 0$  есть

$$\Omega_{cyl}(\rho) = \frac{1}{2}(\Omega_{sph}(\rho) + \bar{\Omega}_{sph}(\rho)) = 2\pi \left(1 + \frac{3\rho^2 + \bar{R}^2 - R^2 - 2\rho R}{4\rho\bar{R}}\right).$$

В представлении потока треков из сферической и цилиндрической единичной длины пор используем интегрирование с переменным нижним пределом по  $\rho$ :

$$I_{sph}(x) = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} \sin\theta d\theta \int_x^R \Omega_{sph}(\rho) \rho^2 d\rho,$$

$$I_{cyl}(x) = \frac{1}{4\pi} \frac{1}{h} \int_0^{2\pi} d\varphi \int_{-h/2}^{h/2} dz \int_x^R \Omega_{cyl}(\rho) \rho d\rho,$$

где  $x > 0$ ,  $h \gg R$  – характерный размер иммобилизационной системы, отсюда получим

$$I_{sph}(x) = 2\pi \left( \frac{R^3}{3} - \frac{R^4}{8\bar{R}} + \frac{R^2\bar{R}}{4} + \frac{R^2x^2}{4\bar{R}} - \frac{\bar{R}x^2}{4} - \frac{x^3}{3} - \frac{x^4}{8\bar{R}} \right),$$

$$I_{cyl}(x) = \pi \left( \frac{R^2}{2} - \frac{R^3}{4\bar{R}} + \frac{R\bar{R}}{4} + \frac{R^2x}{4\bar{R}} - \frac{\bar{R}x}{4} - \frac{x^2}{2} + \frac{Rx^2}{4\bar{R}} - \frac{x^3}{4\bar{R}} \right).$$

В области  $R < \bar{R} + R_0$  имеем  $x = R_0$ . Если  $R > \bar{R} + R_0$ , то  $x = R - \bar{R}$ , и полученные интегралы упрощаются:

$$I_{sph}(R - \bar{R}) = 2\pi \left( \frac{R^2\bar{R}}{2} - \frac{\bar{R}^3}{24} \right), \quad I_{cyl}(R - \bar{R}) = \pi \frac{R\bar{R}}{2}.$$

Без учета краевых эффектов  $I_{cyl}(R - \bar{R})$  представляет собой активность толстого плоского источника с площадью, равной площади  $2\pi R$  боковой поверхности цилиндра единичной длины, что ожидалось в случае  $R \gg \bar{R}$ , когда цилиндрический слой можно развернуть в плоский, т.е.  $I_{cyl}(x)$  дает несколько завышенную оценку потока частиц. При  $R \gg \bar{R}$  поверхность сферы разрезается на практически плоские сегменты достаточной для пренебрежения краевыми эффектами площади. Тогда  $I_{sph}(R - \bar{R}, R \gg \bar{R}) = \pi R^2 \bar{R}$  также соответствует толстому источнику с площадью, равной площади  $4\pi R^2$  поверхности сферы.

Хотя  $\cos \bar{\theta}$  – непрерывная функция, использованное для него выражение имеет бесконечный разрыв в точке  $\rho = 0$ . При  $R = \bar{R}$  разрыв легко устраняется в самом выражении для  $\cos \bar{\theta}$ , и

$$\Omega_{sph}(\rho) = 2\pi \left( 1 + \frac{\rho}{2\bar{R}} \right), \quad \Omega_{cyl}(\rho) = 2\pi \left( 1 + \frac{3\rho - 2\bar{R}}{4\bar{R}} \right).$$

Результаты

$$I_{sph}(R = \bar{R}) = \frac{11}{12} \pi \bar{R}^3 \quad \text{и} \quad I_{cyl}(R = \bar{R}) = \frac{1}{2} \pi \bar{R}^2,$$

получаемые после подстановки последних значений телесных углов и интегрирования на отрезке  $[0, \bar{R}]$  при  $R_0 = 0$ , полностью совпадают с расчетом при подстановке  $x=0$  в конечные выражения для  $I_{sph}(x)$  и  $I_{cyl}(x)$ , поэтому их вычисление в области  $R \geq \bar{R}$  может проводиться и в указанной точке. При  $R < \bar{R}/2$  система с шаровыми порами становится радиационно гомогенной относительно данного вида излучения – все частицы вылетают за пределы поры. Тогда при  $R_0 = 0$  их поток составляет  $\frac{4}{3} \pi R^3$ , однако

$I_{sph}(R = \bar{R}/2) = \frac{37}{24} \pi R^3$ . Это соответствует вполне приемлемой для оценочных расчетов погрешности  $\sim 15\%$ , т.е. расчетная величина  $I_{sph}(x)$  близка к реальной и в области  $R \leq \bar{R}/2$ . Если бы рассматривались конечные цилиндрические поры, то при  $R < \bar{R}/2$ ,  $h < \bar{R}/2$  эта система также перестала бы быть радиационно гетерогенной, а поток частиц с единицы длины при  $R_0 = 0$  составил бы  $\pi R^2$ . Реально он несколько ниже, т.к. некоторая доля частиц, испущенных под достаточно острым углом к оси цилиндра, за пределы поры не выходит, поэтому система остается слабогетерогенной. При  $R = \bar{R}/2$  и  $R_0 = 0$  расчет дает  $I_{cyl}(R = \bar{R}/2) = \frac{7}{8} \pi R^2$ , что лишь на 12.5% меньше указанной величины для пор в виде малых конечных цилиндров, одновременно являющейся асимптотой для квазибесконечных цилиндров при  $R \ll \bar{R}$ . Таким образом, функция  $I_{cyl}(x)$  также достаточно адекватно описывает поведение потока и в области  $R \leq \bar{R}/2$ .

### ДОЗОВАЯ НАГРУЗКА НА ГОМОГЕННЫЕ И ГЕТЕРОГЕННЫЕ МАТРИЦЫ

При иммобилизации в матрице с открытой пористостью  $p$  одного изотопа с концентрацией  $C_V$  в материале актиноидных отходов, занимающих в поре относительный объем  $s$ , его среднее содержание в системе  $\bar{C}_V = \chi p C_V$ . При этом  $\chi_{sph} = 1 - (R_0/R)^3$  для шаровых и  $\chi_{cyl} = 1 - (R_0/R)^2$  для цилиндрических пор. Если минимальное расстояние между центрами шаровых или осями цилиндрических соседних регулярно расположенных пор  $r$ , то в отсутствие закрытой пористости

$$p_{cyl} = \pi \left( \frac{R}{r} \right)^2.$$

Когда среднее расстояние между поверхностями частиц актиноидов больше двойного пробега тяжелых ядер в материале матрицы  $\bar{R}^m$ , т.е. при  $r - 2R > 2\bar{R}^m$ , в ней существует не подверженная бомбардировке пространственно-непрерывная область, что повышает надежность системы. Отсюда можно получить соответствующие данному условию нижние пределы радиусов шаровых и цилиндрических актиноидных частиц или пор в иммобилизаторе [9,10]:

$$R_{sph}^{\min} = \bar{R}^m \left[ \left( \frac{\pi}{6p_{sph}} \right)^{1/3} - 1 \right]^{-1}, \quad R_{cyl}^{\min} = \bar{R}^m \left[ \left( \frac{\pi}{4p_{cyl}} \right)^{1/2} - 1 \right]^{-1}.$$

На рис. 2 рассмотрен случай, когда пробеги ядер гелия и осколков деления в материале каркаса матрицы составляют  $\bar{R}_\alpha = \bar{R}_f = 1.5 \cdot 10^{-5}$  м; аналогичная зависимость для ядер отдачи с пробегом  $\bar{R}_{rn} = 1.5 \cdot 10^{-8}$  м получается уменьшением масштаба по оси ординат в  $\bar{R}_\alpha / \bar{R}_{rn} = 10^3$  раз. Ограничение объемного содержания актиноидов в гетерогенных композициях или их пористости для выполнения требования наличия в скелете матрицы свободной от треков замкнутой области следует из условия неотрицательности множителя при  $\bar{R}^m$ :  $p_{sph} < \pi/6 \approx 0.5$ ,  $p_{cyl} < \pi/4 \approx 0.75$  [9,10]. В итоге, независимо от формы актиноидных частиц, наибольший интерес представляет заполненная наполовину система в отсутствие остаточной пористости. Следует отметить, что если сам материал такой матрицы имеет типичную плотность  $\sim 5$  г/см<sup>3</sup>, то при иммобилизации в ней актиноидных оксидов плотностью  $\sim 10$  г/см<sup>3</sup> их содержание по массе составит 65 – 75% и существенно превысит самые оптимистичные оценки этой величины в гомогенных композициях.

При снижении скорости в конце трека ядра гелия производят несколько сотен смещений атомов, образуя дефектные пары по Френкелю [6]. Однако основная роль в повреждении иммобилизатора принадлежит ядрам отдачи, которые вызывают  $\varepsilon = 80$ –90% смещений атомов в кристаллической решетке матрицы [6]. Путь частицы в гетерогенной системе может проходить не только через материал матрицы-носителя, но и через

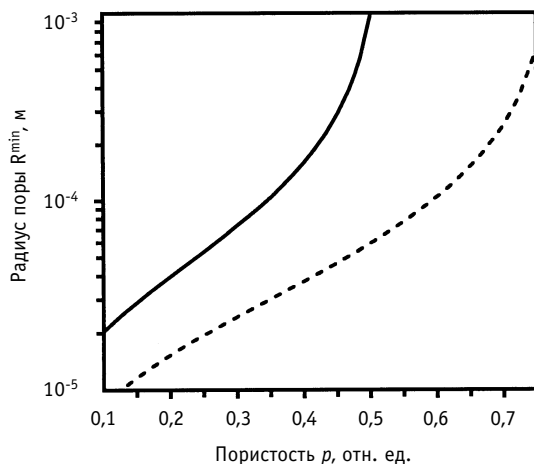


Рис. 2. Минимальные радиусы шаровых (—) и цилиндрических (---) пор для существования в матрице пространственно-непрерывной области без повреждений при длине пробега ядер гелия и осколков деления в ее материале  $\bar{R}_\alpha = \bar{R}_f = 1.5 \cdot 10^{-5}$  м

включения актиноидных отходов, вследствие чего дозовая нагрузка на сам скелет им-мобилизатора снижается. Пробег частиц в материале матрицы  $\bar{R}^m$  превышает их пробег в материале актиноидных отходов  $\bar{R}$ , которые имеют более высокую плотность и среднюю атомную массу. При  $\bar{R}^m < r - 2R$  попадание тяжелых ядер в соседнюю пору возможно только за счет нерегулярности объемного распределения актиноидных отходов, в то время как при  $\bar{R}^m \gg r$  часть повреждений  $t$ , приходящуюся на материал матрицы, следует оценить как долю занятого ею объема, т.е.  $(1 - p)$ . Таким образом, уменьшение доступной для проникновения излучаемых ядер части объема включений отходов МА с ростом  $R$  на отрезке  $[0, (r - \bar{R}^m)/2]$  можно учесть, хотя и грубо, введением соответствующего множителя при  $p$ :

$$\tau = 1 - p \left( 1 - \frac{\bar{R}^m}{r - 2R} \right).$$

При дальнейшем увеличении  $R$  коэффициент  $\tau = 1$ .

Поскольку рассматриваются повреждения только в скелете матрицы, отношение количества смещений атомов в гомогенной и гетерогенной системах при одинаковой средней концентрации актиноида дается выражением

$$\kappa_\alpha = \chi p (1 - p) v \left[ \varepsilon \tau^m I^m(x) + (1 - \varepsilon) \tau^\alpha I^\alpha(x) \right]^{-1},$$

где  $v$  – объем элементарной ячейки в пористой структуре ( $v_{sph} = r^3$ ,  $v_{cyl} = \pi r^2$ );  $I^m(x)$ ,  $I^\alpha(x)$  – интенсивность генерации треков соответственно ядер отдачи и гелия в материале каркаса матрицы. Аналогично, для осколков деления при облучении гомогенных и гетерогенных трансмутационных мишеней

$$\kappa_f = \chi p (1 - p) v \left[ \tau^f I^f(x) \right]^{-1}.$$

В наибольшей мере преимущества гетерогенных систем проявляются в отсутствие в них незаполненных полостей при  $R_0 = 0$  и  $\chi = 1$ , что, вообще говоря, редко реализуется при создании композиций на основе собственно пористых материалов. Графики зависимостей  $\kappa_\alpha(R)$  и  $\kappa_f(R)$  после устранения незначительных разрывов в точках  $R = \bar{R}$  и сглаживания показаны на рис. 3, где рассмотрен случай, когда  $p = 0.5$ ,  $\bar{R}_m = 10^{-8}$  м,  $\bar{R}_\alpha = \bar{R}_f = 10^{-5}$  м. Особенно резкое снижение дозовой нагрузки наблюдается при  $R > \bar{R}_\alpha/2$  и  $R > \bar{R}_f/2$ .

Геометрическая форма актиноидных частиц или пор не оказывает значительного влияния на среднее количество повреждений в скелете матрице (рис.3), однако распределение треков по его объему от указанного параметра зависит существенно – имеющая свободную от повреждений замкнутую область композиция с цилиндрическими порами позволяет включать в себя больше отходов, чем аналогичная с шаровыми (рис.2). Этот вывод несколько отличается от принятого в разработках IMF мнения о необходимости стремления к приданию актиноидным частицам исключительно шаровой формы для снижения поверхности контакта с инертным разбавителем [13]. Впрочем, в последнем случае дополнительно учитывается уменьшение механических напряжений на границе сопряжения микросфер с матрицей.

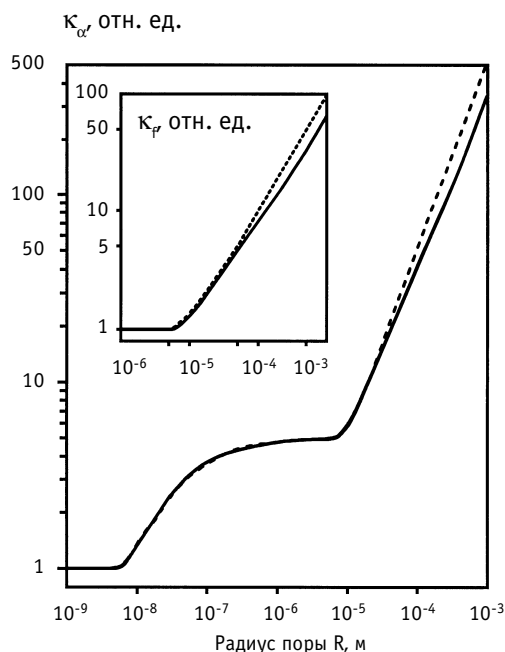


Рис. 3. Кратность снижения количества повреждений, вызванных ядрами гелия и отдачи  $\kappa_{\alpha}(R)$  и осколками деления  $\kappa_f(R)$ , в гетерогенной матрице, заполненной наполовину объема ( $p=0.5$ ,  $\chi=1$ ) шаровыми (—) и цилиндрическими (---) актиноидными частицами, по отношению к гомогенной в зависимости от их радиуса при пробегах в материале отходов ядер отдачи  $\bar{R}_m=10^{-8}$  м, ядер гелия и осколков деления  $\bar{R}_{\alpha}=\bar{R}_f=10^{-5}$  м

## МАКСИМАЛЬНЫЙ РАЗМЕР ПОР

С ростом размеров актиноидных частиц или пор дозовая нагрузка на каркас матрицы снижается. Тем не менее, очевидно, что такое увеличение лимитировано, в первую очередь, прочностными характеристиками иммобилизатора, аварийное разрушение которого в местах хранения или захоронения при их затоплении грунтовыми водами может привести к относительно быстрой делокализации отходов из пересеченных разломом полостей матрицы. Неизбежным является и снижение прочности с течением времени из-за деградации самих частиц актиноидной керамики, вызванной химическими изменениями при радиоактивном распаде, локальными перегревами и накоплениями электрических зарядов. Впрочем, эти процессы в гетерогенной системе не столь значимы, т.к. основное их влияние на структуру матрицы сосредоточено в прилегающих к поре областях.

Следует отметить, что в то время как прочность изначально сплошных материалов при разбавлении актиноидными частицами обычно уменьшается [13], прочность пористых матриц даже при довольно крупных порах диаметром  $10^{-4} - 10^{-3}$  м после заполнения отходами вследствие уменьшения объема пустот возрастает [14]. В работах по созданию IMF предпочтение отдается таблеткам с размером включенных в них микросфер актиноидов  $(1 - 2) \cdot 10^{-4}$  м, прочность которых составляет  $\sim 100$  МПа и удовлетворяет предъявляемым к топливу требованиям [13]. Кроме того, даже при относительно небольших размерах актиноидных частиц  $10^{-7} - 10^{-5}$  м, включение которых не может существенно снизить прочность сплошного материала, дозовая нагрузка на гетерогенную матрицу все же примерно в 5 раз ниже, чем на гомогенную.

Аварийная ситуация, связанная с повреждением иммобилизатора и затоплением его грунтовыми водами, не является единовременным разовым выбросом радиоактивного вещества, поскольку растворимость актиноидных отходов, обычно оксидов или фосфа-



тов, в грунтовых водах крайне низка. Тем не менее, ухудшение радиационной обстановки в районе хранилища произойдет в гораздо более короткие сроки по сравнению с периодом распада отходов до безопасного состояния. Поэтому имеет смысл введение ограничений на возможный краткосрочный выход отходов вследствие разрушения иммобилизатора в виде предельно допустимой относительной доли  $k$  от всей массы радиоактивного материала, содержащегося в матрице.

Если иммобилизатор кубической формы с размером ребра  $R_{im}$  будет рассечен плоскостью, параллельной двум его противоположным граням, то на каждой из двух поверхностей разлома разрезанными окажутся все поры с центрами в слое толщиной, равной их радиусу, т.е. в тесный контакт с окружающей средой вступят отходы из объема  $R_{im}^2 D$ , где  $D = 2R$  – диаметр поры или актиноидной частицы. Поскольку полный объем матрицы  $R_{im}^3$ , искомое ограничение имеет вид  $D < k R_{im}$  [9]. Так, для реальной ситуации, когда  $R_{im} = 10^{-1}$  м,  $k = 0.1$  – 1%, диаметр поры не должен превышать  $10^{-4}$  –  $10^{-3}$  м, что соответствует снижению дозовой нагрузки на гетерогенную систему в 40 – 300 раз по сравнению с гомогенной. Разломы сложной формы с повышенной поверхностью можно не рассматривать, учитывая, что одновременное повреждение всех хранящихся в одном месте иммобилизационных объектов маловероятно.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Одной из главных целей разработки IMF является повышение выгорания [12]. Возможной стратегией трансмутации МА также является непрерывное облучение мишеней до предельного выгорания с последующим их захоронением без переработки [12, 18 – 20]. В рамках этого подхода гетерогенные иммобилизаторы заслуживают особого внимания, поскольку являются многоцелевыми системами – они пригодны для долговременного безопасного хранения актиноидов, могут создаваться в виде готовых к облучению в трансмутационных устройствах топливных таблеток, а при частичном сохранении свойств своего каркаса после незначительной подготовки направляться в дальнейшем на захоронение [18–20]. Кроме того, при наличии остаточной пористости в таблетках возможно решение проблемы накопления газообразных продуктов деления, ограничивающего достижение высоких выгораний трансмутационных мишеней. Как и в случае сжигания  $^{129}\text{I}$ , газы могут отводиться по петлевому каналу в процессе облучения [21].

Таким образом, хотя в настоящее время технологии создания гетерогенных композиций, содержащих актиноидные отходы или топливо, только разрабатываются, повышенная радиационная и химическая устойчивость, а также более высокая емкость по азлучателям гетерогенных систем по сравнению с гомогенными делает перспективы их широкого распространения в недалеком будущем достаточно обнадеживающими.

## Литература

1. Бергельсон Б.Р., Герасимов А.С., Зарицкая Т.С. и др. Радиотоксичность и остаточное энерговыделение актиноидов и продуктов деления отработавшего ядерного топлива ВВЭР при длительном хранении // Атомная энергия. - 2000. - Т. 89. - №3. - С. 215-220.
2. Бергельсон Б.Р., Герасимов А.С., Зарицкая Т.С. и др. Радиотоксичность и остаточное энерговыделение отработавшего уран-плутониевого и ториевого топлива при длительном хранении // Атомная энергия. - 2001. - Т. 90. - № 1. - С. 31-35.
3. Поплавский В.М., Матвеев В.И., Работнов Н.С. Замыкание ядерного топливного цикла: баланс актиноидов и безопасность // Атомная энергия. - 1996. - Т. 81. - №2. - С. 123-128.
4. Bindon F.J.L. SYNROC: The Australian Solution Radioactive Waste Management // The Nuclear Engineer. - 1989. - V. 30. - № 6. - P. 174 - 178.
5. Matzke HJ. Radiation damage effects in nuclear materials // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. - 1988. - B32. - P. 455 - 470.

6. Ewing R.C., Chakoumakos B.C., Lumpkin G.R. et. al. Metamict minerals: natural analogues for radiation damage effects in ceramic nuclear waste forms//Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. - 1988. - В32. - Р. 487 - 497.
7. Lumpkin G.R., Ewing R.C., Chakoumakos B.C. et. al. Alpha-recoil damage in zirconolite ( $\text{CaZrTi}_2\text{O}_7$ )//J. Materials Research. - 1986. - V. 1. - № 4. - Р. 564 - 576.
8. Mitamura H., Matsumoto S. Fabrication of curium-doped synroc for an Alpha radiation stability test// Nuclear Technology. - 1989. - V. 85. - Р. 109 - 117.
9. Козарь А.А. Оптимизация размеров пор при иммобилизации актинидов пористыми материалами: Тез. докл./Первая Российская конф. по радиохимии (Дубна, 17 – 19 мая 1994). – М., 1994. - С. 123.
10. Козарь А.А. Преимущества иммобилизации актиноидных отходов в пористых материалах на основе оценки дозовой нагрузки: Матер. 5-го Всерос. симп. "Современные теоретические модели адсорбции в пористых средах" (Москва, 24–28 мая 1999 г.). – М., 1999. - С. 138.
11. Козарь А.А. Пористые мишени для хранения и трансмутации актиноидов и  $^{129}\text{I}$ : Тез. докл./Конф. "Институт физической химии на рубеже веков" (Москва, 21–23 марта 2000 г.). – М., 2000. - С. 128.
12. Горский В.В. Ядерное топливо с инертной матрицей (IMF). Часть I./Атомная техника за рубежом. - 2000. - № 10. - С. 3 - 8.
13. Горский В.В. Ядерное топливо с инертной матрицей (IMF). Часть II./Атомная техника за рубежом. - 2000. - № 11. - С. 3 - 11.
14. Захаров М.А., Потемкина Т.И., Козарь А.А. Физико-химическое взаимодействие композиции на основе  $\text{Al}_2\text{O}_3$  для хранения долгоживущих радионуклидов//Неорганические материалы. - 1993. - Т. 29. - № 3. - С. 379 - 380.
15. Kozar A.A., Peretroukhin V.F., Silin V.I. Development of some techniques for immobilization and transmutation of long-lived neptunium and technetium: Proc. of the 3-rd Finnish-Russian Symposium on Radiochemistry (Helsinki, Finland. October 19–20, 1993). - Helsinki University, 1994. - Р. 133-144.
16. Козарь А.А., Плотникова Т.Э. Рост массы пористых материалов при циклической пропитке растворами имитаторов радиоактивных отходов: Матер. 5-го Всерос. симп. "Современные теоретические модели адсорбции в пористых средах" (Москва, 24–28 мая 1999 г.). - М., 1999. - С. 139.
17. Афонин М.М., Горохов В.А., Козарь А.А. и др. Пористый карбид циркония – матрица для иммобилизации и трансмутации актиноидных отходов: Матер. 6-го Всерос. симп. "Актуальные проблемы теории адсорбции и синтеза сорбентов" (Москва – Клязьма, 24–28 апреля 2000 г.). – М., 2000. - С. 125.
18. Захаров М.А., Козарь А.А., Никифоров А.С. Перспективы обезвреживания долгоживущих актинидов методом трансмутации//Доклады АН СССР. - 1990. - Т. 314. - № 6. - С. 1441-1444.
19. Никифоров А.С., Захаров М.А., Козарь А.А. Перспективы трансмутационного обезвреживания  $^{237}\text{Np}$  и  $^{241}\text{Am}$  при облучении их тепловыми нейтронами внутри пористых иммобилизаторов//Атомная энергия. - 1991. - Т. 70. - № 3. - С.188-191.
20. Козарь А.А. Повышение экологической безопасности отходов после облучения актиноидов тепловыми нейтронами//Атомная энергия. - 1993. - Т. 75. - № 3. - С. 188-194.
21. Козарь А.А. Повышение эффективности трансмутации  $^{129}\text{I}$ //Атомная энергия. - 2001. - Т. 91. - № 2. - С. 139-146.

Поступила в редакцию 18.10.2001

**УДК 621.039.58:519**

*Development of Mathematical Model of Non-Equilibrium Two-Phase Flow for NPP Safety Analysis* \ A.A. Kazantsev, V.A. Levchenko, V.V. Sergeev, V.V. Hudasko; Editorial board of Journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001. – 13 pages, 8 illustrations. – References, 13 titles

It is necessary to have models, which will allow to calculate non-steady non-equilibrium thermal-hydraulic processes in NPP in real-time mode for calculation of processes in NPP simulators. The problems of obtaining of closing multiplication factors for non-steady thermal-hydraulic equations for simulator models under conditions of boiling are considered. It was made attempt of receiving of one-dimensional equations for the description of processes with taking into account the nonequilibriums of parameters and spatial non-uniformity of physical processes.

**УДК 621.039.53**

*Determination of Amount of Sampling through Factor of Sample at Supervision on Registration and Control of Nuclear Materials* \ A.M. Dmitriev, O.V. Krivosheina; Editorial board of Journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001. – 7 pages, 5 tables. – References, 4 titles

In article the way of account of sample volume through factor of sample is offered at checks of sets of registration units with a nuclear material on mass contents U-235 in registration unit with reference to the Russian nuclear installations. Meanings of factor of sample are given for various probabilities of detection of threshold amount of a nuclear material.

**УДК 621.039.7:546**

*Heterogeneous immobilization for rise of actinide waste concentration in their long-lived storage materials* \ A.A. Kozar; Editorial board of Journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001. – 10 pages, 3 illustrations. – References, 21 titles

Heterogeneous immobilization of actinide wastes is considered, that is their inclusion into carrier-matrix as particles of separate phase. The calculation of track generation intensity in matrix has been carried out on the base of the analysis of possible directions of heavy nuclei output from spherical and cylindrical waste particles. It is shown, that existence of closed area without damages in matrix is possible if volumetric actinide contents is less of 50% or 75% for spherical or cylindrical waste particles accordingly. The dependences of the ratio of doze loading for heterogeneous and homogeneous matrices on actinide particle sizes are received. It is determined, that each order of increase in actinide phase sizes corresponds to approximately one order of doze loading reduction, starting with particle radius of  $10^{-5}$  m, when damage amount decreases in 5 times.

**УДК 621.039.7**

*Research of methods of the substantiation of nuclear safety at handling with radioactive wastes, containing nuclear materials* \ S.S. Krechetov, V.S. Vnukov; Editorial board of Journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001. – 6 pages, 3 tables, 4 illustrations. – References, 10 titles

Methods of calculation of nuclear safety are investigated at handling with radioactive wastes containing nuclear materials. Calculations of the safe specific contents, the safe areal density, used are carried out at the analysis of nuclear safety of radioactive wastes. Various mixes of wastes containing water, graphite, beryllium, dioxide silicon and others, with uranium of high enrichment are considered. Recommendations for normative parameters are given at investigated at handling with wastes.