

НАУЧНАЯ СТАТЬЯ

УДК 621.039

**МОДИФИКАЦИЯ ПРОЦЕССА ВЫДЕЛЕНИЯ ЦЕЗИЯ ИЗ ПРОДУКТА
ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЙ ОБРАБОТКИ ОЯТ С ТРИОКСИДОМ
МОЛИБДЕНА**

Валентин Андреевич Болдаков¹, Сергей Степанович Погляд¹, Александр Степанович Корнилов¹, Ольга Сергеевна Дмитриева¹, Владимир Николаевич Момотов¹, Наталья Олеговна Позигун¹, Анастасия Андреевна Тельнова²

¹ Научно-исследовательский институт атомных реакторов, отделение радиохимических технологий

² Димитровградский инженерно-технический институт НИЯУ МИФИ, физико-технический факультет

Автор, ответственный за переписку: Валентин Андреевич Болдаков,
ValentineAndrBol@Yandex.ru

Аннотация. В целях снижения тепловыделения и удельной активности облученного ядерного топлива (ОЯТ) разработана технологическая схема процесса выделения фракции цезия из облученного топлива до его гидрометаллургической переработки. Схема включает высокотемпературную обработку (ВТО) ОЯТ с триоксидом молибдена, промывку продукта щелочным раствором для удаления цезия и последующее растворение топлива в азотной кислоте. Реализация этой технологии позволит снизить время выдержки ОЯТ в хранилищах и уменьшить радиационные нагрузки на персонал, оборудование и технологическую среду. В статье представлены результаты экспериментального обоснования выбора температуры процесса ВТО, сравнительного анализа эффективности промывочных растворов разного состава, а также установления продолжительности процесса фракционирования цезия. Исследования проводили в лабораторных условиях с применением имитаторов ОЯТ и радионуклидных меток.

Ключевые слова: ОЯТ, высокотемпературная обработка ОЯТ, цезий, радиоизотоп цезий-137, октаоксид триурана, триоксид молибдена, смешанные гексацианоферраты

DOI: 10.55959/MSU0579-9384-2-2024-65-5-413-423

Благодарности. Авторы выражают благодарность сотрудникам отделения радиохимических технологий АО «ГНЦ «НИИАР» за аналитическую и техническую поддержку проведенных исследований.

Финансирование. Исследования выполнены в рамках Комплексной программы инициативных, поисковых и задельных работ в научных организациях АО «Наука и инновации».

Для цитирования: Болдаков В.А., Погляд С.С., Корнилов А.С., Дмитриева О.С., Момотов В.Н., Позигун Н.О., Тельнова А.А. Модификация процесса выделения цезия из продукта высокотемпературной обработки ОЯТ с триоксидом молибдена // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 2. Химия. 2024. Т. 65. № 5. С. 413–423.

ORIGINAL ARTICLE

CESIUM SEPARATION FROM SPENT FUEL AND MOLYBDENUM TRIOXIDE JOINT HIGH TEMPERATURE TREATMENT PRODUCT PROCESS MODIFICATION**Valentin A. Boldakov¹, Sergey S. Poglyad¹, Alexander S. Kornilov¹, Olga S. Dmitrieva¹, Vladimir N. Momotov¹, Natalya O. Pozigun¹, Anastasia A. Telnova²**¹ Joint Stock Company «State Scientific Center – Research Institute of Atomic Reactors»² Dimitrovgrad Engineering and Technological Institute of the National Research Nuclear University MEPH, Faculty of Physic and Technology**Corresponding author:** Valentin A. Boldakov, ValentineAndrBol@Yandex.ru

Abstract. Technological scheme of cesium extraction from spent nuclear fuel before hydrometallurgical reprocessing is developing in order to decrease spent fuel heat dissipation and specific activity. The scheme includes spent fuel and molybdenum trioxide joint high temperature treatment, cesium removing by alkali solution product flushing and fuel dissolution in nitric acid. Technology realization will provide spent fuel cooling time reduction and radiation impact to personnel, furniture and solutions decrement. Sintering temperature, different flushing solutions efficiency and cesium fractioning duration researches results are presented in the article. Researches were providing in laboratory conditions with spent fuel imitators and radionuclide markers using.

Keywords: spent fuel, spent fuel high temperature treatment, cesium, cesium-137 radioisotope, triuranium octaoxide, molybdenum trioxide, mixed hexacyanoferrates

Acknowledgements. The authors express their gratitude to the staff of the Department of Radiochemical Technologies of JSC SSC NIIAR for the analytical and technical support of the conducted research.

Financial Support. The research was carried out within the framework of a comprehensive program of initiative, search and assignment work in scientific organizations of JSC «Science and Innovation».

For citation: Boldakov V.A., Poglyad S.S., Kornilov A.S., Dmitrieva O.S., Momotov V.N., Pozigun N.O., Telnova A.A. Cesium Separation from Spent Fuel and Molybdenum Trioxide Joint High Temperature Treatment Product Process Modification // Vestn. Mosk. un-ta. Ser. 2. Chemistry. 2024. T. 65. № 5. S. 413–423.

Увеличение глубины выгорания ядерного топлива в ходе топливной кампании в целях более эффективного использования энергоносителей создает ряд проблем, осложняющих переработку ОЯТ в соответствии с классическими технологиями обращения. Для перевода сильно выгоревшего ОЯТ в состояние, при котором его переработка по классическим схемам экономически оправдана, требуется его выдержка в хранилищах в течение периода до 10 лет [1]. Однако увеличение времени выдержки ОЯТ ведет к накоплению в его составе радиоизотопа Am-241, повышающего реактивность топлива, тогда

как переработка ОЯТ с низким временем выдержки осложняется высокими уровнями его тепловыделения и активности, обуславливающей радиолит технологических сред. Перечисленные проблемы можно решить путем предварительного обращения с ОЯТ для его подготовки к экстракционному переделу.

В качестве варианта предварительного обращения с ОЯТ предложена технологическая схема, позволяющая извлекать из его состава цезий. Изотопы Cs-134 и Cs-137, а также Ba-137m (дочерний продукт распада Cs-137) обуславливают 22,5% активности ОЯТ с выдержкой,

равной 2 годам, и 40,5% активности ОЯТ с выдержкой, равной 4 годам. Кроме того, указанные радионуклиды обуславливают 29,2% тепловыделения ОЯТ с выдержкой, равной 2 годам, и 52,7% тепловыделения ОЯТ с выдержкой, равной 4 годам [2]. Следовательно, предварительное выделение цезия из состава топлива позволит существенно снизить его тепловыделение и дозовые нагрузки. Такое топливо можно будет перерабатывать по классической схеме PUREX-процесса уже после трехлетней выдержки в хранилищах. В соответствии с предлагаемой схемой (рис. 1) ОЯТ после выгрузки из хранилища выдержки освобождается от оболочек ТВЭЛов, после чего спекается с триоксидом молибдена для перевода ядерных материалов и продуктов деления в состав молибдатов. Продукт спекания промывается раствором щелочи для растворения и удаления из его состава цезия и молибдена. Оставшиеся нерастворенными продукты деления и топливо растворяются в азотной кислоте и поступают на стадию экстракционного разделения. Цезий выделяется из щелочного промывочного раствора осаждением смешанных гексацианоферратов(II) цезия-магния, затем молибден осаждается в виде молибденовой кислоты

и поступает на регенерацию. Цель настоящей работы – обоснование оптимальных режимов предложенной схемы переработки с использованием имитаторов ОЯТ.

Обоснование выбора температуры процесса высокотемпературной обработки ОЯТ

Оценку влияния режима высокотемпературной обработки (ВТО) на результат обращения с топливом проводили путем сравнительного анализа двух параллельных экспериментов. В качестве имитатора ОЯТ в описываемых экспериментах использовали октаоксид триурана. Его применение обосновано тем, что разрабатываемая технология предполагает осуществление высокотемпературной обработки топлива в атмосфере воздуха. В таких условиях диоксид урана в составе топлива будет полностью или частично окисляться с образованием октаоксида триурана. Кроме того, в соответствии с описанной схемой может перерабатываться и волоксидированное топливо, в составе которого октаоксид триурана также присутствует.

В процессе исследования на лабораторных весах отбирали навески: октаоксида триурана (20,00 г) и триоксида молибдена (20,52 г).



Рис. 1. Принципиальная схема процесса переработки ОЯТ

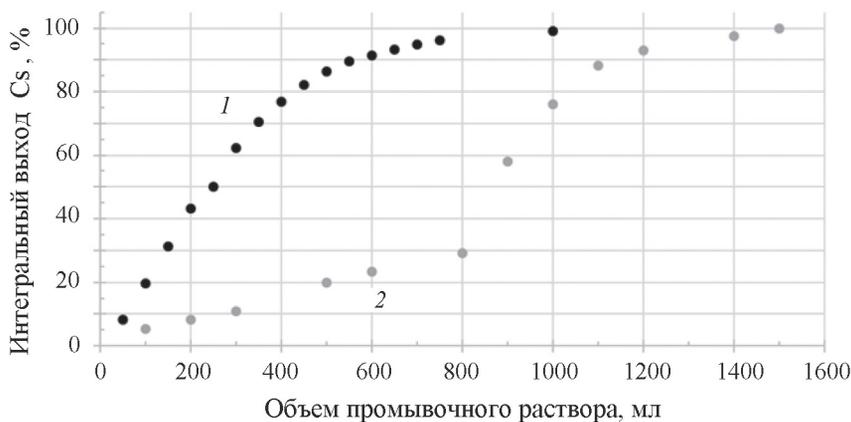


Рис. 2. Интегральный выход цезия в зависимости от объема промывочного раствора:
1 – спекание, 2 – плавление

Навески объединяли, а порошки перемешивали. Смесь порошков помещали в кварцевый тигель, пропитывали раствором хлорида цезия с меткой радиоиндикатора Cs-137 и перемешивали снова. Тигель с составом устанавливали в шахтной электрической печи сопротивления в целях проведения ВТО. В соответствии с этим алгоритмом осуществлены два параллельных эксперимента: в первом эксперименте в процессе ВТО осуществлялось плавление реакционной смеси при температуре 700 °С, во втором – спекание при температуре 650 °С [5]. По окончании процесса ВТО тигли с составами охлаждали в естественных условиях.

В целях извлечения фракции цезия из состава продуктов ВТО проводили промывку полученных плава и порошка 25%-м раствором аммиака [6]. Фракционирование цезия проводили поэтапно: на каждой стадии промывки в тигель с продуктом вносили порцию промывочного раствора, после чего тигель выдерживали на электрической плитке при температуре 70 °С в течение 1–2 ч. В экспериментах с плавом и со спеченным порошком объем промывочного раствора в ходе одной стадии промывки составлял соответственно 100–200 и 50 мл.

Фракцию промывочного раствора отделяли от твердой фазы фильтрованием через погружной вакуумный фильтр, из фильтрата отбирали пробы для определения объемной активности Cs-137 методом гамма-спектрометрического анализа, а также концентрации урана методом спектрофотометрического анализа.

Результаты исследования подтвердили возможность переработки как плава молибдатов, так и спеченного порошка, однако для этого

потребовался расход значительного количества промывочного аммиачного раствора с образованием большого объема РАО (рис. 2). Расход промывочного раствора по отношению к 1 г имитатора ОЯТ в процессе переработки спеченного продукта составил 50 мл/г, тогда как в процессе переработки плава – 75 мл/г. В связи с этим в процессе переработки ОЯТ в соответствии с разрабатываемой схемой рекомендуется проводить ВТО при температуре 650 °С с образованием спеченного продукта. Выход урана в щелочной раствор в эксперименте с плавом составил 0,2%, в эксперименте со спеченным порошком – 0,8%. Относительная погрешность гамма-спектрометрического анализа в исследовании составляет 7%, спектрофотометрического анализа – 5%.

Установление состава промывочного раствора

На основании результатов исследования процесса извлечения цезия из состава продукта спекания имитатора ОЯТ с триоксидом молибдена в раствор аммиака сделан вывод о необходимости поиска состава промывочного раствора, обеспечивающего более экспрессное выщелачивание цезия из твердой фазы. Для этого проводили сравнительный анализ эффективности щелочных растворов разного состава в процессе фракционирования цезия.

В проведении исследования был изготовлен имитатор ОЯТ путем пропитки навески октаоксида триурана (10 г) раствором хлорида цезия (концентрация 100 г/л по цезию, объем 1 мл) с добавлением метки радиоиндикатора Cs-137. Полученный порошок имитатора ОЯТ

объединяли в кварцевом тигле с навеской триоксида молибдена (10,3 г), после чего составы перемешивали. Тигель помещали в шахтную электрическую печь сопротивления, затем смесь спекали при температуре 650 °С в течение 4 ч при периодическом перемешивании. По окончании ВТО продукт охлаждали до комнатной температуры в естественных условиях.

В целях проведения анализа эффективности промывочных растворов в 10 пробирок помещали по 1 г навески полученного продукта ВТО, затем к навескам добавляли по 5 мл промывочного раствора в соответствии с табл. 1.

Суспензии в пробирках перемешивали, затем пробирки выдерживали на водяной бане при температуре 70 °С в течение 4 ч. Впоследствии суспензии выдерживали при комнатной температуре в течение 2,5 сут., после чего из каждого раствора отбирали пробу для установления объемной активности цезия методом гамма-спектрометрического анализа.

В целях выполнения материального баланса экспериментов и установления значений выхода цезия в промывочные растворы нерастворенные в ходе промывок осадки обрабатывали для выделения урана раствором азотной кислоты с концентрацией 4 моль/л, а затем раствором гидроксида натрия с концентрацией 3 моль/л для полного растворения оставшихся триоксида

молибдена и молибдатов щелочных металлов. В азотнокислых растворах определяли концентрацию урана (методом спектрофотометрического анализа) и цезия (методом гамма-спектрометрического анализа). Результаты исследования представлены в табл. 2.

Выделение цезия следует проводить путем обработки спеченного порошка либо раствором гидроксида натрия с концентрацией не менее 3 моль/л, либо раствором гидразин-гидрата с концентрацией 2,5–3,0 моль/л. Увеличение концентрации гидразин-гидрата в промывочном растворе до 10,5 моль/л не привело к значимому росту степени выщелачивания цезия из продукта спекания. В опыте с гидроксидом натрия выход цезия и урана в раствор щелочной промывки составил соответственно $88,5 \pm 6,3$ и 0,2%. В опыте с гидразин-гидратом этот показатель составил $74,2 \pm 5,3$ и 0,1% для цезия и урана соответственно.

В экспериментах с растворами гидроксида натрия с концентрацией 1,0 и 0,5 моль/л зафиксированы высокие значения выхода урана в промывочный раствор. В этих растворах в конце исследования зафиксированы значения pH 4–5, что свидетельствует о недостаточном количестве щелочи, взятой для проведения опытов. Эти данные позволяют сделать вывод о необходимости постоянного контроля pH в промывочном

Т а б л и ц а 1

Составы промывочных растворов

Номер опыта	Промывочный раствор	Концентрация, моль/л
1	NaOH	3,0
2		1,0
3		0,5
4	NH ₃	13,3
5		6,7
6		3,3
7	N ₂ H ₄	10,5
8		2,6
9	Na ₂ CO ₃	2,0
10	HCOONH ₄	2,0

Распределение цезия и урана по фракциям в процессе исследования

Номер опыта	Промывочный раствор		Азотнокислый раствор		Фракция контрольного щелочного растворения	
	выход Cs, %	выход U, %	выход Cs, %	выход U, %	выход Cs, %	выход U, %
1	88,50 ± 6,28	0,20 ± 0,01	1,43 ± 0,10	99,74 ± 5,19	10,07 ± 0,72	0,06
2	74,50 ± 5,29	76,93 ± 4,00	7,77 ± 0,55	23,04 ± 1,20	17,73 ± 1,26	0,04
3	39,63 ± 2,81	41,06 ± 2,14	37,64 ± 2,25	58,88 ± 3,06	28,74 ± 2,04	0,05
4	23,65 ± 1,68	0,13 ± 0,01	37,35 ± 2,65	99,79 ± 5,19	39,00 ± 2,77	0,07
5	18,61 ± 1,32	0,12 ± 0,01	39,05 ± 2,77	99,81 ± 5,19	42,34 ± 3,01	0,07
6	19,21 ± 1,36	0,11 ± 0,01	31,21 ± 2,22	99,80 ± 5,19	49,58 ± 3,52	0,09
7	77,93 ± 5,53	0,04 ± 0,01	6,08 ± 0,43	99,76 ± 5,19	15,99 ± 1,13	0,20
8	74,17 ± 5,27	0,07 ± 0,01	9,94 ± 0,71	99,88 ± 5,19	15,88 ± 1,13	0,05
9	94,86 ± 6,74	14,77 ± 0,77	4,45 ± 0,32	85,19 ± 4,43	0,69 ± 0,05	0,04
10	17,17 ± 1,22	0,13 ± 0,01	38,95 ± 2,77	99,80 ± 5,19	43,87 ± 3,11	0,08

растворе и его периодической подпитки щелочью в процессе фракционирования цезия.

Оценка продолжительности процесса щелочной промывки

Установление необходимой продолжительности процесса промывки продукта ВТО ОЯТ с триоксидом молибдена проводили для увеличения темпов переработки топлива в соответствии с рассматриваемой технологической схемой, увеличения числа ступеней промывки, реализуемых в течение одной рабочей смены, а также снижения простоя оборудования, не задействованного на этой стадии.

В процессе исследования в две пробирки вносили по 5 г продукта ВТО имитатора ОЯТ с триоксидом молибдена, полученного в ходе предыдущей серии экспериментов. В первую пробирку добавляли 30 мл раствора гидроксида натрия с концентрацией 4 моль/л, во вторую – 30 мл раствора гидразин-гидрата с концентрацией 3 моль/л. Полученные суспензии выдерживали при периодическом перемешивании в течении 4 сут. при температуре 25 °С. Периодически из пробирок отбирали пробы растворов для установления объемной активности радиоизотопа Cs-137 методом гамма-спектрометрического анализа. Пробы объемом 1 мл отбирали спустя 6, 30 и 90 мин, 2, 3, 4,

6, 7,5, 24, 28, 32 и 98 ч после начала исследования. Суммарная активность Cs-137 в каждом эксперименте составляла $4,6 \times 10^5$ Бк. В соответствии с данными гамма-спектрометрического анализа построены графики зависимости выхода цезия в растворы от продолжительности процесса промывки (рис. 3).

В соответствии с данными исследования в процессе промывки продукта ВТО имитатора ОЯТ с триоксидом молибдена раствором гидроксида натрия с концентрацией 4 моль/л равновесие в системе достигается в течение 8 ч, при этом выход цезия в промывочный раствор составляет $89,2 \pm 6,3\%$. Однако $87,1 \pm 6,2\%$ цезия было выделено в раствор уже по истечении 2 ч, что позволяет принять продолжительность одной стадии промывки продукта ВТО раствором гидроксида натрия равной 2 ч.

Раствор гидразин-гидрата в процессе фракционирования цезия показал себя менее эффективным, по сравнению с раствором гидроксида натрия – выход цезия в промывочный раствор к концу эксперимента составил лишь $63,4 \pm 4,5\%$. Кроме того, работа с раствором гидразин-гидрата осложнялась осадкообразованием в растворах после разделения твердой и жидкой фаз.

На основании вышесказанного можно рекомендовать в процессе фракционирования

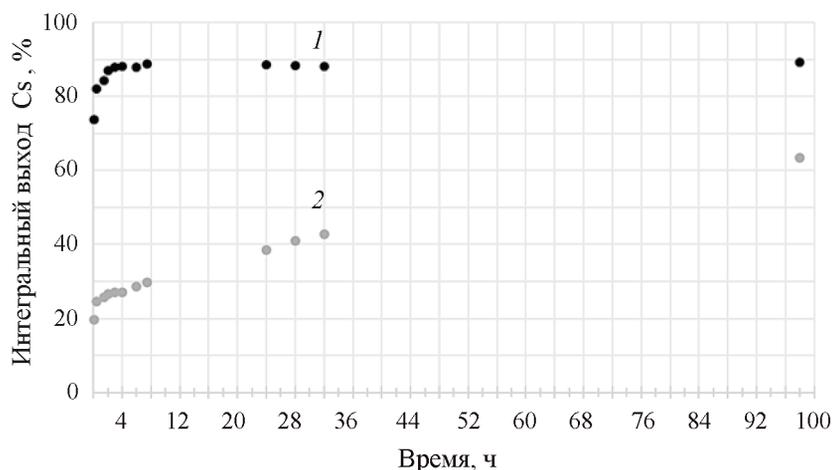


Рис. 3. Выход цезия в промывочные растворы в зависимости от времени: 1 – гидроксид натрия, 2 – гидразин-гидрат

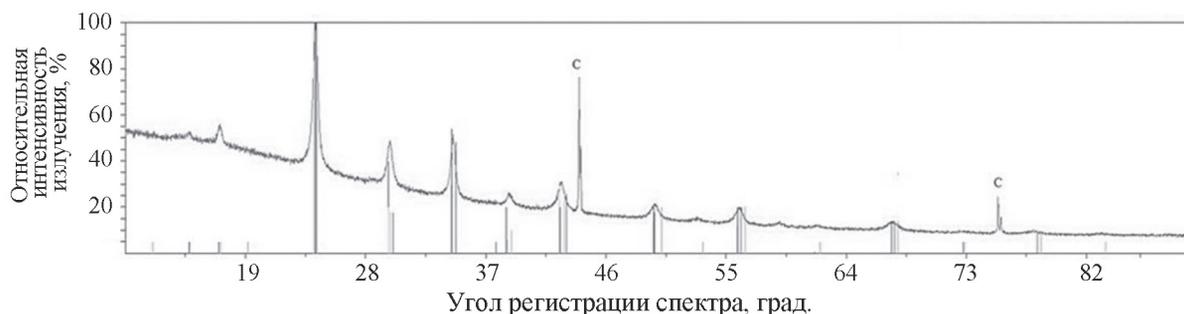


Рис. 4. Дифрактограмма порошка гексацианоферратов(II) цезия-магния

цезия из состава ОЯТ использовать раствор гидроксида натрия с концентрацией 3–4 моль/л при продолжительности одной стадии промывки, равной 2 ч. Дальнейшее увеличение концентрации щелочи в промывочном растворе представляется нецелесообразным в связи с необходимостью нейтрализации раствора молибдата цезия перед осаждением из него смешанных гексацианоферратов(II) цезия-магния.

Разделение цезия и молибдена в щелочных растворах

Для разделения цезия и молибдена в составе щелочных промывочных растворов установлены условия осаждения, смешанных гексацианоферратов(II) цезия-магния. Выбор этой группы соединений в процессе разделения цезия и молибдена обусловлен их низкой растворимостью в воде (3×10^{-5} моль/л для $\text{Cs}_2\text{Mg}[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ и $\text{Cs}_{12}\text{Mg}_8[\text{Fe}(\text{CN})_6]_7$, 2×10^{-4} моль/л для $\text{Cs}_4\text{Mg}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]_3$) [3], а также высокой раствори-

мостью молибдата магния (15,9%) при 20 °С [4]. В работе использовали водные растворы аммиака с массовой долей 12,5%, содержащие 100 г/л молибдата аммония и 5–10 г/л цезия, исходный объем раствора составлял 5 мл. В ходе экспериментов в растворы вводили метки радиоиндикатора Cs-137, затем добавляли нитрат магния и гексацианоферрат(II) калия в разном соотношении, после чего растворы выдерживали при температуре 70 °С в течение 2 ч. Степень осаждения цезия определяли по остаточной объемной активности щелочных растворов, определенной методом гамма-спектрометрического анализа.

Образование в ходе исследования смешанных гексацианоферратов(II) цезия-магния подтверждено рентгенофазовым анализом порошка (рис. 4). Поскольку смешанные гексацианоферраты(II) цезия-магния имеют схожие дифракционные картины, на дифрактограмме имеет место наложение рефлексов. В связи с этим однозначно идентифицировать полученный осадок затруднительно, наиболее вероятно образование

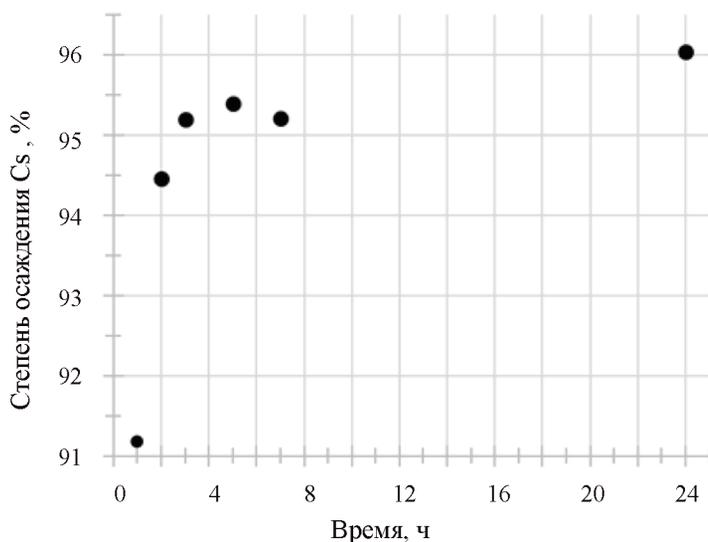


Рис. 5. Влияние времени на степень осаждения цезия (концентрация Cs 5 г/л, избыток осадителей 1,5)

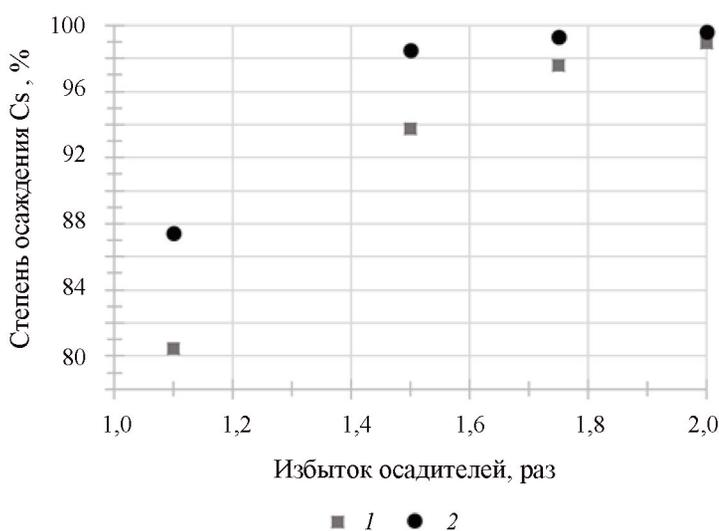


Рис. 6. Влияние избытка осадителей на степень осаждения цезия при его концентрации в растворе, г/л: 1 – 5, 2 – 10

соединения $Cs_{12}Mg_8[Fe(CN)_6]_7$. В целях установления продолжительности формирования цезий-содержащего осадка суспензии выдерживали при температуре 25 °С в течение суток. Пробы растворов отбирали спустя 1, 2, 3, 5, 7 и 24 ч после начала экспериментов.

По результатам исследований (рис. 5, 6) сделан вывод о том, что процесс осаждения смешанных гексацианоферратов(II) цезия-магния необходимо проводить в течение 3 ч в присутствии двукратного избытка катионов магния и гексацианоферрат-анионов в растворе по отношению

к их стехиометрическому количеству в уравнении реакции образования $Cs_2Mg[Fe(CN)_6]$. На модельных растворах удалось достичь степени осаждения цезия $99 \pm 7\%$.

Экспериментальное обоснование предложенных модификаций технологической схемы

Для подтверждения эффективности предложенных модификаций разрабатываемой технологической схемы выделения цезия из состава ОЯТ проводили контрольный эксперимент по

переработке продукта ВТО имитатора ОЯТ с триоксидом молибдена с применением в качестве промывочного раствора гидроксида натрия с концентрацией 3 моль/л.

Изготовлен имитатор ОЯТ путем пропитки навески октаоксида триурана массой 10 г раствором хлорида цезия с концентрацией 100 г/л по цезию объемом 1 мл с добавлением метки радиоиндикатора Cs-137 активностью $1,4 \times 10^6$ Бк. Полученный порошок имитатора ОЯТ был объединен в кварцевом тигле с навеской триоксида молибдена массой 10,3 г, после чего составы были перемешаны. Тигель помещали в шахтную электрическую печь сопротивления, затем смесь спекали при температуре 650 °С в течение 4 ч при периодическом перемешивании. По окончании ВТО продукт охлаждали до комнатной температуры в естественных условиях.

Продукт спекания имитатора ОЯТ с триоксидом молибдена промывали раствором гидроксида натрия с концентрацией 3 моль/л. Произведены шесть циклов промывки, в ходе каждой стадии промывки продукт спекания вводили в контакт с 50 мл раствора щелочи. Раствор по окончании каждого цикла промывки отделяли от продукта спекания фильтрованием через погружной вакуум-фильтр. Продолжительность каждой стадии промывки составила 2 ч.

Из каждой фракции промывочного раствора отбирали пробу для проведения гамма-спектрометрического анализа объемной активности радиоизотопа Cs-137 в целях определения степени его выщелачивания. Впоследствии в объединенном промывочном растворе определяли концентрацию урана спектрофотометрическим методом.

Для осаждения смешанных гексацианоферратов(II) цезия-магния объединенный промывочный раствор нейтрализовали концентрированной азотной кислотой. Затем в систему ввели растворы нитрата магния и гексацианоферрата(II) калия до концентрации каждого из указанных реагентов в растворе, равной 0,01 моль/л. Раствор выдерживали на водяной бане при температуре 70 °С в течение 2 ч, после чего выдерживали при комнатной температуре в течение 16 ч для созревания осадка. Осадок отделяли от раствора на фильтре «Синяя лента», после чего из маточного раствора отбирали пробу для определения остаточной объемной активности радиоизотопа Cs-137. В щелочной промывочный раствор вводили концентрированную азотную кислоту до концентрации 1 моль/л для осаждения молиб-

деновой кислоты, осадок отделяли от раствора на фильтре «Синяя лента». Продукт спекания имитатора ОЯТ с триоксидом молибдена после отделения цезия обрабатывали раствором азотной кислоты с концентрацией 5 моль/л до полного растворения урана. Полноту растворения определяли спектрофотометрическим методом. Оставшийся нерастворенным триоксид молибдена объединяли в кварцевом тигле с осадком молибденовой кислоты, после чего смесь прокаливали в электрической печи сопротивления при температуре 600 °С в течение 3 ч. Степень рециклирования триоксида молибдена определяли гравиметрическим методом.

В соответствии с данными гамма-спектрометрического анализа проб щелочного промывочного раствора построена кривая изменения степени выщелачивания цезия из продукта спекания в зависимости от объема промывочного раствора (рис. 7).

В результате контрольного эксперимента по переработке продукта ВТО имитатора ОЯТ с триоксидом молибдена в соответствии с модифицированной схемой процесса фракционирования цезия достигнуто извлечение в щелочной раствор $99,3 \pm 7,1\%$ цезия за пять стадий промывки. При этом расход промывочного раствора по отношению к массе имитатора ОЯТ составил 25 мл/г, тогда как в эксперименте с аммиачным промывочным раствором расход составлял 50 мл/г, таким образом, расход промывочного раствора был снижен вдвое. Степень выщелачивания цезия в щелочной раствор за шесть стадий промывки составила $99,7 \pm 7,1\%$.

Степень осаждения цезия из состава промывочного раствора составила $90,7 \pm 6,4\%$. Эта величина может быть увеличена за счет более точной корректировки pH перед введением осадителей в систему: неполная нейтрализация промывочного раствора снижает степень осаждения цезия в связи с осаждением части магния в виде гидроксида. В процессе обработки продукта спекания азотной кислотой в раствор было извлечено $99,2 \pm 0,1\%$ урана и 0,3% цезия. Степень рециклирования триоксида молибдена в эксперименте составила 90,2%

Заключение

В результате проведенных исследований на имитаторах топлива подтверждена эффективность разрабатываемой технологической схемы переработки ОЯТ, а также представлены ее модификации, позволяющие снизить

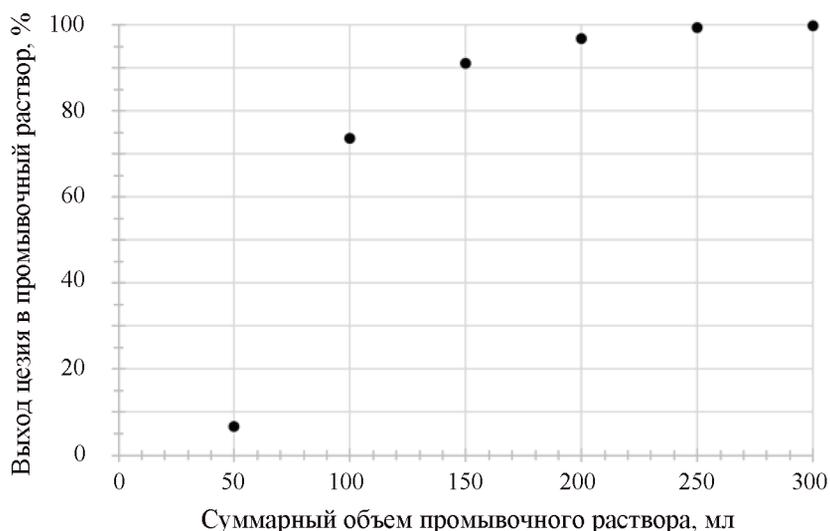


Рис. 7. Выход цезия в зависимости от объема промывочного раствора

объемы образующихся РАО и ускорить процесс фракционирования цезия. Высокотемпературную обработку ОЯТ рекомендуется проводить при температуре, не превышающей 650 °С, поскольку выщелачивание цезия из спеченного продукта происходит с большей скоростью, чем из плава. Промывку продукта спекания необходимо про-

водить раствором гидроксида натрия с концентрацией 3–4 моль/л, при этом продолжительность одной стадии промывки составляет 2 ч. Дальнейшие исследования будут направлены на экспериментальное обоснование предложенной технологической схемы с использованием образцов ОЯТ в условиях радиационно-защитной камеры.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Андрианова Е.А., Давиденко В.Д., Цибульский В.Ф. // Атомная энергия. Т. 118. Вып. 5. М., 2015. С. 243.
2. Крячко М.В., Хохлов Г.Н. // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Ядерно-реакторные константы. Вып. 3. Обнинск, 2017. С. 57.
3. Тананаев И.В. и др. Химия ферроцианидов / М., 1971. 320 с.
4. Химическая энциклопедия / Под ред. И.Л. Кнунянца и др. М., 1992. Т. 3. 639 с.
5. Осипенко А.Г., Горелов А.В. Физическая химия – основа новых технологий и материалов / Сб. тез. IX Межвуз. конф.-конкурса (с международным участием) научных работ студентов имени чл.-корр. АН СССР Александра Александровича Яковкина. СПб., 2020. С. 264.
6. Погляд С.С., Осипенко А.Г., Сивкова В.А., Галиев Р.С., Тагунов А.В. Экспериментальная проверка комбинированного варианта очистки выдержанного энергетического плутония от накопившегося америция // Научно-технический семинар «Обращение с ОЯТ и РАО в ЗЯТЦ». М., 2020. Режим доступа: https://vniinm.ru/download_files/12.%20Погляд%20СС-НИИАР.pdf (дата обращения 08.06.2023).

Информация об авторах

Валентин Андреевич Болдаков – инженер отделения радиохимических технологий АО «ГНЦ НИИАР» (valentineandrbo@yandex.ru);

Сергей Степанович Погляд – эксперт по научным разработкам отделения радиохимических технологий АО «ГНЦ НИИАР» (spoglyad@yandex.ru);

Александр Степанович Корнилов – ст. науч. сотр. отделения радиохимических технологий АО «ГНЦ НИИАР» (niiar@niiar.ru);

Ольга Сергеевна Дмитриева – начальник лаборатории отделения радиохимических технологий АО «ГНЦ НИИАР» (osdmित्रиеva@niiar.ru);

Владимир Николаевич Момотов – зам. начальника отделения радиохимических технологий АО «ГНЦ НИИАР» (momotov@niiar.ru);

Наталья Олеговна Позигун – мл. науч. сотр. отделения радиохимических технологий АО «ГНЦ НИИАР» (n.pozigun@ya.ru);

Анастасия Андреевна Тельнова – студентка физико-технического факультета ДИТИ НИЯУ МИФИ (AATelnova@yandex.ru).

Вклад авторов

Все авторы сделали эквивалентный вклад в подготовку публикации.

Соблюдение этических стандартов

В данной работе отсутствуют исследования человека и животных.

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Статья поступила в редакцию 15.10.2023;
одобрена после рецензирования 29.11.2023;
принята к публикации 13.12.2023.