



УДК 546.718:621.039.7:539.174

РУТЕНИЙ КАК ПРОДУКТ ТРАНСМУТАЦИИ ^{99}Tc : СТЕПЕНЬ ОЧИСТКИ, НЕОБХОДИМАЯ ДЛЯ ПРИМЕНЕНИЯ*

А.А. Козарь, В.Ф. Перетрухин

Институт физической химии РАН, г. Москва



Рассмотрен процесс получения платинового металла рутения путем трансмутации ^{99}Tc . На основе анализа паразитного захвата нейтронов в мишенях показано, что облучение должно производиться до выгорания 50 или 95%, после чего необходимы два-четыре цикла радиохимической очистки рутения с суммарным фактором разделения $10^4 - 10^8$ для различных областей дальнейшего использования. Показано, что относительные потери ^{99}Tc в окружающей среде определяются первым циклом очистки рутения и должны составлять около 0.5% при ограничении суммарных потерь величиной 1%.

ВВЕДЕНИЕ

В отработавшем топливе атомных электростанций всего мира к 2010 г. накопится около 250 т долгоживущего ^{99}Tc [1,2], особенности поведения которого в ядерном топливном цикле и окружающей среде не позволяют рассчитывать на легкое решение проблемы его надежной изоляции путем захоронения. Технеций обладает высокими миграционными способностями как в атмосфере, куда он может попадать в виде летучего оксида Tc_2O_7 при остекловании отходов [3,4], так и в природных водах, поскольку основная химическая форма нахождения ^{99}Tc в воде пертехнетат-анион TcO_4^- слабо гидратируется и обладает крайне низкими сорбционными способностями по отношению к наиболее распространенным минералам, грунтам и почвам, не содержащим Fe(II) и других восстановителей [5,6]. Такое поведение технеция в сочетании со значительными факторами переноса из почвы в растения [7] позволяет считать его одним из наиболее проблемных компонентов радиоактивных отходов.

Отмеченные свойства ^{99}Tc являются веским аргументом для разработки радикального способа его обезвреживания – трансмутации, продукт которой платиноид рутений, имеющий высокую цену около \$30 за грамм [8], используется в основном в электронной и электротехнической промышленности. Содержание рутения в земной коре оценивается на уровне $\sim 10^{-7}$ % массы [9], разведанные мировые запасы невелики – всего 3100 т [10], а объем продаж составляет около 8 т/год и близок к скорости на-

© А.А. Козарь, В.Ф. Перетрухин, 1999

* Доклад на X Международной конференции Ядерного общества России (Обнинск, 28 июня-2 июля 1999 г.)



ЯДЕРНОЕ ОБЩЕСТВО РОССИИ

копления ^{99}Tc в отработавшем топливе атомных электростанций [11,12], что, впрочем, является совершенно случайным совпадением. В связи с быстрым развитием соответствующих отраслей как наработка ^{99}Tc , так и масштабы использования рутения имеют тенденцию к росту, поэтому вряд ли стоит опасаться перенасыщения рынка рутения и падения цен на него. Этим определяется необходимость разработки методов извлечения из продуктов трансмутации ^{99}Tc достаточно чистого рутения с целью его дальнейшего широкого использования.

СОДЕРЖАНИЕ ^{99}Tc В Ru, ДОПУСКАЕМОЕ РАДИАЦИОННЫМИ НОРМАМИ

Сфера применения любого металла после переработки не ограничена при остаточной удельной активности по β -нуклидам менее 10^{-7} Ки/кг, если же эта величина лежит в диапазоне от 10^{-7} Ки/кг до $5 \cdot 10^{-7}$ Ки/кг, металл может быть использован только в атомной промышленности и ядерной энергетике [13].

Соответствующие этим случаям граничные концентрации ^{99}Tc составляют $5.88 \cdot 10^{-6}$ г/кг Ru и $2.94 \cdot 10^{-5}$ г/кг Ru. Вследствие загрязнения мишеней ^{99}Tc актиноидами дополнительный вклад в β -активность Ru могут вносить образующиеся при облучении мишеней продукты деления, большинство из которых, однако, отделяются от рутения заметно легче технеция, а их общее весовое содержание в облученном материале будет на много порядков меньше концентрации ^{99}Tc . Проблема же ^{106}Ru , а также остатков других короткоживущих осколков решается путем выдержки мишеней в течение 1 – 10 лет [12].

Так как Ru часто используется в концентрациях до 10% в составе других материалов, например, для придания твердости платине и палладию, то для этой области применения требования к его чистоте могут быть снижены на порядок и более, если производство товарного материала будет осуществляться на предприятиях атомной промышленности.

Кроме того, ограниченное применение Ru в ядерной области, по-видимому, возможно уже в том случае, когда его поверхностная β -активность будет ниже допустимых норм для поверхности рабочих помещений и оборудования в атомной промышленности (2000β -частиц/(см²*мин)). Проведенные измерения β -активности сплавов Ru с ^{99}Tc с концентрацией последнего 80, 50 и 20% на образцах с толщиной много больше пробега β -частиц показали, что выход β -частиц с поверхности зависит от содержания ^{99}Tc практически линейно – ожидаемый факт, связанный с близостью зарядов и атомных масс данных элементов, а также плотностей соответствующих металлов. Этим была подтверждена обоснованность сделанной ранее на базе такого предположения оценки допустимого для рассматриваемого случая остаточного содержания ^{99}Tc на уровне не более 10^{-2} г/кг Ru [11,12].

РАСЧЕТ СОДЕРЖАНИЯ ^{99}Tc В Ru В ПРОЦЕССАХ ИХ РАЗДЕЛЕНИЯ

Начальной очисткой Ru от ^{99}Tc является само нейтронное облучение, поскольку при выгорании q относительное содержание ^{99}Tc в Ru уменьшается до $(q^{-1}-1)$. Дальнейшее разделение ^{99}Tc и Ru может осуществляться многими способами, преимущественно радиохимическими. Определяя для i -того способа (но не цикла) разделения коэффициент очистки k_i как отношение весового содержания ^{99}Tc в Ru до и после процесса, в результате нескольких методов очистки, каждый из которых применяется j_i раз, получим концентрацию ^{99}Tc в целевом материале:



$$C_{Tc} = (q^{-1} - 1)/K, \quad (1)$$

где $K = \prod_i (k_i)^{j_i}$ – полный коэффициент послереакторной очистки.

ВЫГОРАНИЕ ^{99}Tc

Числитель в выражении (1) довольно сильно зависит от выгорания, поэтому выбор его оптимального значения заметно влияет на определение необходимой величины полного фактора очистки (рис.1) и может основываться, в частности, на оценке затрат нейтронов на трансмутацию ^{99}Tc .

Одним из критериев при оптимизации выгорания мишени следует считать приемлемость соотношения между паразитными реакциями захвата нейтронов ядрами $^{100-102}\text{Ru}$ и полезной реакцией захвата нейтронов ядром ^{99}Tc , которое в задачах о наработке нуклидов обычно рассматривается отдельно для тепловых и резонансных нейтронов [14]. Однако в связи с необходимостью экономии нейтронов при полномасштабной реализации концепции трансмутации, в данном случае более обоснованно вести расчет по всему спектру:

$$\delta = \left[\sum_i (\sigma_i^{\text{Ru}} + \gamma I_i^{\text{Ru}}) c_i^{\text{Ru}} \right] / \left[(\sigma^{\text{Tc}} + \gamma I^{\text{Tc}}) C_{\text{Tc}} \right],$$

где σ_i^{Ru} , I_i^{Ru} , c_i^{Ru} – сечение захвата тепловых нейтронов, резонансный интеграл и относительное содержание в мишени для ядер Ru i -го вида, соответственно, σ^{Tc} , I^{Tc} , C_{Tc} – аналогичные параметры для ^{99}Tc , γ – жесткость нейтронного спектра. В энергетических тепловых и слабрезонансных реакторах, таких как РБМК, ВВЭР-400, ВВЭР-1000, жесткость спектра лежит в пределах 0.1–0.5 [14]. С учетом более высокой величины резонансного интеграла (340 барн) по сравнению с сечением захвата тепловых нейтронов ядром ^{99}Tc (20 барн) и соответствующего уменьшения жесткости спектра в мишени нижняя граница интервала возможных значений γ , усредненных по ее объему и выгоранию, может быть установлена на уровне 0.05.

Несмотря на широту рассматриваемого диапазона изменения величины γ , при выгораниях точечной мишени до 90% соотношение между паразитными и полезными реакциями $\delta = \delta(q, \gamma)$ слабо зависит от жесткости спектра, которая на рис.2 рассматривается в качестве параметра. Это означает, что и в различных точках объемной мишени относительные по-

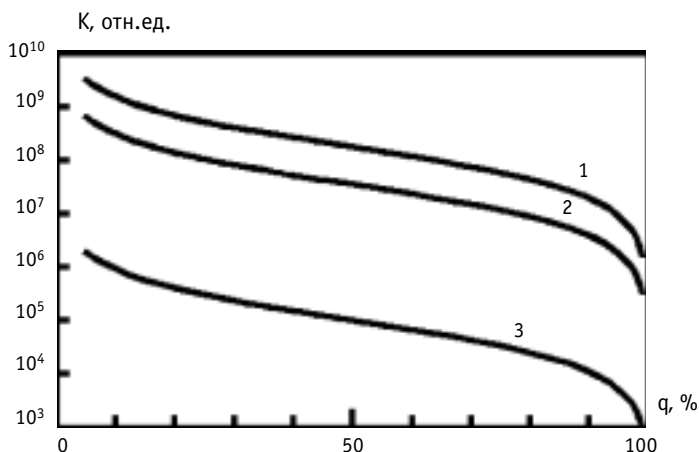


Рис.1. Необходимая величина коэффициента послереакторной очистки в зависимости от выгорания ^{99}Tc для случаев использования рутения: 1 – без ограничений; 2 – в атомной промышленности; 3 – по принципу ограничения поверхностной β -активности нормами для оборудования в атомной промышленности

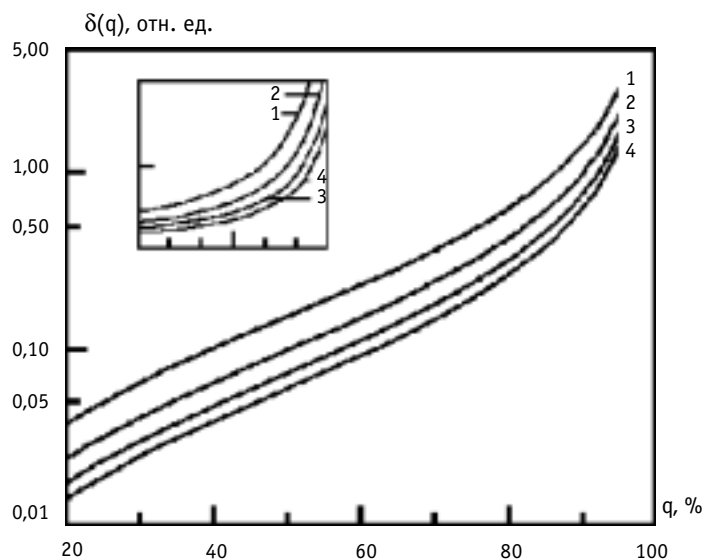


Рис.2. Зависимость отношения паразитных реакций захвата нейтронов к полезной от выгорания ^{99}Tc в спектре с жесткостью: 1 – 0.05; 2 – 0.15; 3 – 0.3; 4 – 0.5

тери нейтронов близки. Точки перегиба графиков функции $\lg \delta(q)$ или, что то же самое, построенных в полулогарифмическом масштабе графиков $\delta(q)$, для жесткости спектра $\gamma=0.05-0.5$ найдены в интервале выгораний 48.9 – 49.8%. При дальнейшем облучении рост функции паразитного захвата $\delta(q)$ становится быстрее экспоненциального, что может служить основанием для остановки трансмутации в районе значений выгорания ^{99}Tc около 50% с последующим выделением Ru и регенерацией мишени.

В пользу такого планирования кампании облучения свидетельствует и тот факт, что полезное потребление нейтронов, будучи пропорциональным концентрации топлива в мишени, уменьшается в два раза после достижения выгорания около 50%, а освобождающаяся часть нейтронов расходуется на реакции захвата регулирующей системой и продуктами трансмутации.

Область более высоких выгораний может представлять интерес при организации кампании с непрерывной дозагрузкой свежего ^{99}Tc , т. е. когда части составной мишени, возможно, как вариант, даже жидкой, представляющей собой раствор или расплав солей [15–17], по мере их выгорания перемещаются в районы с более высоким потоком. Тогда нейтроны, не поглощенные в имеющей высокое выгорание части мишени, будут использованы в частях с низким выгоранием.

В указанном случае облучения составной мишени заслуживает внимания область выгораний свыше 90%, где более полную картину поведения $\delta(q)$ дает построение кривых в линейном масштабе. В отсутствие каких-либо характерных точек выбор оптимального значения выгорания может базироваться на исследовании кривизны графиков функции $\delta(q)$, вычисляемой как $(d^2\delta/dq^2)/[1+(d\delta/dq)^2]^{3/2}$. Быстрое возрастание кривизны означает резкое увеличение скорости роста функции паразитного захвата. Для рассматриваемого отрезка жесткости спектра $\gamma=0.05-0.5$ точки наибольшего ускорения, максимальной скорости роста и сами максимумы кривизны соответствующих графиков лежат в интервале выгораний $q=93-98\%$. Поэтому в качестве примерного ориентира для выгрузки выгоревшей части твердой мишени или достижения выхода из реактора фронтом жидкой следует принять значение $q \approx 95\%$.

Требования высокого выгорания ^{99}Tc диктуются не только задачей снижения фактора очистки рутения, но и возможностью уменьшения числа циклов облучения q^{-1} , достаточного для сжигания начальной загрузки, а также необходимых производствен-



ных мощностей по радиохимической переработке облученных мишеней [12]. В то же время расчеты сжигания ^{99}Tc показали неэффективность решения данной проблемы в различных типах энергетических реакторов – при загрузках 2.5–4 т ^{99}Tc и скорости его трансмутации 100–140 кг/год периоды полусжигания составили бы 15–25 лет [18]. При длительности кампании 3 года это соответствует выгоранию 10–15% и требует для сжигания начальной загрузки $q^{-1}=7\text{--}10$ циклов облучения, а также создания в мировой радиохимической промышленности мощностей по рециклированию более 50 т ^{99}Tc в год [12]. Результаты экспериментов по примерно полугодовому облучению технециевых цилиндров диаметром 6 мм на исследовательском реакторе в Петтене (Нидерланды) также не слишком обнадеживают – полученное выгорание ^{99}Tc составило всего около 6% [19]. Тем не менее ошибочно было бы считать, что трансмутация ^{99}Tc возможна лишь при создании специализированных реакторов или ускорителей с очень высоким уровнем плотности потока тепловых нейтронов. Действительно, в проектах по совместному сжиганию актиноидов и продуктов деления, включая ^{99}Tc , предполагалось использовать потоки, близкие к $10^{15}\text{ см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ [15–17,20,21], однако эти требования были обусловлены возможностью более быстрого по сравнению с ростом потока увеличения скорости трансмутации актиноидов, в основном преобладающего среди них ^{237}Np [16,22,23]. В этом случае автоматически удовлетворялись и условия чрезвычайно эффективного сжигания ^{99}Tc , а также ^{129}I , так что соответствующие трансмутационные устройства являлись бы поистине универсальными, обеспечивающими утилизацию всего спектра радионуклидов – кандидатов на сжигание. Однако уничтожение собственно ^{99}Tc не требует столь высоких нейтронных потоков, получение которых на самом деле является сложнейшей технической задачей.

Для ускорения трансмутации ^{99}Tc более важным является не столько повышение плотности потока нейтронов, сколько формирование благоприятного спектра с высоким относительным содержанием нейтронов с энергией основных резонансов ^{99}Tc , находящихся в районе 2 – 20 эВ. Так, для одновременного достижения равных выгораний точечных мишеней ^{99}Tc при облучении в спектрах с жесткостью 0.5 и 0.05 требуемые уровни общего потока отличаются примерно в 5 раз. Мишень ^{99}Tc с характерным размером 5 мм выгорит наполовину за стандартное время проведения кампании 3 года в спектре с типичной для энергетических тепловых реакторов жесткостью 0.3 при плотности нейтронного потока около $3\cdot 10^{14}\text{ см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ [12], создание которой в достаточно большом объеме вполне реально. Именно поэтому возможность наработки товарного рутения путем трансмутации ^{99}Tc заслуживает серьезного внимания.

ВЫБОР СПОСОБОВ РАЗДЕЛЕНИЯ ^{99}Tc И Ru

Разделение ^{99}Tc и Ru ранее изучалось в связи с необходимостью выделения ^{99}Tc из состава радиоактивных отходов, а полученные факторы очистки ^{99}Tc от Ru для различных методов находились в диапазоне $2\cdot 10^3\text{ -- }10^5$ [24]. Однако в указанном случае решалась задача, несколько отличающаяся от рассматриваемой, а информация по разделению весовых количеств этих элементов практически отсутствует. Можно лишь заметить, что коэффициенты очистки обычно зависят от взаимной концентрации разделяемых материалов с тенденцией к уменьшению при снижении содержания отделяемой примеси, а их ожидаемые для весовых количеств технеция и рутения значения лежат в пределах $10^2\text{ -- }10^4$. При этом, как правило, затраты на опера-



цию растут быстрее увеличения величины фактора очистки.

С учетом оптимизации значений выгорания технеция, полный коэффициент послереакторной очистки K должен составлять $1.7 \cdot 10^8$ для $q=50\%$ и менее $1.9 \cdot 10^7$ для $q>90\%$ ($K=9 \cdot 10^6$ для $q \approx 95\%$) в случае использования Ru без ограничений, уменьшаясь в 5 раз при применении материала в атомной отрасли (рис.1). Следовательно, для получения товарного рутения необходимы два-четыре цикла его очистки от ^{99}Tc , и из нескольких способов разделения можно составить довольно много удовлетворяющих поставленным условиям комбинаций, отличающихся не только набором методов, но и последовательностью их применения.

Для применения рутения в ядерной энергетике по принципу ограничения поверхностной β -активности металла необходимая степень чистоты может быть достигнута после одного-двух циклов разделения его с ^{99}Tc с полными факторами очистки $K \approx 10^5$ при выгорании $q=50\%$ и $K \approx 5 \cdot 10^3$ при $q=95\%$.

Очевидно, что полный фактор послереакторной очистки K изменяется дискретным образом и может принимать лишь определенный ряд значений. Поскольку получение материала с чистотой, заметно превышающей необходимый уровень, экономически нецелесообразно, плавную регулировку величины Tc с целью подгонки ее к заданному значению можно осуществлять, варьируя числитель соотношения (1), т.е. выгорание мишени.

Следует также отметить, что высокая чистота целевого продукта не может быть достигнута в случае непрерывной организации процесса переработки облученных мишеней – его начальная и заключительная (аффинаж) стадии должны проводиться в отдельных помещениях с существенно различным уровнем требований по нормам допустимого загрязнения радионуклидами.

ОЧИСТКА Ru ОТ МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ СПЛАВОВ

При высоких выгораниях мишеней заметной становится наработка короткоживущего ^{103}Ru , распадающегося в родий, незначительная часть которого успевает перейти за время кампании в палладий. Относительное содержание указанных примесей после годичной выдержки мишеней зависит от жесткости нейтронного спектра при облучении: для $\gamma=0.05$ при выгораниях 50 и 95% оно, соответственно, составит $\sim 10^{-5}$ и $\sim 2 \cdot 10^{-3}$, уменьшаясь примерно в 5 раз для $\gamma=0.5$.

Сами возникающие в процессе трансмутации и при дальнейшей выдержке мишеней изотопы родия и палладия являются короткоживущими или стабильными и напрямую не влияют на радиохимическую чистоту рутения. Однако, будучи соседями по Периодической таблице с Tc и Ru и имея близкие с ними химические свойства, Rh и Pd могут связывать основные продукты трансмутации за счет образования тройных сплавов Tc-Ru-Rh и Tc-Ru-Pd, главным образом первого из них из-за значительно более высокого содержания Rh по сравнению с Pd. Возникновение более сложных сплавов типа Tc-Ru-Rh-Pd вряд ли может быть достаточно заметным вследствие низких концентраций Rh и Pd. По-видимому, при разработке технологий очистки Ru можно также не учитывать образование многокомпонентных сплавов с участием осколков деления, поскольку химическое сродство большинства из них с продуктами трансмутации мало, а начальное загрязнение мишеней актиноидами задается низким, на уровне $\sim 10^{-10}$ г/г ^{99}Tc [12].

Концентрация образующихся при высоких выгораниях примесей родия и палладия превосходит допустимое остаточное содержание ^{99}Tc в Ru. Поэтому, если веро-



ятность образования указанных тройных сплавов будет заметной, то количество связанного в этих композициях ^{99}Tc может быть выше приемлемого уровня. Вследствие того, что платиноиды Rh и Pd по физико-химическим характеристикам ближе к Ru, чем к Tc, в разделяющихся потоках продуктов трансмутации тройные сплавы будут в основном сопутствовать рутению. В случае полного вхождения образовавшихся Rh и Pd в состав рассматриваемых химических соединений необходимые факторы очистки Ru от них в зависимости от выгорания и условий облучения должны составлять $10^2 - 10^5$. Учитывая слабую растворимость рутения и его многокомпонентных сплавов в кислотах, можно ожидать, что разделение Ru и связанного в этих соединениях ^{99}Tc станет отдельной довольно сложной проблемой и потребует введения в цикл очистки дополнительных специально ориентированных на эту задачу стадий.

ДОПУСТИМЫЕ ПОТЕРИ ^{99}Tc ПРИ РЕЦИКЛИРОВАНИИ МИШЕНИ

Цели трансмутации радиоактивных отходов до сих пор окончательно не сформулированы – учет всех значимых факторов является непростой проблемой и приводит к существенному разбросу подходов к этому вопросу. В качестве ориентира можно рассматривать простейший критерий снижения “индекса токсичности” при попадании отходов в организм человека с питьевой водой в $10^2 - 10^3$ раз, предложенный для оценки результатов трансмутации актиноидов [25]. Надо отметить, что непосредственно после сжигания актиноидов такой уровень уменьшения их опасности практически недостижим, поэтому данный критерий может применяться только с учетом отдаленных последствий хранения продуктов трансмутации. В отличие от актиноидов, для которых уже сама трактовка поставленной задачи представляет определенную сложность, в случае ^{99}Tc смысл указанной цели совершенно ясен: без учета возрастания радиационной нагрузки на персонал и оборудование перерабатывающих производств общие требования к схеме облучения и рециклирования мишеней сводятся к ограничению безвозвратных потерь ^{99}Tc в окружающей среде на уровне 0.1 – 1% его массы. С другой стороны, коэффициент качества α -излучения, испускаемого актиноидами, в 20 раз превосходит коэффициент качества β -частиц, источником которых является ^{99}Tc . Поэтому стремление к тысячекратному уменьшению присутствия этого нуклида в биосфере можно считать мерой, не вполне адекватной угрозе от него – достаточно ограничиться рассмотрением верхнего из указанных пределов потерь ^{99}Tc .

Если в i -том цикле очистки рутения относительные потери ^{99}Tc будут составлять w_i , то согласно определению коэффициентов очистки k_i суммарные относительные потери за один цикл регенерации мишени будут иметь вид:

$$w = \left[w_1 + w_2/k_1 + w_3/(k_1 \cdot k_2) + \dots + w_i / \left\{ \prod_{m=1}^{i-1} (k_m) \right\} + \dots \right].$$

Поскольку здесь i – номер цикла, а не способа разделения, то возможным является случай, когда $k_{i+1} = k_i$. Очевидно также, что полного соответствия между потерями и коэффициентом разделения может не быть, т.к. даже в случае многократного применения одного метода очистки рутения с практически неизменным коэффициентом разделения относительные потери ^{99}Tc будут иметь тенденцию к росту при снижении его концентрации. Однако, учитывая, что по порядку величины $k_i > 10^2$ и $w_i < 10^{-2}$, с погрешностью около 10^{-2} % можно считать, что $w = w_1$, т. е. суммарные потери за один цикл регенерации мишени определяются потерями первого цикла послереакторной



очистки рутения. Отсюда следует, что во избежание высоких потерь технеция в виде летучего оксида Tc_2O_7 первый из применяемых в разделении Ru и ^{99}Tc способов не должен основываться на различной летучести соединений этих элементов.

Если при выделении ^{99}Tc из отработавшего топлива его относительные потери равны w_0 , то в трансмутационной части ядерного топливного цикла за счет рециклирования мишеней они составят:

$$W = w(1 - w_0)(1 - q) / [1 - (1 - q)(1 - w)]. \quad (2)$$

Полные потери трансмутируемого радионуклида в замкнутом топливном цикле:

$$W_{\Sigma} = W + w_0 = [qw_0 + w(1 - q)] / [1 - (1 - q)(1 - w)] = 1 - q(1 - w_0) / [1 - (1 - q)(1 - w)]. \quad (3)$$

Снижение потерь при выделении ^{99}Tc из смеси различных химических элементов, какими являются радиоактивные отходы, сложнее задачи их уменьшения в методах разделения двух элементов – Ru и ^{99}Tc , поэтому вероятно, что $w_0 > w$, и имеет место соотношение $w_0 = kw$, где $k > 1$ – кратность уменьшения потерь при переходе в трансмутационную ветвь топливного цикла. При исследовании сжигания актиноидов обычно рассматривают случай $w_0 = w$ ($k=1$), поскольку отработавшее топливо и облученные мишени схожи по составу, и задачи выделения этой фракции сравнимы по сложности. Тогда выражения (2) и (3) переходят в формулы $W = w / \{[(1 - q)(1 - w)^{-1}] - 1\}$ и $W_{\Sigma} = w / [1 - (1 - q)(1 - w)]$ соответственно [23,26].

Величина W фактически есть характеристика первого из способов очистки рутения от технеция, однако стремление к ее уменьшению за счет снижения значения $w_1 \approx w$ имеет смысл только до тех пор, пока W и w_0 не сравняются по порядку величины. Следовательно, проблема получения искусственного рутения связана не только с разработкой экологически чистых способов его разделения с технецием, но и с созданием такой же безопасной для окружающей среды технологии выделения ^{99}Tc из отработавшего топлива. В настоящее время не существует промышленных решений, необходимых для радиохимического обеспечения трансмутации ^{99}Tc – опыт его выделения из состава радиоактивных отходов носит эпизодический характер, а разделение весовых количеств технеция и рутения практически отсутствует. Поэтому актуальной является оценка допустимых относительных потерь ^{99}Tc – как ориентир для разработки соответствующих технических требований.

Поскольку $w < 1\%$, выражение (3) можно записать как $W_{\Sigma} = w(q^{-1} + k - 1)$, откуда $w = W_{\Sigma} / (q^{-1} + k - 1)$. Кроме рекомендованных выше величин выгорания 50 и 95%, интерес представляют максимальное расчетное для случая трансмутации ^{99}Tc в энергетических реакторах значение $q = 15\%$ [18] и значение $q = 30\%$, которое могло бы быть

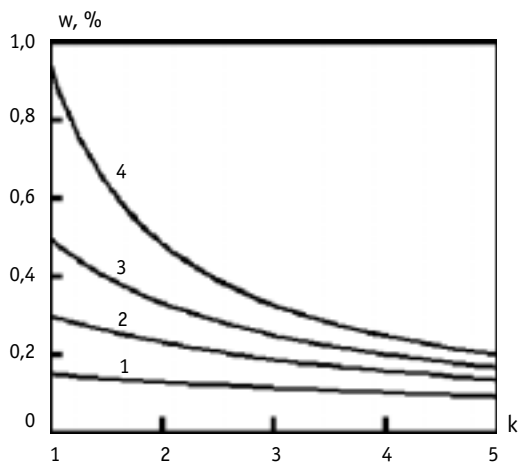


Рис.3. Зависимость допустимых безвозвратных потерь ^{99}Tc за один цикл регенерации мишени w от отношения к ним потерь ^{99}Tc при извлечении из отработавшего топлива $k = w_0/w$ в случае ограничения суммарных потерь W_{Σ} величиной 1% для выгораний: 1 – 0.15; 2 – 0.3; 3 – 0.5; 4 – 0.95



ЯДЕРНОЕ ОБЩЕСТВО РОССИИ

достигнуто на реакторе в Петтене при продлении кампании облучения ^{99}Tc до трех лет [19]. Вполне разрешимой можно считать задачу снижения потерь ^{99}Tc при очистке рутения до величин $w=0.3 - 0.5\%$, поэтому при ограничениях $W_{\Sigma}<1\%$ и $k=w_0/w>1$ область выгораний $q<30\%$ из рассмотрения исключается, и для практически реальной ситуации $k=2-5$ поставленные условия могут удовлетворяться при выгораниях от 50% (рис.3).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, необходимые для получения товарного рутения путем трансмутации ^{99}Tc характеристики облучательных устройств и технологий по разделению этих элементов не требуют для своего достижения каких-либо революционных прорывов в атомной науке и технике, так что осуществление подобной схемы следует рассматривать как перспективу ближайшего будущего. При замыкании ядерного топливного цикла и реализации полномасштабного сжигания ^{99}Tc рыночная цена всего получаемого рутения составила бы сегодня около \$200 млн./год. Хотя требующиеся для создания трансмутационных устройств вложения примерно на порядок выше [16], срок окупаемости подобных проектов за счет продаж рутения можно оценить как не столь уж отдаленный. Следует также учесть, что перевод уже наработанного к настоящему времени ^{99}Tc в рутений мог бы дать около \$7 млрд. С другой стороны, прямое сравнение расходов на производство ядерного и рудного рутения нельзя признать достаточно корректным, поскольку само обезвреживание ^{99}Tc является вынужденным и практически не имеющим альтернативы. Поэтому затрачиваемые на него средства должны быть включены в стоимость производимой на атомных электростанциях энергии как требующиеся для обеспечения экологической безопасности отрасли. В этом случае фактической стоимостью получения ядерного рутения следует считать затраты на создание производств по его очистке. Поскольку рудный рутений даже после многоступенчатой очистки содержит примеси сопутствующих металлов, в основном меди и никеля, следует ожидать, что ядерный рутений по ряду параметров будет заметно чище рудного, а новый способ производства этого платиноида станет конкурентноспособным. Кроме того, учитывая ограниченность мировых запасов рутения в рудах и неизбежность повышения его стоимости при будущем освоении все менее доступных и менее богатых месторождений, трансмутация ^{99}Tc может стать практически неисчерпаемым источником ценного платинового металла, позволяющим сократить его природную добычу.

Список литературы

1. Kusters H., Kienzier B., Kolarik Z. *e.a.* The nuclear fuel cycle for transmutation: critical review. Proceedings of International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems "GLOBAL-95" (September 11-14, 1995, Versailles, France). - 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. Cains P.W., Yewer K.C., Waring S. Volatilization of Ruthenium, Caesium and Technetium from Nitrate Systems in Nuclear Fuel Processing and Waste Solidification//Radiochimica Acta.-1992.-V. 56.-P. 99-104.
4. Демин А.В., Федорова М.И., Матюнин Ю.И. Локализация элементов платиновой группы и технеция при отверждении жидких высокоактивных отходов//Атомная энергия.-1996.-Т.80.-Вып.3.-С.179-183.



5. Hoshikawa T., Sasahira A., Fukasawa T., et. al. Volatilization of Technetium from Reprocessing Solutions//Journal of Nuclear Science and Technology.-1996.-V.33-№9-Р. 728-730.
6. Кумата М., Вандерграаф Т.Т. Экспериментальное изучение миграции технеция в глубинных геологических условиях//Радиохимия.-1997.-Т.39.-Вып.4.-С.313-315.
7. Янагисава К., Мурамацу И. Перенос технеция из почвы в растения// Радиохимия.-1997.-Т.39.-Вып.4.-С.316-320.
8. Handbook of Chemistry and Physics/Editor D. R. Lide.-CRC Press, 1996.
9. Эмсли Дж. Элементы (пер. с англ.)-М.:Мир, 1993.-256 с.
10. Ренард Э.В, Величко А.В. Труднорастворимые остатки и осадки водно-экстракционной технологии регенерации отработавшего топлива АЭС (ПУРЕКС-процесс) как стратегический источник техногенных (осколочных) благородных металлов//Атомная техника за рубежом.-1993.-№9.-С.3-9.
11. 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.
12. Козарь А.А., Перетрухин В.Ф. Трансмутация ^{99}Tc как новый источник стабильного рутения./Радиохимия.-1997.-Т.39.-Вып.4.-С.294-299.
13. Ильин Л.А., Кириллов В.Ф., Коренков И.П. Радиационная безопасность и защита: Справочник.-М.: Медицина, 1996.-336 с.
14. Герасимов А.С., Зарицкая Т.С., Рудик А.П. Справочник по образованию нуклидов в ядерных реакторах.-М.: Энергоатомиздат, 1989.-575 с.
15. Благоевлин П.П., Казарицкий В.Д., Киселев Г.В. и др. Трансмутация долгоживущих радиоактивных отходов ядерной энергетики//Атомная энергия.-1991.-Т. 70.-Вып. 6.-С. 380-386.
16. Сивинцев Ю.В. Трансмутация радиоактивных отходов с помощью ускорителей//Атомная техника за рубежом.-1992.-№2.-С.3-9.
17. Бергельсон Б.Р., Балюк С.А. Концепция двухцелевой электроядерной установки//Атомная энергия.-1996.-Т. 80.-Вып. 3.-С. 162-167.
18. Kloosterman J.L., Li J.M. Transmutation of Tc-99 in fission reactors/ 3rd International Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation. (December 12-14, 1994. Cadarache, France). 1994. -12 p.
19. Konings R.J.M., Franken W.M.P., Conrad R.P. et. al. Transmutation of technetium and iodine – irradiation tests in the frame of the EFTTRA cooperation// Nuclear Technology.-1997.-V.117.-P.293-298.
20. Skalberg M., Liljezin J.-O. Partitioning and transmutation: the state of the art//Nucl. Eng. Intern.-1993.-V. 38.-№ 463.-P. 30-33.
21. Baudin G., Prunier C., Salvatores M. Le programme ACTINEX//Revue Generale Nucleaire.-1992.-№5.-P. 408-413.
22. 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.
23. Козарь А.А. Повышение экологической безопасности отходов после облучения актиноидов тепловыми нейтронами//Атомная энергия.-1993.-Т. 75.- Вып. 3.-С. 188-194.
24. Лаврухина А.К., Поздняков А.А. Аналитическая химия технеция, прометия, астатина и франция.-М.: Наука, 1966.-308 с.
25. McKay A. Destroying Actinides in Nuclear Reactors//Nuclear Engineering International.-1978.-V.23.-№ 266.-P.40-43.
26. Козарь А.А. Некоторые радиохимические особенности способов трансмутации малых актиноидов/Вторая Российская конференция по радиохимии (Дмитровград, 27-31 октября 1997): Тезисы докладов. -1997.-С. 114-115.

Поступила в редакцию 30.08.99.

and Superphenix design concept fuelled with UN-PuN. These results can be useful for the design of new generation of nuclear reactors.

УДК 621.039.514.4

Tests of Digital Reactimeter with 15 Groups of Delayed Neutrons in Experiments on ZPR \ Yu.V. Volkov, T.G. Petrosov, D.A. Klinov, V.F. Ukraintsev, Ya.V. Slemenitchs, M.Moniri; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 1999. – 10 pages, 5 illustrations, 5 tables. – References, 2 titles.

The mathematical model of the reactimeter for low power heavy water reactor with using of 15 groups of delayed neutrons is described. Realization of this model on the personal computer in the on-line option is also described. Results of the reactimeter testing and improving its operating regimes by using a signals filter and different delayed neutron data sets are presented.

УДК 536.248: 532.5: 621.039.52

Hydrodynamics and Heat Generation in a Liquid Vertical Eutectic Jet as a Target for the Intense Neutron Source \ E.F.Avdeev, S.L.Dorokhovitch; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 1999. – 7 pages, 4 illustrations. – References, 8 titles.

As the target of high-power spallation neutron source the vertical jet of melted lead-bismuth eutectics directed towards to the beam of protons is considered. Locking up vacuum chamber of the accelerator is offered to be realized using the supersonic jet of an inert gas. The computational estimations of gas leakage to the vacuum chamber are given. The analytical solution of a magnetohydrodynamic task and the determination of jet borders using approximation of flow is given. The thermal power of the target, distribution of temperature along the height of the jet and the neutron yield for choosed parameters of protons beam are calculated.

УДК 536.242

On the Basic Regularities of Crisis of Heat Exchange in Water Cooled Channels \ V.P. Bobkov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 1999. – 6 pages. – References, 14 titles.

The regularities for critical heat flows in channels cooled with boiling water are discribed. Accent is put on the solution of a problem of influence of various factors on crisis in complex channels. The developed semiempirical model for treating critical heat flows in channels is used. The detected obtained have allowed to receive new approaches to prediction of critical heat fluxes in channels.

УДК: 621. 039. 534.63

Some results of Experimental Studies of Evaporation-cooled Reactor Fuel Rod Operation Modes in Single-rod Three-circuit Model \ V.N. Bogomolov, V.N. Lopatinsky, V.N. Zamiussky, V.M. Ryaby; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 1999. – 6 pages, 3 illustrations. – References, 6 titles.

Some results of experimental studies on fuel rod heat removal obtained on physical three-circuit single-rod model which simulated evaporation-cooled reactor cooling system with sodium as a coolant are presented in this work. They give new insight into the problems of designing of sodium reactor installations with evaporation cooling.

УДК 546.718:621.039.7:539.174

Ruthenium as a 99Tc Transmutation Product: Necessary Separation Factor for Use \ A.A. Kozar, V.F. Peretroukhin; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 1999. – 10 pages, 3 illustrations. – References, 26 titles.

The process of preparation of stable ruthenium as platinum group metal by 99Tc transmutation is considered. On the basis of the analysis of parasitic capture of neutrons in targets it is shown

that irradiation should be made up to burning out of 50 or 95%, then two-four cycles of radiochemical purification of ruthenium are necessary with the complete separation factor of 104 – 108 for various fields of its further application. It is shown, that the relative ^{99}Tc environmental losses are determined by the first cycle of Ru purification and should be equal to about 0.5% if permissible total losses are 1%.

УДК 621.039.51

Applicability of Accelerator-Driven Systems to Enhancement of MOX-Fuel Proliferation Resistance by Creating a Radiation Barrier \ V.B. Glebov, A.E. Sintsov, A.N. Shmelev, V.A. Apse; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 1999. – 6 pages, 1 illustration. – References, 9 titles.

The results are presented on evaluating the potential capability of an accelerator-driven system (ADS) to enhance proliferation resistance of MOX fuel sub-assemblies for power light-water reactors by short-term irradiation in the ADS blanket. Such an irradiation makes it possible to create inherent radiation barrier against unauthorized diversion and illegal use of plutonium-containing fuel.

УДК 621.039.574

An Analysis of Process of Getting Equilibrium Mode of Transmutation of ^{135}Cs \ V.A. Apse, A.N. Shmelev, G.G. Kulikov, M. Saito, V.V. Artisyuk; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 1999. – 5 pages, 2 illustrations. – References, 4 titles.

The process of getting the mode of equilibrium transmutation of the long-lived radionuclide ^{135}Cs is considered within the framework of two alternate approaches, namely with eduction ^{135}Cs from the mixture of isotopes of element caesium as the fission product and without radioactivity partitioning. It is offered to utilize duration of the transient period as one of criteria of expediency of development and industrial assimilation of technologies of the transmutation of radioactive wastes. It is shown that the time delay with unfolding of system transmutators of ^{135}Cs can noticeably reduce duration of the transient period.