

ОБ ИММОБИЛИЗАЦИИ ТЕХНЕЦИЯ В КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ МАТРИЦАХ**Юдинцев С.В., Омеляненко Б.И. (ИГЕМ РАН)**

syud@igem.ru; факс: (499) 951 15 87; тел.: (499) 230 82 82

Ключевые слова: *Технеций, иммобилизация, кристаллические матрицы, самораспространяющийся высокотемпературный синтез*

^{99}Tc (период полураспада 213000 лет) относится к долгоживущим продуктам деления с высокой экологической опасностью. Это связано с растворимостью его семивалентной формы в воде и способностью к миграции в виде TcO_4^- . В ОЯТ он находится преимущественно в виде сплава с Мо и легкими платиноидами. Эта фаза химически устойчива, что определяет низкую скорость выщелачивания Тс из ОЯТ, особенно в условиях отрицательных значений Eh. При переработке облученного ядерного топлива значительная часть (до 90%) Тс выделяется в виде отдельной фракции. Оставшееся его количество вместе с другими радионуклидами отверждают в стеклах. Эти матрицы имеют низкую устойчивость – скорость выщелачивания из них Тс превышает $10^{-2} \text{ г/м}^2 \cdot \text{сут}$, что в сотни раз хуже устойчивости ОЯТ. В слабощелочных восстановительных водах, наиболее вероятных для подземных хранилищ ОЯТ и ВАО, технеций восстанавливается до четырехвалентной формы. Это ведет к снижению его содержания до $\sim 10^{-8} \text{ М/л}$, отвечающих растворимости $\text{TcO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ и на порядок меньших предельно допустимой концентрации в воде. Поэтому основная часть технеция, выщелоченного из стекломатрицы, будет осаждена вблизи хранилища отходов. Актуальной задачей является проблема обращения с Тс, находящимся в виде самостоятельной фракции. Для иммобилизации таких отходов предлагаются цементы, сплавы и кристаллические материалы. Последние отличаются высоким содержанием технеция и химической устойчивостью. Это позволяет рассматривать их в качестве матриц для изоляции тех нескольких тонн ^{99}Tc , которые каждый год образуются при регенерации ОЯТ. Главная трудность при изготовлении матриц – высокая летучесть соединений Тс и необходимость его перевода в Tc^{4+} , в виде которого он входит в титанаты, замещая близкий по размеру Ti^{4+} . Для обеспечения требуемого состояния синтез проводится горячим прессованием или холодным прессованием – спеканием в восстановительных условиях в герметичных контейнерах, что усложняет его реализацию.

Альтернативным способом изготовления матриц технеция является самораспространяющийся высокотемпературный синтез. Фазообразование при СВС протекает в режиме твердофазного горения за очень короткое время, что позволяет уменьшить потери летучих элементов из-за их испарения. Другие приемы снижения уноса Тс состоят в его введении в шихту не в форме Tc_2O_7 , а в сорбированном виде или как TcO_2 с меньшей летучестью. Рассмотрены особенности строения матриц, состоящих из титанатов и цирконатов со структурой пироклора, перовскита и рутила. Особое внимание уделено распределению Мо как имитатора Тс. Показана возможность включения в матрицы до 40 мас.% молибдена, который находится в них в виде металлической фазы и как примесь в структуре титанатных и цирконатных фаз. Наиболее рациональным подходом к проблеме утилизации Тс является его включение с использованием СВС вместе с актинидами или РЗЭ-актинидной фракцией, в пироклоровые матрицы [1]. В этом случае для стабилизации структуры пироклора часть или все количество титана в СВС шихте необходимо заместить на цирконий с большим радиусом. Имитаторы актинидов (РЗЭ, уран) входят в состав пироклора или кубического оксида с флюоритовой структурой. Для проверки предлагаемого способа иммобилизации ^{99}Tc необходимы специальные исследования с технецием.

Финансовая поддержка: грант РФФИ 08-05-00024-а

Литература.

1. Лаверов Н.П., Юдинцев С.В., Омеляненко Б.И. Об изоляции долгоживущего технеция-99 в консервирующих матрицах // Геология рудных месторождений. 2009. Т. 51. №4 (в печати).

Вестник Отделения наук о Земле РАН - №1(27) 2009

Информационный бюллетень Ежегодного семинара по экспериментальной минералогии, петрологии и геохимии 2009 года (ЕСЭМПГ-2009)

URL: http://www.scgis.ru/russian/cp1251/h_dgggms/1-2009/informbul-1_2009/geocol-15.pdf

Опубликовано 1 сентября 2009 г.

© Вестник Отделения наук о Земле РАН, 1997 (год основания), 2009

При полном или частичном использовании материалов публикаций журнала, ссылка на «Вестник Отделения наук о Земле РАН» обязательна