

УДК 621.039.75

ТЕПЛОВЫЕ ЭФФЕКТЫ В МАТРИЦЕ ФРАКЦИИ РЕДКИХ ЗЕМЕЛЬ

© 2024 г. Член-корреспондент РАН С. В. Юдинцев*, В. И. Мальковский

Поступило 28.03.2024

После доработки 10.04.2024 г.

Принято к публикации 15.04.2024 г.

Разделение высокоактивных отходов на фракции упрощает их изоляцию в матрицах и захоронение. Одна из этих фракций состоит из редких земель (РЗЭ) и малых актинидов, МА (Am, Cm). Среди РЗЭ имеются изотопы с периодами полураспада до 93 лет (^{144}Ce , ^{147}Pm , ^{151}Sm , $^{154,155}\text{Eu}$), распад которых вызовет интенсивный разогрев матрицы отходов. Предварительное хранение 10 лет и более матрицы РЗЭ–МА позволит снизить содержания радиоизотопов РЗЭ и их вклад в повышение температуры в геологическом хранилище.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, редкие земли, актиниды, матрица, распад, нагрев

DOI: 10.31857/S2686739724080205

Устойчивое развитие ядерной энергетики зависит от обеспеченности ресурсами и безопасного обращения с радиоактивными отходами [1]. Топливный цикл с реакторами на медленных и быстрых нейтронах и переработкой отработавшего топлива (ОЯТ) позволяет повторно использовать делящиеся материалы (U и Pu) и эффективно изолировать отходы после их разделения на фракции [1–6]. Одна из этих фракций состоит из редких земель (РЗЭ) и малых актинидов (МА): Am, Cm. При синтезе матриц в качестве имитаторов высокоактивных отходов (ВАО) применяют стабильные элементы (табл. 1), что упрощает их изучение. Имитаторами трёхвалентных МА служат РЗЭ из-за близких размеров ионов РЗЭ^{3+} , Am^{3+} и Cm^{3+} . Такой подход оправдан при изучении их растворимости в стекле и ёмкости кристаллических фаз, положения и координации ионов в структуре, распределения элементов между фазами.

В отличие от имитаторов, реальные отходы содержат радиоизотопы. Продукты их распада (β - и γ -излучение, α -частицы, ядра отдачи) влияют на структуру и свойства фаз ([7–9] и др.), а из-за выделения радиогенного тепла происходит нагрев матриц. Анализ термических эффектов в геологическом хранилище выполнен в ряде публикаций [10–13], но лишь единичные работы

посвящены проблеме нагрева матриц фракций ВАО [14, 15].

Выбор высокоёмких матричных композиций позволяет рациональнее использовать пространство хранилищ и снизить удельные затраты на захоронение отходов, но высокие содержания радионуклидов вызовут нагрев матрицы, что будет влиять на её свойства. Из-за малой проникающей способности радиации её воздействие на матрицу, контейнер, бентонит и поровую воду ограничено сантиметрами [7–9]. В то же время тепловое поле будет распространяться на сотни метров в стороны от контейнера с ВАО, а температуры матриц в хранилище многие годы могут составлять сотни градусов по Цельсию [6, 11–15].

Ранее нами был рассмотрен нагрев матрицы с 30 мас. % РЗЭ и малых актинидов при условии, что РЗЭ – стабильные элементы [14]. Расчёты выполнены для РЗЭ–МА-фракции, состоящей из 95 мас. % РЗЭ и 5 мас. % МА, включая 3.5% ^{241}Am ($T_{1/2} = 432$ года), 1% ^{243}Am (7370 лет), 0.45% ^{244}Cm (18 лет) и 0.05% ^{245}Cm (8500 лет). С учётом ядерно-физических характеристик изотопов мы полагаем, что начальное тепловыделение зависит от ^{244}Cm (на 78%) и ^{241}Am (на 22%). В первые 10 лет тепловыделение и температура матрицы меняются слабо (рис. 1), а затем они снижаются вслед за распадом актинидов. Так через 3 года температуры в центре блока матрицы и на её поверхности составят 386 и 358°C, а спустя 30 лет они опустятся до значений 201 и 190°C соответственно.

Институт геологии рудных месторождений, петрографии, минералогии и геохимии Российской Академии наук, Москва, Россия

*E-mail: yudintsevsv@gmail.com

Таблица 1. Примеры использования имитаторов радионуклидов в матрицах отходов [6]

Радионуклид	Имитаторы радионуклидов: от более близких к менее похожим элементам				
	Радиоизотоп с малым $T_{1/2}$	Природный р/н с большим $T_{1/2}$	Стабильные изотопы данного элемента	Другие типы имитаторов	
^{237}Np	— *	U, Th	Не существует	Ce	Pr
^{238}Pu	—	U, Th	Не существует	Ce	Nd
^{239}Pu	^{238}Pu	U, Th	Не существует	Ce	Nd
Am, Cm	^{244}Cm	—	Не существует	Nd	Sm
^{137}Cs	^{134}Cs	—	Природный изотоп (^{133}Cs , ^{127}I , ^{59}Co) или смесь ($^{86-88}\text{Sr}$, $^{90-96}\text{Zr}$)	Ba**	—
^{129}I	—	—		—	—
^{60}Co	—	—		—	—
^{90}Sr	—	—		Zr**	—
^{93}Zr	—	—	—	—	—
^{99}Tc	—	—	Не существует	Re	Mo, Mn

Примечание. * – нет, ** – имитаторы продуктов распада ^{137}Cs ($^{137}\text{Cs} \rightarrow ^{137}\text{Ba}$) и ^{90}Sr ($^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y} \rightarrow ^{90}\text{Zr}$).

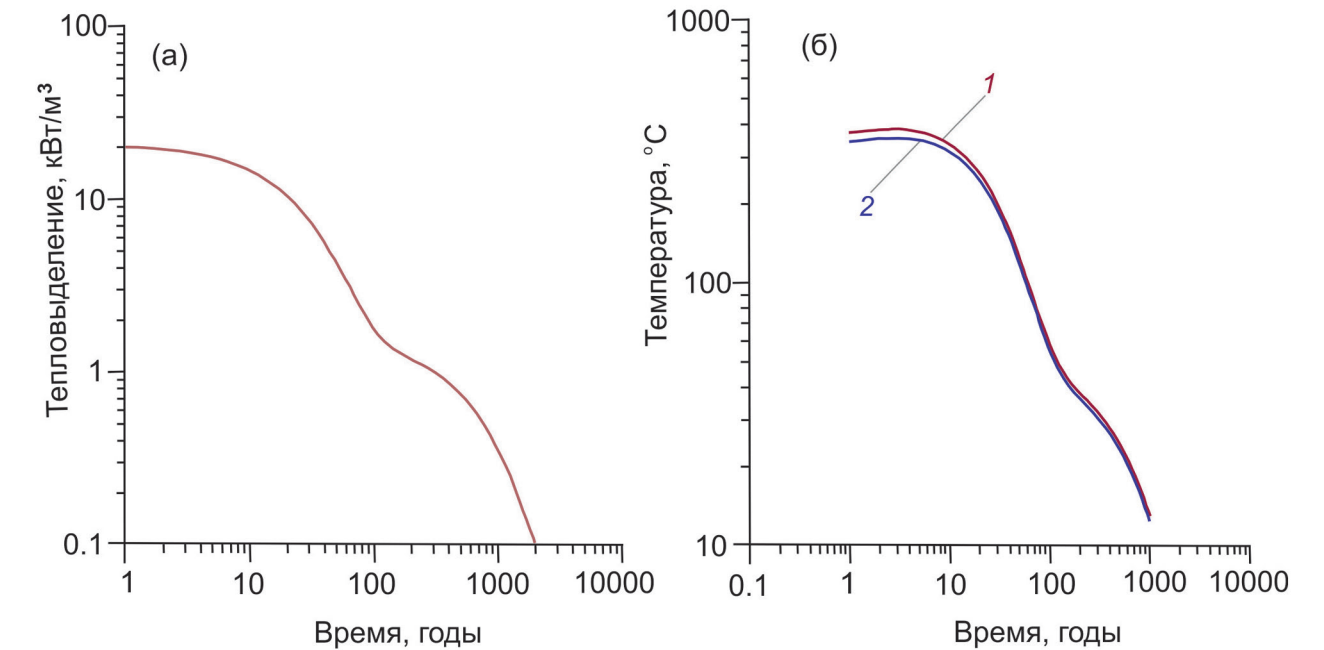


Рис. 1. Зависимость от времени тепловыделения (а) и температуры (б) в центре (1) и на поверхности (2) цилиндрического блока матрицы РЗЭ–МА-фракции диаметром 0.2 м. Считалось, что все изотопы РЗЭ – стабильные.

Однако среди РЗЭ также имеются радиоактивные изотопы, распад которых сильно влияет на тепловыделение ОЯТ, ВАО и РЗЭ–МА-фракции в первые годы (табл. 2, 3).

Сначала вклад РЗЭ в тепловыделение ОЯТ превышает долю актинидов, ^{90}Sr и ^{137}Cs (табл. 3). При хранении ОЯТ содержание короткоживущих изотопов снижается и через 10 лет тепловыделение из-за распада актинидов, щелочных и щёлочноземельных металлов снизится в 2–3

раза, тогда как для редких земель его величина уменьшится в 50–60 раз.

В настоящем сообщении рассмотрены тепловые поля в скважинном хранилище матриц фракции РЗЭ с учётом их распада, что позволит оценить влияние редких земель на температуру матрицы РЗЭ–МА-фракции. Эти данные имеют и самостоятельное значение в связи с возможностью выделения РЗЭ при переработке ОЯТ и захоронения [3, 5, 15–17]. Как и ранее [14] принято, что блок матрицы с содержанием от 10

Таблица 2. Содержание⁽¹⁾ и тепловыделение⁽²⁾ актинидов и РЗЭ в ОЯТ легководных реакторов и доля РЗЭ в их величинах для гипотетической РЗЭ–МА-фракции [6] в зависимости от выгорания и времени хранения

Элемент	Тонна ОЯТ через 5 лет хранения				Тонна ОЯТ через 30 лет хранения			
	45 ГВт × сут		60 ГВт × сут		45 ГВт × сут		60 ГВт × сут	
	(1)	(2)	(1)	(2)	(1)	(2)	(1)	(2)
Gd	150	0	310	0	180	0	346	0
Eu	190	60	260	90	170	8	230	12
Sm	1060	0	1370	0	1120	0	1430	0
Pm	63	21	62	21	нет	нет	нет	нет
Ce	3210	10	4230	10	3210	0	4220	0
Pr	1540	114	2010	113	1540	0	2010	0
Nd	5570	0	7310	0	5570	0	7310	0
La	1670	0	2190	0	1670	0	2190	0
U	941000	0.06	923000	0.06	941000	0.06	923000	0.06
Pu	11200	164	12600	283	10200	138	11500	236
Np	570	0.01	780	0.02	570	0.01	780	0.02
Am	510	47	740	58	1380	146	1780	178
Cm	33	88	113	292	14	34	50	112
Am + Cm	543	135	853	350	1394	180	1830	290
Σ РЗЭ	13453	205	17742	234	13460	8	17736	12
Доля РЗЭ	96%	60%	95%	40%	91%	4%	91%	4%

Таблица 3. Тепловыделение групп радионуклидов ОЯТ типичного легководного реактора (выгорание 40^(а) или 60^(б) ГВт сутки на тонну) в интервале времени от года до 70 лет [4]

Группа элементов	Тепловыделение нуклидов ОЯТ в течение от 1 года до 70 лет (Вт/т)				
	1 год	10 лет	30 лет	50 лет	70 лет
Cs / Sr / Ba / Rb	2765 ^(а) / 4608 ^(б)	1054 / 1576	566 / 824	354 / 516	222 / 323
Ag / Pd / Ru / Rh	2752 / 3447	11 / 14	<< 1	<< 1	<< 1
Редкие земли	3593 / 3843	64 / 109	10 / 17	2 / 3	<< 1
Актиниды	819 / 1515	348 / 785	332 / 613	309 / 516	287 / 449
Остальные	515 / 522	15 / 21	2 / 3	1 / 1	< 1
ОЯТ в целом	10444 / 3936	1492 / 2505	910 / 1458	666 / 1036	509 / 773

до 50 мас. % РЗЭ имеет форму цилиндра диаметром 0.2 м и помещён в скважину в гранитах. Проанализировано влияние сухого уплотнённого бентонитового буфера толщиной 10 см между стенками контейнера с ВАО и породой. Роль металлического контейнера не учитывали из-за малой толщины стенок и высокой теплопроводности материала. Доля радиоизотопов в общей массе элемента (табл. 4) снижается со 100% у Pm (только радиоактивный изотоп ¹⁴⁷Pm) до 24% у Eu (два радиоизотопа — ¹⁵⁴Eu и ¹⁵⁵Eu) и 1–2% для Sm и Ce (радиоизотопы ¹⁵¹Sm и ¹⁴⁴Ce). Наибольший период полураспада у ¹⁵¹Sm (93 года), наименьший у ¹⁴⁴Ce (0.8 года). Из-за очень большого периода полураспада такие изотопы РЗЭ, как ¹⁴⁷Sm ($T_{1/2} = 1.06 \times 10^{11}$ лет), ¹⁴⁴Nd

(2.38×10^{15} лет) и ¹⁵⁰Nd ($T_{1/2} = 7 \times 10^{18}$ лет) также можно считать стабильными.

Рассмотрим теплоперенос от скважины с матрицей РЗЭ-фракции в цилиндрических координатах: r, z , где r — расстояние до оси скважины, а z — вдоль оси скважины до её нижнего конца. Блоки матриц с радиусом R , равным 0.1 м, расположены в скважине один над другим, поэтому вне концевых участков скважины нестационарное распределение температур удовлетворяет уравнению теплопроводности в одномерном приближении.

$$\rho(r)c(r)\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left[\lambda(r)r\frac{\partial T}{\partial r}\right] + \Omega(t,r),$$

Таблица 4. Изотопы РЗЭ и малых актинидов в ОЯТ типичного легководного реактора (PWR, ВВЭР) с выгоранием 33 ГВт сут/т через 3 года после выгрузки из реактора [6]

Элемент	Содержание, г/т	Радиоизотоп	Содержание, г/т	Период полураспада
La	1205	Нет	—	стабильный
Ce	2352	¹⁴⁴ Ce	23	0.8 лет
Pr	1109	Нет	—	стабильный
Nd	4000	Нет	—	стабильный
Pm	86	¹⁴⁷ Pm	86	2.6 лет
Sm	777	¹⁵¹ Sm	16	93 года
Eu	133, в том числе:	¹⁵⁴ Eu	20	8.6 лет
		¹⁵⁵ Eu	12	4.8 лет
Gd	76	Нет	—	стабильный
Am	369, в том числе:	²⁴¹ Am	290	433 года
		²⁴³ Am	79	7370 лет
Cm	20, в том числе:	²⁴³ Cm	0.2	29 лет
		²⁴⁴ Cm	18.3	18 лет
		²⁴⁵ Cm	1.0	8500 лет
		²⁴⁶ Cm	0.1	4760 лет

$$\rho(r) = \begin{cases} \rho_m, & \text{если } r < R; \\ \rho_b, & \text{если } R < r < R + \delta; \\ \rho_r, & \text{если } r > R + \delta. \end{cases}$$

$$c(r) = \begin{cases} c_m, & \text{если } r < R; \\ c_b, & \text{если } R < r < R + \delta; \\ c_r, & \text{если } r > R + \delta. \end{cases}$$

$$\lambda(r) = \begin{cases} \lambda_m, & \text{если } r < R; \\ \lambda_b, & \text{если } R < r < R + \delta; \\ \lambda_r, & \text{если } r > R. \end{cases}$$

$$\Omega(t, r) = \begin{cases} \omega(t + t_s), & \text{если } r < R; \\ 0, & \text{если } r > R. \end{cases}$$

R — радиус блока, T — увеличение температуры по сравнению с её начальным значением; t — время; t_s — время выдержки твёрдых отходов до захоронения; ω — тепловыделение их единичного объёма; ρ_m, ρ_b, ρ_r — плотности; c_m, c_b, c_r — удельные теплоёмкости; $\lambda_m, \lambda_b, \lambda_r$ — теплопроводности твёрдых отходов, буферного слоя и вмещающих пород (гранита).

Граничные и начальное условие для уравнения (1) запишутся в виде

$$r = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial r} = 0; \quad r \rightarrow \infty, \quad \frac{\partial T}{\partial r} \rightarrow 0. \quad (2)$$

$$t = 0, \quad T \equiv 0. \quad (3)$$

Уравнение (1) интегрировалось полунейвным методом Кранка—Никольсона

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\Delta_t}{2(r_{i+1} - r_{i-1})\rho_m c_m r_i} \left[\lambda_m \frac{r_{i+1} + r_i}{r_{i+1} - r_i} (T_{i+1}^n - T_i^n + T_{i+1}^{n+1} - T_i^{n+1}) - \right. \\ \left. - \lambda_m \frac{r_i + r_{i-1}}{r_i - r_{i-1}} (T_i^n - T_{i-1}^n + T_i^{n+1} - T_{i-1}^{n+1}) \right] + \frac{\omega_n \Delta_t}{\rho_m c_m}, \quad i = 2, \dots, N_m - 1. \quad (1)$$

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\Delta_t}{2r_i [\rho_b c_b (r_{i+1} - r_i) + \rho_m c_m (r_i - r_{i-1})]} \left[\lambda_b \frac{r_{i+1} + r_i}{r_{i+1} - r_i} (T_{i+1}^n - T_i^n + T_{i+1}^{n+1} - T_i^{n+1}) - \right. \\ \left. - \lambda_m \frac{r_i + r_{i-1}}{r_i - r_{i-1}} (T_i^n - T_{i-1}^n + T_i^{n+1} - T_{i-1}^{n+1}) \right] + \frac{\omega_n \Delta_t (r_i - r_{i-1})}{\rho_b c_b (r_{i+1} - r_i) + \rho_m c_m (r_i - r_{i-1})}, \quad i = N_m.$$

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\Delta_t}{2(r_{i+1} - r_{i-1})\rho_b c_b r_i} \left[\lambda_b \frac{r_{i+1} + r_i}{r_{i+1} - r_i} (T_{i+1}^n - T_i^n + T_{i+1}^{n+1} - T_i^{n+1}) - \right. \\ \left. - \lambda_b \frac{r_i + r_{i-1}}{r_i - r_{i-1}} (T_i^n - T_{i-1}^n + T_i^{n+1} - T_{i-1}^{n+1}) \right], \quad i = N_m + 1, \dots, N_m + N_b - 2. \quad (4)$$

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\Delta_t}{2r_i [\rho_r c_r (r_{i+1} - r_i) + \rho_b c_b (r_i - r_{i-1})]} \left[\lambda_r \frac{r_{i+1} + r_i}{r_{i+1} - r_i} (T_{i+1}^n - T_i^n + T_{i+1}^{n+1} - T_i^{n+1}) - \right. \\ \left. - \lambda_b \frac{r_i + r_{i-1}}{r_i - r_{i-1}} (T_i^n - T_{i-1}^n + T_i^{n+1} - T_{i-1}^{n+1}) \right], \quad i = N_m + N_b - 1.$$

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\Delta_t}{2(r_{i+1} - r_{i-1})\rho_r c_r r_i} \left[\lambda_r \frac{r_{i+1} + r_i}{r_{i+1} - r_i} (T_{i+1}^n - T_i^n + T_{i+1}^{n+1} - T_i^{n+1}) - \right. \\ \left. - \lambda_r \frac{r_i + r_{i-1}}{r_i - r_{i-1}} (T_i^n - T_{i-1}^n + T_i^{n+1} - T_{i-1}^{n+1}) \right], \quad i = N_m + N_b, \dots, N_m + N_b + N_r - 2.$$

Δ_t — шаг интегрирования по времени, $t_n = \Delta_t(n - 1)$, r_i — координата i -го узла на оси r :

$$r_i = \begin{cases} \Delta_{rm}(i - 1), & i = 1, \dots, N_m; \\ R + \Delta_{rb}(i - N_m); & N_m < i < N_m + N_b - 1; \\ R + \delta + \Delta_{rr}(i - N_m + N_b + 1); & N_m + N_b - 1 \leq i \leq N_m + N_b + N_r - 2, \end{cases}$$

N_m, N_b, N_r — числа узлов в области матрицы ($0 \leq r \leq R$), буферного слоя ($R \leq r \leq R + \delta$) и

Таблица 5. Теплофизические характеристики матриц, бентонита и вмещающей породы (гранита) по данным работ [6, 7, 10, 11, 13, 16]

Материал, порода	Плотность, ρ_r , кг/м ³	Теплопроводность, λ_r , Вт/(м × К)	Удельная теплоёмкость, c_r , Дж/(кг × К)
Стекло	2600–2800 (2700)	1.1–1.3 (1.2)	800–1000 (900)
Керамика	4000–6000 (5000)	1.0–2.6 (1.8)	600–800 (700)
Бентонит	1200–1800 (1500)	0.6–1.4 (1.0)	800–1200 (1000)
Гранит	2600–2800 (2700)	1.0–3.0 (2.0)	800–1000 (900)

породы ($R + \delta \leq r \leq r_{\text{lim}}$), где r_{lim} — достаточно большое значение r , к которому отнесено второе (на бесконечности) граничное условие (2). В наших расчётах принято значение $r_{\text{lim}} = 200$ м, так как при $r = r_{\text{lim}}$ расчётные величины T оказались практически равными 0.

$$\Delta_{rm} = \frac{R}{N_m - 1}, \quad \Delta_{rb} = \frac{\delta}{N_b - 1}, \quad \Delta_{rr} = \frac{x_{\text{lim}} - R - \delta}{N_r - 1},$$

$$T_i^n = T(\Delta_i(n-1), r_i),$$

Здесь Δ_i — шаг интегрирования уравнения (1) по времени.

Граничные условия (2) аппроксимируются конечно-разностными соотношениями первого порядка точности

$$T_i^{n+1} - T_{i-1}^{n+1} = 0, \quad i = 2, N_m + N_b + N_r - 2. \quad (5)$$

Начальные условия (3) запишутся в виде

$$T_i^1 = 0, \quad i = 1, \dots, N_m + N_b + N_r - 2. \quad (6)$$

В расчётах использованы теплофизические свойства двух типов матриц (стекло и керамика), бентонита и гранита (табл. 5), результаты вычислений приведены на рис. 2–5 для определения влияния содержания РЗЭ (рис. 2), типа матрицы — стеклообразной или кристаллической (рис. 3), наличия слоя бентонита толщиной 0.1 м между отходами и стенками скважины (рис. 4) и времени предварительного хранения матрицы РЗЭ (рис. 5).

Начальная температура матрицы зависит от содержания фракции РЗЭ и снижается со временем вслед за распадом короткоживущих радионуклидов. В первый год высокое тепловыделение определяет экстремальные значения расчётной температуры (рис. 2). При одинаковой концентрации отходов редкоземельной фракции вследствие более высокой плотности керамических матриц по сравнению со стеклом в

них будет выше количество РЗЭ и объёмное тепловыделение. Так при концентрации 30 мас. % РЗЭ в 1 м³ стекла плотностью 2700 кг/м³ содержится 810 кг, а в керамике плотностью 5000 кг/м³ будет 1500 кг отходов. В результате начальная температура кристаллической матрицы почти в два раза выше, чем стекла при одинаковом массовом содержании отходов (рис. 3). Влияние других характеристик матриц слабее из-за меньших различий свойств стекла и керамики, но в целом увеличение теплопроводности снижает температуру нагрева матрицы.

Бентонит служит теплоизолятором и существенно повысит температуру матрицы РЗЭ (рис. 4), в этих расчётах принято, что временное её хранение составило 1 год.

Из-за меньшей теплопроводности чем у пород, бентонит повышает температуру и тем сильнее, чем меньшее время матрица отходов находится во временном хранилище до захоронения (рис. 5 а). При временном хранении 1 год разница температур при наличии бентонита и без него равна 600–800°С. Выдержка матрицы РЗЭ до захоронения в течение 5 лет уменьшает её нагрев с 4000–5000°С до 200°С, а разница температур при наличии буфера или без него снижается от нескольких сотен до первых десятков градусов.

Из-за быстрого убывания содержаний радионуклидов РЗЭ и тепловыделения при их распаде рост температуры снизится после нахождения матрицы во временном хранилище. При временном хранении 1 год расчётные температуры матрицы составят 3300°С через год и 200°С спустя 10 лет после размещения в скважине (рис. 5 б). В случае выдержки 5 лет рост температуры матрицы РЗЭ через год оценивается в 100–200°С и снизится до 50–90°С через 10 лет, а прогрев пород составит первые десятки метров (рис. 5 в, г).

В зависимости от размера и предварительного хранения блока стекла и керамики Синрок, содержащих от 25 до 35 мас. % ВАО [13], максимальная температура в центре блока меняется от 200–300°С (диаметр 0.3 м) до 800–900°С

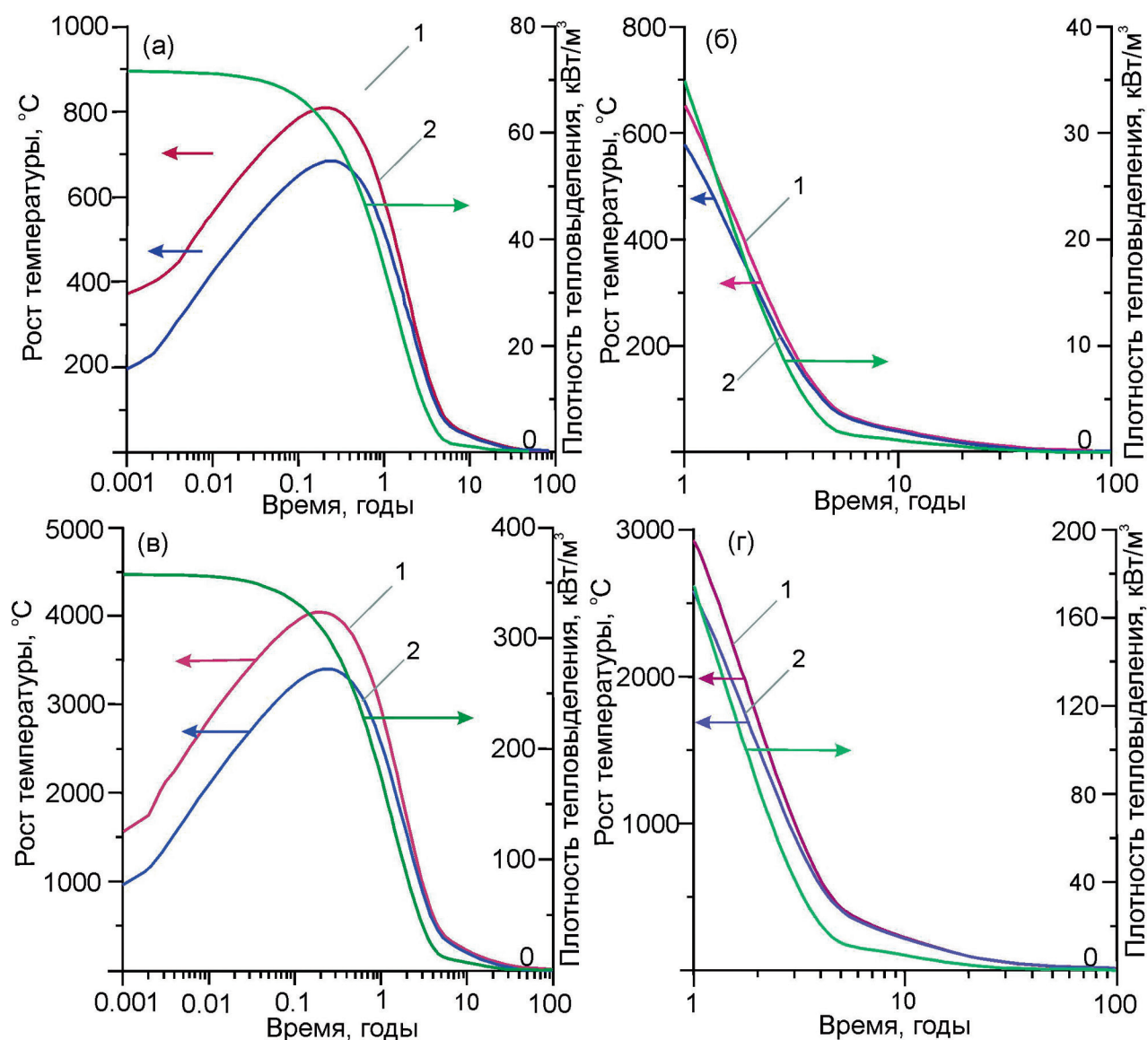


Рис. 2. Тепловыделение (зелёная кривая) и температура в центре (1) и на поверхности (2) блока стекломатрицы в интервале 0.001 год – 100 лет (а, в) и 1 год – 100 лет (б, г) для содержаний РЗЭ 10 (а, б) или 50 (в, г) мас. %. Без слоя бентонитового буфера.

(0.7–1 м). Рассчитаны [15] температуры стекла с 50 мас. % РЗЭ в зависимости от размера блока и содержания транс-урановых элементов (ТУЭ) в РЗЭ фракции из-за их неполного извлечения. При 20% ТУЭ в отходах начальная температура в центре блока диаметром 1 м оценивается в 900°C.

В целом, применение матриц ВАО с высоким содержанием отходов (их фракций) позволяет наиболее рационально использовать подземные хранилища. Одновременно это приведёт к повышению температуры хранилища и может повлиять на его долговременное состояние. Негативный эффект радиогенного тепла связан

с усилением коррозии матриц, контейнера, буфера, возникновением конвективных течений подземных вод, увеличением проницаемости пород в силу разных коэффициентов теплового расширения минералов, кристаллизацией стекла и ухудшением его свойств [10]. В концепциях захоронения ВАО принимается, что температура в хранилище не может превышать 100°C, тепловыделение матриц во избежание кристаллизации должно быть ниже 2–5 кВт/м³, что ограничивает содержания ВАО в Al-P- и B-Si-стёклах на уровне 3–5 мас. % и 15–25 мас. % [5, 6, 10, 16].

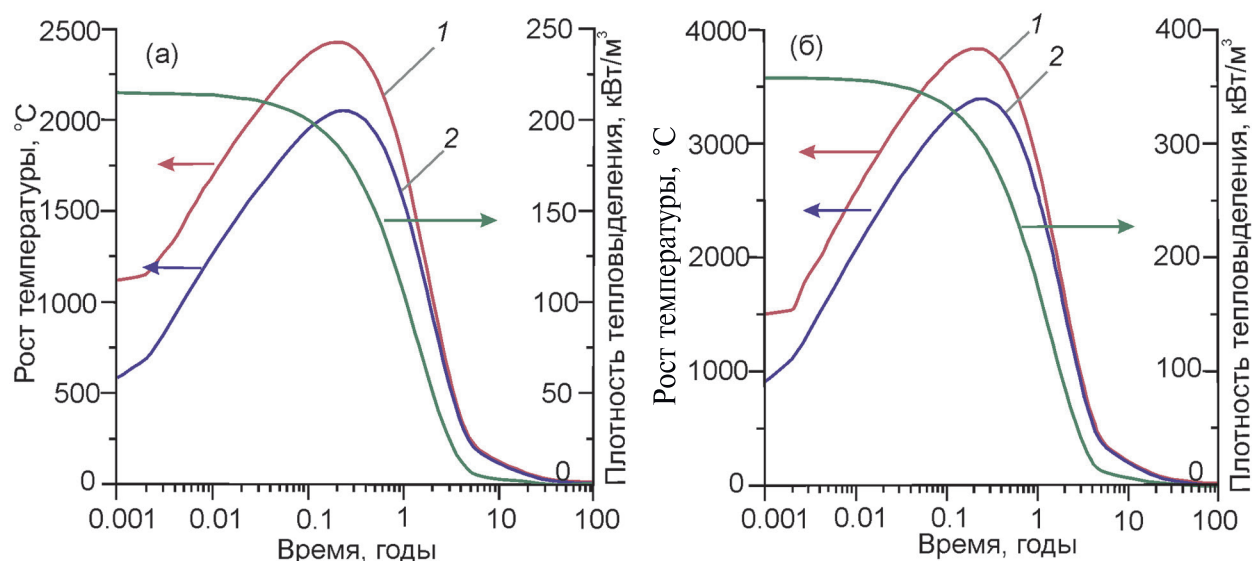


Рис. 3. Тепловыделение (зелёные кривые) и температура стекла (а) и керамики (б) с 30 мас. % РЗЭ в центре блока матрицы (1) и на его поверхности (2), бентонит отсутствует.

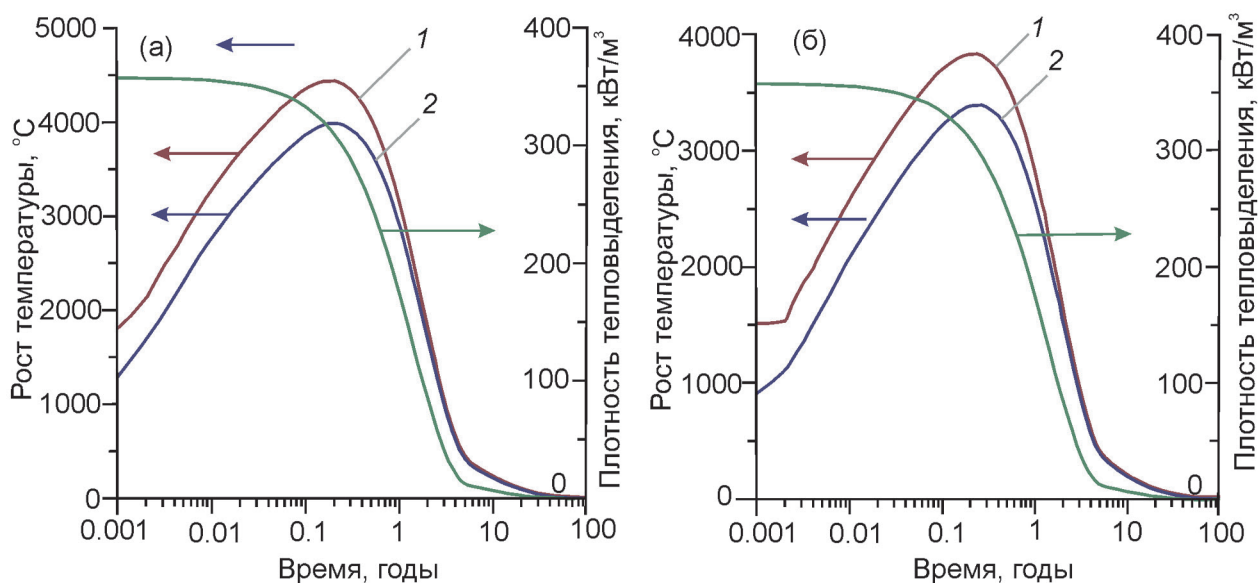


Рис. 4. Тепловыделение (зелёная кривая) и температура в центре (1) и на поверхности (2) блока керамической матрицы с 30 мас. % РЗЭ при наличии бентонита (а) или без него (б).

Хранение ОЯТ до переработки или матрицы с отходами до захоронения 10 и более лет существенно снизит тепловой эффект распада радиоизотопов РЗЭ, что ограничит рост температуры матрицы десятками градусов. При высоком выгорании топлива и малом времени хранения ОЯТ до переработки, например, как предполагается в проекте “Прорыв” [5], вклад распада

радиоизотопов РЗЭ в тепловыделение и нагрев может оказаться гораздо более существенным и это необходимо учитывать в технологических операциях, связанных с переработкой ядерного топлива и при обращении с отходами.

Подземные хранилища ВАО могут быть шахтного типа с глубиной 0.5–1 км, в виде вертикальных скважин (3–5 км) или скважин с

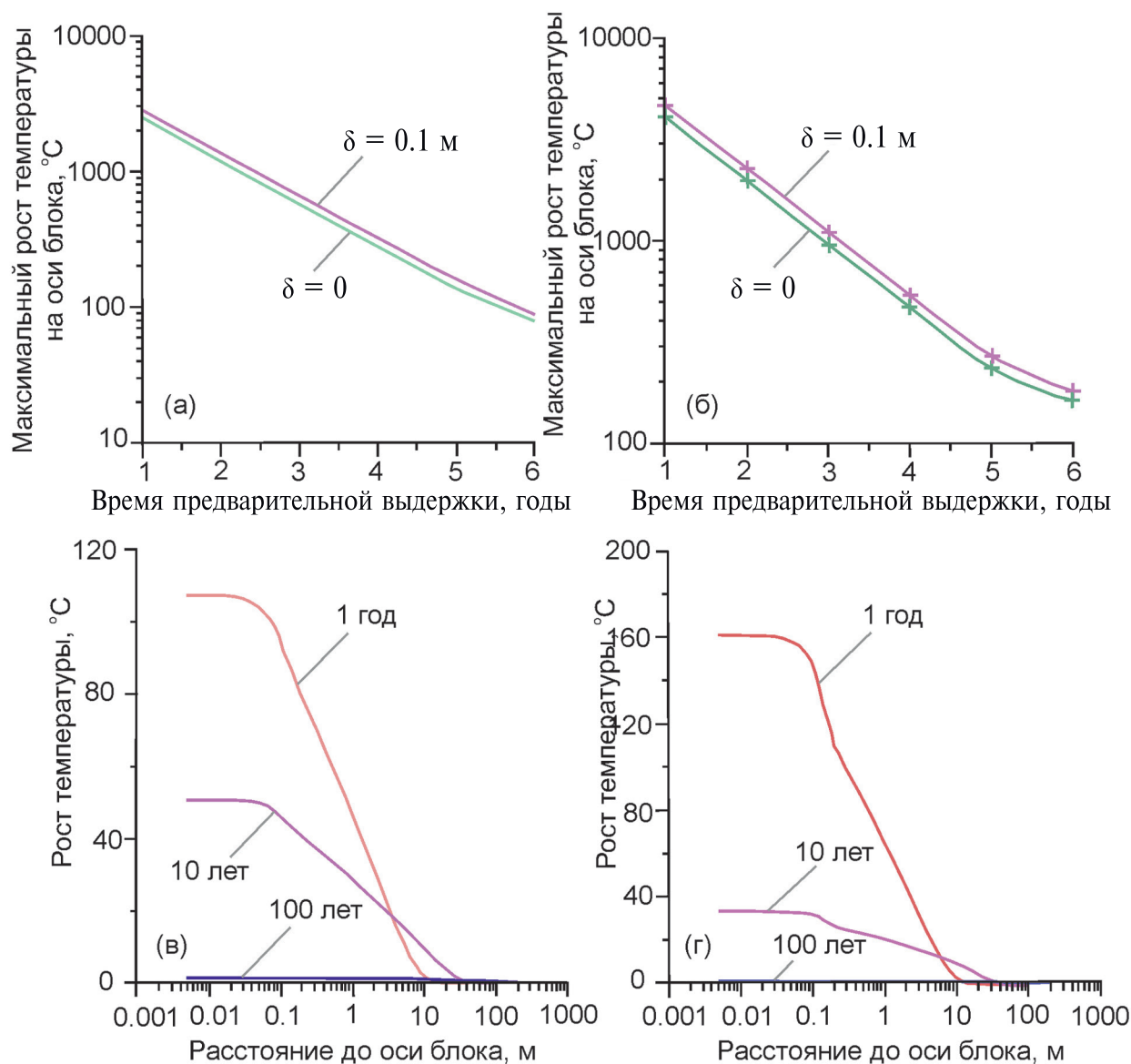


Рис. 5. Температура в центре блока стекла (а) и керамики (б) при хранении от 1 года до 6 лет со слоем бентонита толщиной 0.1 м (фиолетовая кривая) и без него (зелёная кривая), масштаб по оси “У” логарифмический. Профили температур в хранилище через год, 10 и 100 лет после загрузки стекломатрицы при условии временного хранения 5 лет без буфера (в) и со слоем бентонита толщиной 0.1 м (г). Содержание РЗЭ во всех случаях составляет 30 мас. % (35 мас. % в расчёте на PZEO_3), радиус блока матрицы отходов равен 0.1 м.

горизонтальным окончанием (1–2 км). Преимущества глубоких скважин для высокоактивных теплогенерирующих отходов [18]: безопасность в связи с большой глубиной захоронения; экономичный доступ к породам, обладающим высокими изолирующими свойствами; низкие требования к инфраструктуре и небольшая площадь наземных сооружений; малое время сооружения, загрузки отходов и запечатывания хранилища; возможность создания вблизи от места генерации отходов; низкая вероятность

несанкционированного доступа; минимальный контроль после закрытия хранилища; солёность вод препятствует конвекции из-за тепловыделения ВАО; актиниды имеют низкую растворимость в восстановительных условиях; нестабильность коллоидов радионуклидов в глубоких подземных водах — рассолах. Недостатком высоких температур в хранилище является увеличение скорости коррозии контейнера и матрицы ВАО в подземных водах, а также неустойчивость и разрушение бентонитового буфера.

Однако нагрев имеет и ряд положительных эффектов. К ним относятся: замедление аморфизации структуры фаз под действием радиоактивного распада актинидов [7, 8] и возможность образования минералоподобных высокоустойчивых в подземных водах фаз актинидов при кристаллизации стекломатриц [6]. Одним из решений при использовании матриц с теплогенерирующими отходами может быть захоронение в скважинах глубиной 3–5 км [11, 13, 14, 18], в которых область размещения матриц отделена от поверхности горизонтами из слабопроницаемых пород. Это снизит влияние тепловой конвекции вод и поступление радионуклидов в биосферу, что важно для наиболее опасных актинидов. В этом случае можно отказаться от буфера, который из-за повышенной температуры матриц и геотермического градиента будет неустойчив. Для глубоких скважин предпочтительны матрицы ВАО малого объёма и размера упаковки с высокой удельной активностью. Они представляют интерес для захоронения отработанных источников на основе ^{137}Cs или ^{90}Sr , а также фракций ВАО, например, РЗЭ–МА и Pu-содержащих материалов.

Расчёты показали, что распад РЗЭ будет короткое время (несколько лет) влиять на нагрев матрицы гипотетической фракции РЗЭ–МА. При содержании 30 мас. % РЗЭ рост температуры через год оценивается в 100°C , а через 10 лет как менее 40°C . Распад малых актинидов, обеспечит длительный, многие десятки лет, радиационно-индуцированный нагрев. В сочетании с геотермическим градиентом температура матрицы в скважинном хранилище десятки лет будет составлять $500\text{--}800^\circ\text{C}$, что вызовет кристаллизацию фаз РЗЭ и актинидов. Хотя однородность остеклованных ВАО — обязательное требование к этим материалам [5], образование устойчивых фаз актинидов положительно повлияет на безопасность хранилища. Преимущества и недостатки глубоких скважинных хранилищ, в том числе содержащих фракцию РЗЭ–МА, требуют дальнейшего обсуждения и анализа. Отметим, что неучет тепловых и радиационных эффектов при синтезе и изучении матриц с имитаторами радионуклидов ограничивает практическую значимость таких результатов.

Известны [19, 20] другие предложения использования радиоактивного тепла — для захоронения высокорadioактивных отходов путём плавления пород и погружения вглубь Земли. В таких построениях источником радиогенного тепла, способного нагреть породы выше 1200°C ,

служили сферические и цилиндрические контейнеры диаметром от 0.1 до 1 м, содержащие ВАО, ОЯТ или отдельные радиоизотопы с высокой удельной активностью. Необходимость использования тугоплавких дорогостоящих контейнеров — это лишь самая малая из возникающих при этом проблем. В другом сценарии контейнер с ВАО помещают в скважину, заполненную материалом с меньшей температурой плавления, чем у пород, но пока все подобные предложения не вышли за рамки гипотез и теоретических расчётов.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы благодарят рецензента за внимательное чтение статьи и ценные замечания.

ИСТОЧНИК ФИНАНСИРОВАНИЯ

Субсидия Министерства науки и высшего образования Российской Федерации на выполнение темы НИР государственного задания ИГЕМ РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Петров В. А., Юдинцев С. В. Минеральные ресурсы атомной отрасли России и изоляция радиоактивных отходов // Геология рудных месторождений. 2023. Т. 65. № 5. С. 450–462.
2. Implications of partitioning and transmutation in radioactive waste management. Vienna: IAEA, Report 435, 2004. 126 p.
3. Копырин А. А., Карелин А. И., Карелин В. А. Технология производства и радиохимической переработки ядерного топлива. М.: “Атомэнергоиздат”, 2006. 576 с.
4. Carter J. T., Luptak A. J., Gastelum J., Stockman C., Miller A. Fuel cycle potential waste inventory for disposition. Aiken, SC, USA: Savannah River National Laboratory, 2012. 328 p.
5. Кашеев В. А., Логунов М. В., Шадрин А. Ю., Рыкунова А. А., Шмидт О. В. Стратегия фракционирования ВАО от переработки ОЯТ // Радиоактивные отходы. 2022. № 2 (19). С. 6–16.
6. Yudin S. V., Ojovan M. I., Malkovsky V. I. Thermal effects and glass crystallization in composite matrices for immobilization of the rare-earth element—minor actinide fraction of high-level radioactive waste // Journal of Composite Science. 2024. V. 8. 70.
7. Ringwood A. E., Kesson S. E., Reeve K. D., Levins D. M., Ramm E. J. Synroc // Radioactive waste

- forms for the future. W. Lutze, R.C. Ewing (Eds.). NY, USA: Elsevier, 1988. P. 233–334.
8. Ewing R. C., Webert W. J., Clinard F. W. Radiation effects in nuclear waste forms for high-level radioactive waste // *Progress in Nuclear Energy*. 1995. V. 29. № 2. P. 63–121.
 9. Malkovsky V. I., Yuditsev S. V., Ojovan M. I., Petrov V. A. The influence of radiation on confinement properties of nuclear waste glasses // *Science and Technology of Nuclear Installations*. 2020. 8875723.
 10. Wang J. S. Y., Mangold D. C., Tsang C. F. Thermal impact of waste emplacement and surface cooling associated with geologic disposal of high-level nuclear waste // *Environmental Geology and Water Science*. 1988. V. 11. № 2. P. 183–239.
 11. Sizgek G. D. Thermal considerations in a very deep borehole nuclear waste repository for Synroc // *Material Research Society Proceedings*. V. 663. 2000. 819.
 12. Дробышевский Н. И., Моисеенко Е. В., Бутов Р. А., Токарев Ю. Н. Трехмерное численное моделирование теплового состояния пункта глубинного захоронения радиоактивных отходов в Нижнеканском массиве горных пород // *Радиоактивные отходы*. 2017. № 1. С. 64–73.
 13. Hsieh Y. H., Rushton M. J. D., Fossati P. C. M., Lee W. E. Thermal footprint of a geological disposal facility containing EURO-GANEX wastefoms // *Progress in Nuclear Energy*. 2020. V. 118. 103065.
 14. Юдинцев С. В., Мальковский В. И., Каленова М. Ю. Тепловое поле скважинного хранилища радиоактивных отходов // *ДАН*. 2021. Т. 498. № 2. С. 92–100.
 15. Choi J.-H., Eun H.-C., Lee T.-K., Lee K.-R., Han S.-Y., Jeon M.-K., Park H.-S., Ahn D.-H. Estimation of centerline temperature of the waste form for the rare earth waste generated from pyrochemical process // *Journal of Nuclear Materials*. 2017. V. 483. P. 82–89.
 16. Donald I. W. Waste immobilisation in glass and ceramic based hosts. Chichester, UK: Wiley, 2010. 507 p.
 17. Fadzil S. M., Hrma P., Schweiger M. J., Riley B. J. Liquidus temperature and chemical durability of selected glasses to immobilize rare earth oxides waste // *Journal of Nuclear Materials*. 2015. V. 465. P. 657–663.
 18. Kochkin B., Malkovsky V., Yuditsev S., Petrov V., Ojovan M. Problems and perspectives of borehole disposal of radioactive waste // *Progress in Nuclear Energy*. 2021. V. 139. 103867.
 19. Gibb F. G. F. A new scheme for the very deep geological disposal of high-level radioactive waste // *Journal of the Geological Society*. 2000. V. 157. P. 27–36.
 20. Arutunyan R., Bolshov L., Shvedov A. A new approach to radioactive waste self-burial using high penetrating radiation // *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2018. V. 55. Iss. 9. P. 971–978.

THERMAL EFFECTS IN THE MATRIX WITH THE RARE EARTH FRACTION

Corresponding Member of the RAS S. V. Yuditsev[#], V. I. Malkovsky

*Institute of Geology of Ore Deposits, Petrography, Mineralogy and Geochemistry, Russian Academy of Sciences,
Moscow, Russian Federation*

[#]E-mail: yuditsevsv@gmail.com

Separation of high-level waste (HLW) onto fractions simplifies their isolation in matrices and disposal. One of these fractions consists of rare earths (REE) and minor actinides (MA = Am, Cm). Among the rare earth elements there are isotopes ¹⁴⁴Ce, ¹⁴⁷Pm, ¹⁵¹Sm, and ¹⁵⁴,¹⁵⁵Eu with half-lives of up to 93 years, decay of the nuclides will cause heating of the matrices with HLW. It has been shown that preliminary storage of the REE–MA matrix for 10 years or more will reduce the content of REE radioisotopes and their contribution to temperature increase in geological repository.

Keywords: radioactive waste, rare earths, actinides, matrix, decay, heating