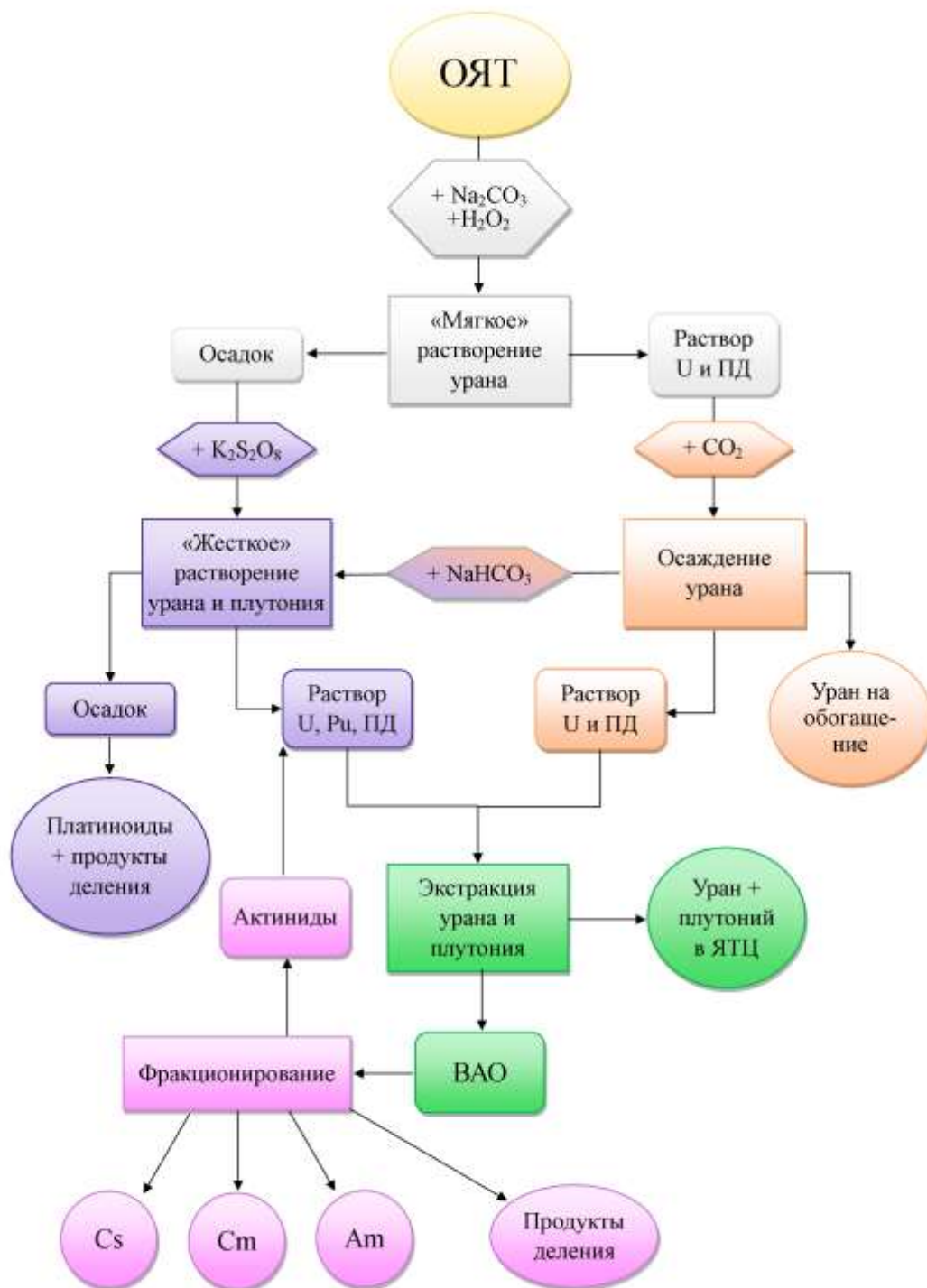


**Радиохимические технологии с "естественной безопасностью" для
переработки ОЯТ и фракционирования ВАО»
2020 год**

При карбонатном растворении оксидов актинидов (волоксидированного ОЯТ) в «мягких» окислительных условиях (перекись водорода) можно селективно растворить оксиды урана, не растворяя диоксид плутония. Эта особенность карбонатных сред позволяет провести выщелачивание основной части урана из ОЯТ, а остаток направить на полное растворение всех актинидов в «жестких» окислительных условиях (персульфаты) с последующим их разделением. Растворимость урана в карбонатных средах сильно зависит от концентрации карбонат-аниона и рН среды, что открывает возможность для «безреагентного» осадительного выделения урана диоксидом углерода. Фракционирование маточных растворов - карбонатных ВАО - обеспечит выделение ценных компонентов (радионуклиды, платиноиды) и сокращение объема остеклованных отходов.



Принципиальная схема разрабатываемой нами технологии переработки ОЯТ в карбонатных средах.

Разрабатываемая нами технологии переработки ОЯТ в карбонатных средах предполагает двухстадийное растворение ОЯТ, осадительное выделение основной части урана, совместное экстракционное выделение

урана и плутония и переработку образующихся карбонатных ВАО. При карбонатном растворении оксидов актинидов (волоксидированного ОЯТ) в «мягких» окислительных условиях (перекись водорода) можно селективно растворить оксиды урана, не растворяя диоксид плутония. Эта особенность карбонатных сред позволяет провести выщелачивание основной части урана из ОЯТ, а остаток направить на полное растворение всех актинидов в «жестких» окислительных условиях (персульфаты) с последующим их разделением. Растворимость урана в карбонатных средах сильно зависит от концентрации карбонат-аниона и рН среды, что открывает возможность для «безреагентного» осадительного выделения урана диоксидом углерода. Фракционирование маточных растворов - карбонатных ВАО - обеспечит выделение ценных компонентов (радионуклиды, платиноиды) и сокращение объема остеклованных отходов.

Получены экспериментальные данные о химическом поведении основных ПД в процессе окислительного растворения имитатора волоксидированного ОЯТ. Рассчитаны значения коэффициентов очистки урана от примесей, для всех изученных ПД. Определены оптимальные условия селективного выщелачивания урана из шихты имитатора волоксидированного ОЯТ на основе смеси U_3O_8 и оксидов стабильных изотопов (CeO_2 ; MoO_3 ; ZrO_2 ; SrO ; SnO ; La_2O_3 ; Nd_2O_3 ; Sm_2O_3 ; Y_2O_3) в условиях окислительного растворения в растворах $Na_2CO_3-H_2O_2$.

Проведены систематические исследования кинетики окислительного растворения UO_2 , U_3O_8 и PuO_2 в карбонатных средах в присутствии окислителей: H_2O_2 ; $Na_2CO_3 \cdot 1,5H_2O_2$; Na_2O_2 ; $M_2S_2O_8$, где $M-Na^+$; K^+ или NH_4^+ при различных режимах подачи окислителя и условиях.

Для всех изученных систем проведена математическая обработка, на основании которой рассчитаны значения величин констант скоростей реакции и кажущейся энергии активации, а также экспериментально измерены значения ОВП, установлена динамика изменения ОВП при различных условиях. Изучена кинетика разложения H_2O_2 и $Na_2CO_3 \cdot 1,5H_2O_2$ в карбонатных средах.

Изучена экстракция $^{241}Am(III)$ и стабильных компонентов ОЯТ (Al, Na, Cr(VI), Mo(VI)) из карбонатных сред карбонатом метилтриалкиламмония и метилтриоктиламмония в толуоле.

Исследована экстракция ^{137}Cs , ^{241}Am и 15 стабильных компонентов карбонатных ВАО 0,01 М растворами в тетрахлорэтилене изононил-каликс[8]арена, изононил-каликс[6]арена и смесового изононил/третбутил (1:3)каликс[8]арена в широком интервале рН (от 10 до 14) водной фазы. Исследованные соединения экстрагируют калий и рубидий почти также эффективно, как и цезий. Иттрий и другие РЗЭ экстрагируются немного хуже, чем америций. Отмечено отсутствие соэкстракции хрома (VI), молибдена, марганца (II) и никеля.

В качестве экстрагентов для ТПЭ были исследованы ТКА с одним н-гексильным и с двумя н-гексадецильными заместителями в нижнем ободе.

Моноалкилирование ТКА не повысило его растворимость, а диалкильное производное ТКА хорошо (более 0,05 М) растворялось в тетрахлорэтилене. При введении каждой алкильной группы в нижний обод ТКА коэффициент распределения америция падает в 5-10 раз, а максимум экстракции смещается в более щелочную область.

Была разработана принципиальная технологическая схема процесса экстракционной переработки щелочных ВАО, включающая только операции экстракции и реэкстракции, без промывки экстракта и без регенерации оборотного экстрагента. Работоспособность предложенной технологической схемы подтверждена в ходе динамических испытаний на 16-ти ступенчатом стенде смесителей-отстойников с использованием модельного щелочного ВАО и экстрагента на основе изонил-каликс[б]арена в легком смесевом растворителе (м-нитробензотрифторид и диглим в н-додекане). Установка стабильно проработала 105 ч. За это время было переработано около 10,5 л исходного модельного раствора ВАО. Экстрагент совершил более 10 оборотов. Активность ^{137}Cs в оборотном экстрагенте в ходе испытаний не превышала 10^5 Бк/л (менее 1% от исходного). В ходе испытаний экстракционная система работала устойчиво, не было отмечено образования осадков, плохо расслаивающихся эмульсий или взаимного уноса фаз. Использование 10 ступеней экстракции обеспечило извлечение из модельного ВАО более 99,8 % ^{137}Cs , как в режиме максимального извлечения (на экстракции О:В = 1:1), так и в режиме максимального концентрирования (на экстракции О:В = 1:2). Активность ^{137}Cs в реэкстракте в режиме максимального концентрирования превышает исходную в 9 – 11 раз, а в режиме максимального извлечения в 1,6 – 2,7 раза, при ожидаемых коэффициентах концентрирования 10 и 2, соответственно. Реэкстракция радионуклидов раствором 1 моль/л HNO_3 в обоих проверенных режимах проходила полностью и активность цезия в оборотном экстрагенте была ниже 10^5 Бк/л. За все время испытаний коэффициент очистки ВАО от ^{137}Cs стабильно превышал 500 при 10-кратном концентрировании ^{137}Cs в реэкстракте.