

Акционерное общество  
«Государственный научный центр Российской Федерации –  
Физико-энергетический институт имени А. И. Лейпунского»

*На правах рукописи*



**Легких Кристина Геннадьевна**

**ОБОСНОВАНИЕ ПРИМЕНЕНИЯ ПИРОХИМИЧЕСКОЙ  
И ГАЗОФАЗНОЙ ТЕХНОЛОГИЙ ПЕРЕРАБОТКИ РАДИОАКТИВНЫХ  
ЩЕЛОЧНЫХ ЖИДКОМЕТАЛЛИЧЕСКИХ ТЕПЛОНОСИТЕЛЕЙ  
(НАТРИЙ, НАТРИЙ-КАЛИЙ) ДЛЯ РЕШЕНИЯ ПРАКТИЧЕСКИХ ЗАДАЧ  
ПРИ ВЫВОДЕ ИЗ ЭКСПЛУАТАЦИИ РЕАКТОРОВ  
НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ**

Специальность: 2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл,  
радиационная безопасность (технические науки)

**АВТОРЕФЕРАТ**  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата технических наук

Обнинск – 2025

Работа выполнена в акционерном обществе «Государственный научный центр Российской Федерации – Физико-энергетический институт имени А. И. Лейпунского»

Научный руководитель: **Смыков Владимир Борисович**  
кандидат технических наук, руководитель  
направления АО «ГНЦ РФ – ФЭИ»

Официальные оппоненты: **Грачев Алексей Фролович**  
доктор технических наук, профессор,  
главный эксперт акционерного общества «Прорыв»  
госкорпорации «Росатом», г. Москва

**Шадрин Андрей Юрьевич**  
доктор химических наук, старший научный  
сотрудник, заместитель директора – директор  
направления радиохимии частного учреждения по  
обеспечению научного развития атомной отрасли  
«Наука и инновации», г. Москва

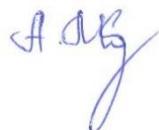
Ведущая организация: Акционерное общество «Государственный  
научный центр – Научно-исследовательский  
институт атомных реакторов»  
(АО «ГНЦ НИИАР»), г. Димитровград

Защита состоится «17» сентября 2025 года в 14 часов 30 минут на заседании диссертационного совета 75.1.077.01 на базе акционерного общества «Государственный научный центр Российской Федерации – Физико-энергетический институт имени А. И. Лейпунского», по адресу: 249033, г. Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, 1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке АО «ГНЦ РФ – ФЭИ» и на сайте <https://www.ippe.ru>

Автореферат разослан « \_\_\_\_ » \_\_\_\_\_ 2025 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета 75.1.077.01  
доктор технических наук



А. В. Морозов

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### Актуальность темы исследования

В настоящее время в России на стадии подготовки к выводу из эксплуатации находится исследовательский реактор (ИР) БР-10 (модернизированный БР-5), готовится к окончательному останову ИР БОР-60. В Казахстане на стадии окончательного останова находится реактор БН-350, в Японии – Монджу, во Франции – Рапсодия, Феникс. В упомянутых установках использовался щелочной жидкометаллический теплоноситель (ЩЖМТ) для охлаждения активной зоны.

Одной из важных проблем при выводе из эксплуатации реакторных установок с ЩЖМТ является переработка теплоносителя с получением продукта, пригодного для захоронения.

Французскими коллегами предложен способ переработки ЩЖМТ, однако он значительно увеличивает объем продукта переработки. Для хранения продукта переработки теплоносителя первого и второго контуров АЭС SUPERPHENIX (объем исходного ЩЖМТ 5500 м<sup>3</sup>) объемом 70000 м<sup>3</sup>, полученного технологией НОАН, построили хранилище размером 30×20×200 метров. Использование водных технологий для переработки ЩЖМТ сопряжено с выделением и накоплением пожаровзрывоопасного водорода.

Следовательно, является актуальной разработка и обоснование применения технологий переработки радиоактивных ЩЖМТ, позволяющих решить практические задачи при выводе из эксплуатации реакторов на быстрых нейтронах, которые не являются пожаробезопасными и не приводят к чрезмерному увеличению объема продукта переработки.

### Степень разработанности темы:

Для переработки радиоактивного ЩЖМТ предложены и применены на ОИАЭ водные способы переработки натрия и способ твердофазного окисления. Для водных способов переработки ЩЖМТ характерны высокое тепловыделение и значительное образование водорода, что является пожаровзрывоопасным фактором. В описании к водным способам переработки ЩЖМТ не приведено обращение с вторичными РАО и их объемы.

Для отмывки оборудования от остатков ЩЖМТ в литературных источниках описан способ обработки оборудования водяным паром или смесью водяного пара и углекислого газа, который также приводит к образованию значительного количества водорода.

Учитывая многообразие перечисленных способов, необходимо проведение научно-технического обоснования выбора способа иммобилизации отработавшего радиоактивного ЩЖМТ для реализации мероприятий по

выводу из эксплуатации РУ типа БН. Наиболее перспективными способами по совокупности факторов (увеличение конечного продукта переработки, объем вторичных РАО, пожаровзрывобезопасность) являются газофазные способы нейтрализации недренируемых остатков ЩЖМТ и способ твердофазного окисления ЩЖМТ (натрий, натрий-калий).

### **Цель и задачи:**

Целью данной работы является обоснование применения пирохимической и газофазной технологий переработки радиоактивных щелочных жидкометаллических теплоносителей (натрий, натрий-калий с примесью ртути) на примере научно-технического полигона ИР БР-10.

Задачи представляемой работы:

- разработка способа обращения с отработавшим ЩЖМТ, загрязненным ртутью, на базе пирохимической реакции твердофазного окисления (ТФО) и локализации выделяющейся ртути для обеспечения радиационной безопасности и экологической приемлемости захоронения продуктов переработки;
- разработка способа газофазного окисления недренируемых остатков ЩЖМТ для перевода реакторного оборудования в пожаровзрывобезопасное состояние для обеспечения радиационной и экологической безопасности выводимых из эксплуатации объектов ядерной техники, утилизации и захоронения накопленных РАО ЩЖМТ;
- определение механической прочности и скорости выщелачивания цезия-137 из продукта твердофазного окисления отработавшего ЩЖМТ, отвержденного различными исполнениями данного способа (МАГМА-ТФО, МИНЕРАЛ) на соответствие требованиям НП-019-15;
- сравнительная оценка стоимости переработки РАО натрия первого контура РУ типа БН способами ТФО и НОАН.

### **Научная новизна:**

- впервые разработан и экспериментально подтвержден способ переработки отработавшего ЩЖМТ, загрязненного ртутью, и локализации выделяющейся ртути для обеспечения радиационной и экологической безопасности при выводе из эксплуатации объекта ядерной техники БР-10. В процессе проведения работ доказана эффективность применения сорбционного пиролюзитового фильтра на газовой линии в составе модуля МАГМА-ТФО;
- впервые разработан способ газофазного окисления недренируемых остатков ЩЖМТ для перевода реакторного оборудования в пожаровзрывобезопасное состояние;

- определены скорости выщелачивания цезия-137 из образцов продуктов твердофазного окисления отработавшего ЩЖМТ, отвержденного путем сброса шлака в расплав ЩЖМТ и посредством закачки ЩЖМТ под слой шлака;
- проведена сравнительная оценка стоимости переработки РАО натрия первого контура технологиями ТФО и НОАН.

### **Теоретическая и практическая значимость работы:**

- показана возможность применения пиролюзитового фильтра в составе модуля МАГМА-ТФО для переработки отработавшего ЩЖМТ, загрязненного ртутью, что дало возможность отказаться от использования жидкометаллической хроматографии для предварительной очистки сплава натрий-калий-ртуть на модуле ГЕТТЕР;
- экспериментально доказана эффективность использования газовой смеси-реагента, состоящей из закиси азота и углекислого газа в газе-носителе (Ar) для нейтрализации остатков ЩЖМТ в оборудовании;
- экспериментально доказано соответствие значений скоростей выщелачивания по цезию-137 образцов продуктов твердофазного окисления отработавшего ЩЖМТ требованиям НП-019-15.

### **Методология и методы исследования**

Методология исследования базируется на следующих принципах:

- в основу диссертационной работы заложены известные, отработанные на практике методы измерения;
- для получения экспериментальных данных использовались реальные физические объекты (стендовая база);
- исследования проводились на реальных РАО ЩЖМТ (натрий, натрий-калий);
- для оценки эффективности технологий переработки отработавшего ЩЖМТ (натрий, натрий-калий) применялись действующие государственные и отраслевые нормативы.

В диссертационной работе выполнены исследования процесса нейтрализации недренируемых остатков радиоактивного щелочного теплоносителя в реакторном оборудовании на модуле ЛУИЗА-РАО, расположенном на ИР БР-10.

Проведено определение скорости выщелачивания Cs-137 из продукта твердофазного пирохимического окисления отработанного ЩЖМТ, отвержденного различными способами (МАГМА-ТФО, МИНЕРАЛ) по ГОСТ Р

52126–2003 «Определение химической устойчивости отвержденных высокоактивных отходов методом длительного выщелачивания».

Исследования по разработке способа обращения с отработавшим ЩЖМТ, загрязненным ртутью, проводились на стенде ГЕТТЕР с использованием нерадиоактивных модельных сплавов натрий-калий-ртуть.

Определение содержания ртути в пробах пиролюзита и продукта ТФО сплава натрий-калий-ртуть осуществлялись методом атомно-эмиссионной спектроскопии с индуктивно-связанной плазмой.

Оценка стоимости переработки РАО натрия первого контура технологиями ТФО и НОАН проводилась на основе действующих тарифов на переработку РАО, установленных законодательством РФ.

### **Положения, выносимые на защиту**

1. Модернизация способа ТФО для пирохимической переработки отработавшего ЩЖМТ, загрязненного ртутью. Определение содержания ртути в продукте ТФО натрий-калий-ртути и пиролюзите. Определение термической устойчивости сорбционного комплекса «ртуть-пиролюзит».

2. Состав газовой смеси реагента, соотношение газов-реагентов в смеси и механизм нейтрализации газовой смесью недренируемых остатков ЩЖМТ для перевода внутриреакторного оборудования в пожаровзрывобезопасное состояние.

3. Соответствие полученных значений механической прочности и скорости выщелачивания Cs-137 для продукта твердофазного окисления отработанного ЩЖМТ, отвержденного различными способами (МАГМА-ТФО, МИНЕРАЛ), установленным нормам. Сравнение полученных данных с аналогичными характеристиками цементированных РАО.

4. Проведение сравнительной оценки стоимости переработки РАО натрия первого контура технологиями ТФО и НОАН проводилась общепринятыми подходами.

### **Степень достоверности и апробация результатов**

Воспроизводимость результатов выполненных исследований, объем данных, полученных в результате проведения лабораторных и стендовых исследований; применение методик, изложенных в ГОСТах, и согласованность полученных результатов существующим литературным данным обеспечивают достоверность полученных в работе результатов.

### **Внедрение результатов**

По результатам исследований, полученных на модельных сплавах натрий-калий-ртуть, было произведено оснащение стенда МАГМА-ТФО

пиролюзитовым фильтром с последующей переработкой 4,5 м<sup>3</sup> отработавшего ЩЖМТ, загрязненного ртутью (техническая справка № 224/7.14-49/84 от 25.10.2021).

На площадке ИР БР-10 экспериментально доказана эффективность использования газовой смеси-реагента, состоящей из закиси азота и углекислого газа для нейтрализации недренируемых остатков ЩЖМТ во внутривапорном оборудовании.

Данным способом переработано 18 холодных ловушек оксидов (ХЛО) первого и второго контуров ИР БР-10 в соответствии с Руководством по эксплуатации модуля «ЛУИЗА-РАО» РЭ № БР-10.01-2017, что обеспечивает их радиационную безопасность и экологическую приемлемость для РАО при приемке на металлургическую переработку. Предложенный способ газофазного окисления остатков ЩЖМТ запатентован (патент РФ 2794139), его внедрение на ИР БР-10 подтверждено актами использования (224/7.1.05-08/30 и 224/7.1.05-08/31 от 09.02.2024; 224/7.1.05-08/25 и 224/7.1.05-08/26 от 17.02.2025).

Способом ТФО переработано порядка 10 м<sup>3</sup> радиоактивного натриевого теплоносителя ИР БР-10. Произведено определение соответствия продукта переработки ЩЖМТ критериям приемлемости к захоронению в соответствии с НП-093-14, РБ-155-20. По результатам исследований выпущено техническое заключение «О безопасности продуктов ТФО натрия первого контура ИР БР-10, предназначенных к захоронению» (№ 224/7.1.05-42/110 от 20.06.2024). На основании проведенных испытаний были выполнены оценки стоимости иммобилизации отработавшего ЩЖМТ для РУ БН-600 и БН-350.

**Личный вклад** заключается в постановке целей и задач, разработке программ и проведении экспериментов, получении результатов, обосновании научных положений и выводов и непосредственном проведении укрупненных опытно-лабораторных испытаний по нейтрализации остатков ЩЖМТ, переработке сплава натрий-калий-ртуть, определению характеристик продуктов отвержденного ЩЖМТ.

## **Публикации и апробация работы**

Основные положения и результаты работы доложены и обсуждены на российских и международных конференциях [1] – [7], изложены в периодических рецензируемых изданиях из списка ВАК [8] – [13], международных изданиях [14], способ перевода оборудования с недренируемыми остатками щелочного металла во взрывопожаробезопасное состояние и устройство его осуществления запатентован [15].

## ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

**Во введении** обоснована актуальность темы диссертации, определены цель и задачи исследований, приведены методы исследования, показаны научная новизна, практическая значимость и личный вклад автора, а также сформулированы основные положения, выносимые на защиту.

**В первой главе** приведены объемы и составы РАО ЩЖМТ ИР БР-10, которые представлены отработавшим ЩЖМТ первого и второго контура реактора, сплавом натрия-калий с примесью ртути (до 7,5 % мас.), щелочным металлом в сливных баках 1-й и 2-й петлях второго контура, транспортных емкостях натрия, экспериментальных устройствах, пеналах хранения отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС), отработавших холодных ловушках оксидов (ХЛО) первого и второго контуров (18 штук, заполненные натрием) и др. Суммарно накоплено 18–19 м<sup>3</sup> отходов ЩЖМТ. Эти отходы щелочных металлов образовались в результате трехкратной замены теплоносителей в реакторе. Химический и радионуклидный состав отработавших щелочных теплоносителей приведен на рисунке 1.



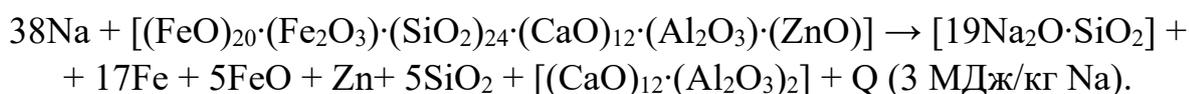
Рис. 1. Состав отходов щелочных теплоносителей на ИР БР-10

Проанализированы методы иммобилизации отработавшего ЩЖМТ: растворение в органических растворителях, распыление щелочного металла в атмосферу закиси азота, твердофазное окисление шлаком медеплавильного производства, растворение в 10 % натриевой щелочи (технология NOАН). Технологией NOАН, включающей перевод натрия в раствор щелочи с последующим цементированием, либо ее кислотной нейтрализацией с выделением солей натрия (выпариванием), их осушкой и прессованием. Первым вариантом данной технологии была проведена переработка отработавшего ЩЖМТ первого и второго контуров реактора SUPERPHENIX (Крей-Мальвиль, Франция).

Вторым вариантом предполагается переработать натрий реактора PHENIX (Маркуль, Франция). На SUPERPHENIX всего было переработано 5500 т натрия в 70000 т цементного компаунда, при этом выделилось

2,65 млн м<sup>3</sup> водорода. На его разбавление понадобилось 265 млн м<sup>3</sup> азота перед сбросом в атмосферу.

Способ твердофазного окисления натрия основан на пирохимическом взаимодействии натрия со шлаком медеплавильного производства:



На площадке БР-10 для создания и отработки способа ТФО были созданы стенды МИНЕРАЛ-3 и МИНЕРАЛ-30. Экспериментальная отработка выбранного способа ТФО сплава натрий-калий-ртуть на стенде МИНЕРАЛ-3 показала, что положительными характеристиками созданной технологии ТФО являются:

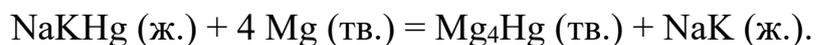
- практическое отсутствие выделения водорода в защитный газ (аргон);
- одностадийность процесса получения конечного твердого продукта;
- отсутствие необходимости применения механизмов для смешения реагентов;
- конечный продукт представляет собой твердый минералоподобный компаунд, не растворимый в воде;
- объем конечного твердого продукта переработки щелочного металла превышает исходный объем щелочного металла в 3 раза;
- дополнительная очистка ЩЖМТ от цезия-137 не требуется, так как цезий при реакции с компонентами шлака образует нелетучие алюмосиликаты и иммобилизуется в матрице конечного продукта;
- перед проведением ТФО шлак предварительно термически обрабатывается в инертной атмосфере для удаления сорбированной и кристаллизационной воды;
- процесс ТФО щелочного металла проходит за 10–15 минут;
- пары ртути попадают в защитный газ за пределы продукта ТФО.

**Во второй главе** рассмотрена специфическая задача обращения с отработавшим ЩЖМТ, загрязненным ртутью, и локализация выделяющейся ртути. Ртуть в щелочном теплоносителе ИР БР-10 появилась в результате модернизации БР-2 в БР-5 с последующей заменой ртутного теплоносителя на натрий-калиевый, а затем неудачным экспериментом с испытанием парогенератора с ртутным подслоем.

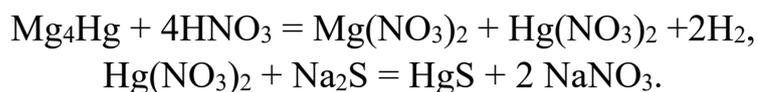
Метод термической отгонки ртути из тройного сплава натрий-калий-ртуть показал низкую эффективность (не более 30 %). Одним из решений для удержания паров ртути в реакционной емкости было использование алюминиевых гранул, засыпаемых поверх слоя шлака медеплавильного производства. Однако после проведения серии экспериментов наблюдалось охрупчивание гранул алюминия из-за потери кислорода пленок. Стоит

отметить, что гранулы алюминия с сорбированной ртутью удалить из емкости невозможно.

Для очистки сплава натрий-калий-ртуть было предложено и экспериментально обосновано применение фильтров с засыпкой металлического магния. При температуре 360–380 °С через магниевый картридж прокачивали сплав натрий-калий-ртуть. При этом имела место следующая необратимая реакция:



Степень очистки сплава от ртути достигала 96–98 %. Однако магниевая засыпка, сорбирующая ртуть, и недренируемый сплав натрий-калий (1:1) оказались еще более химически активным и пожароопасным отходом, чем исходный интерметаллид. В дальнейших исследованиях было показано, что насыщенный ртутью магниевый сорбент можно безопасно утилизировать, выделив из него ртуть в виде нерастворимого твердого осадка, состоящего из киновари HgS (природный минерал):



Однако при оценке масштабирования данного метода на необходимые для переработки NaKHg объемы, выяснилось, что количество образующихся ЖРО от растворения загрязненных ртутью магниевых фильтров многократно превысит количество интерметаллида. По этой причине было принято решение о поиске альтернативного способа выделения ртути.

Согласно действующему на сегодняшний день руководящему документу РБ-155-20 (в совокупности с приказом Минприроды РФ № 536) к длительному хранению допускаются отвержденные РАО, токсичность которых не превышает V класс. Для получения продукта переработки сплава натрий-калий-ртуть способом твердофазного окисления, удовлетворяющего критериям приемлемости в части токсичности было проведено экспериментальное исследование применения сорбционного фильтра в составе стенда МАГМА-ТФО. В качестве сорбционного фильтра предложен пиролюзит.

Была произведена модернизация модуля МАГМА-ТФО, включая установку пиролюзитового фильтра над реакционной емкостью, облицовку помещения железом, автономную вентиляцию через сорбционные воздушные фильтры, установку газоанализатора паров ртути в атмосфере. Накопленный на ИР БР-10 радиоактивный сплав натрий-калий-ртуть перерабатывался партиями по 35–40 литров. Из каждой партии отбирали емкость с продуктом ТФО натрий-калий-ртути, фрагментировали и передавали образцы на анализ. Аналогичные манипуляции производили с сорбционным фильтром. Содержание ртути в образцах определяли методом атомно-эмиссионной

спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой. Результаты определения содержания ртути в продукте ТФО натрий-калия и пиролюзите представлены в таблице 1.

В соответствии с Приказом Министерства природных ресурсов и экологии РФ № 536 «Об утверждении критериев отнесения отходов к I–V классам опасности по степени негативного воздействия на окружающую среду» был произведен расчет степени опасности продукта ТФО натрий-калий-ртути для окружающей среды (К). Максимальное значение К для продукта ТФО натрий-калий-ртути составило 1,4, что соответствует V классу опасности (Приложение 1 к приказу Минздрава № 536). В соответствии с РБ-155-20, к захоронению допускаются компаунды V класса токсической опасности.

Таблица 1 – Содержания ртути в образцах продуктов ТФО натрий-калий-ртути и пиролюзита из сорбционных фильтров

Номер партии	Усредненное содержание ртути в пиролюзите (в фильтре), % мас.		Усредненное содержание ртути в продукте ТФО натрий-калий-ртути, % мас.				
	верхняя часть	середина	проба 1	проба 2	проба 3	проба 4	проба 5
1	$4,7 \cdot 10^{-3}$	39,3	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$1,6 \cdot 10^{-3}$	$2,9 \cdot 10^{-4}$	$3,2 \cdot 10^{-4}$	$5,0 \cdot 10^{-4}$
2	$4,2 \cdot 10^{-4}$	30,1	$4,4 \cdot 10^{-4}$	$6,5 \cdot 10^{-4}$	$2,9 \cdot 10^{-4}$	$3,8 \cdot 10^{-4}$	$4,8 \cdot 10^{-4}$
3	$6,9 \cdot 10^{-4}$	26,9	$2,4 \cdot 10^{-4}$	$5,4 \cdot 10^{-4}$	$4,8 \cdot 10^{-4}$	$2,1 \cdot 10^{-4}$	$3,3 \cdot 10^{-4}$
4	$5,9 \cdot 10^{-4}$	20,6	$1,8 \cdot 10^{-4}$	$3,2 \cdot 10^{-4}$	$2,5 \cdot 10^{-4}$	$4,1 \cdot 10^{-4}$	$2,4 \cdot 10^{-4}$
5	$1,9 \cdot 10^{-4}$	15,9	$2,3 \cdot 10^{-4}$	$8,6 \cdot 10^{-5}$	$3,9 \cdot 10^{-4}$	$9,2 \cdot 10^{-5}$	$1,7 \cdot 10^{-4}$

Примечание: погрешность измерений содержания ртути составила  $\pm 2\%$

Образцы пиролюзита подвергали длительному нагреву с продувкой инертным газом и его подачей в газоанализатор. Появление паров ртути в пробах было зафиксировано при температуре нагрева пиролюзита 450 °С, что говорит об устойчивости сорбционного комплекса (предположительно  $\text{Hg}_2\text{MnO}_2$ ) при нормальных условиях.

**Третья глава** посвящена обоснованию приемлемости продукта ТФО натрия и натрий-калий-ртути к длительному хранению и захоронению. Определены механическая прочность, водостойкость и скорости выщелачивания по цезию-137 продуктов ТФО отработанного щелочного ЖМТ (Na, Na-K), отвержденного различными способами (МАГМА-ТФО и МИНЕРАЛ) и продукта ТФО сплава натрий-калий-ртути.

К настоящему времени разработанным методом ТФО переведено в пожаровзрывобезопасное состояние более 12 м<sup>3</sup> сдренированного ЩЖМТ (натрий) и 4,5 м<sup>3</sup> сплава натрий-калий-ртуть. Однако конечный продукт применения технологии иммобилизации РАО должен соответствовать критериям приемлемости для захоронения. Одним из таких критериев для шлакоподобных компаундов является скорость выщелачивания. Определение скорости выщелачивания радионуклидов из формы РАО рекомендуется выполнять с учетом ГОСТ Р 52126–2003.

Для этого было отобрано пять образцов продукта ТФО ЩЖМТ, полученным на стенде МАГМА, и пять образцов, полученных на установке МИНЕРАЛ-30. Удельная активность образцов продукта ТФО составила  $8 \cdot 10^7$  Бк/кг. Образцы измельчали, после чего отбирали необходимую фракцию для последующих исследований. Контактную воду меняли через 1, 3, 7, 10, 14, 21, 28 суток. Далее измеряли удельную активность растворов после выщелачивания и вычисляли скорость выщелачивания Cs-137. Для сравнения полученных данных было аналогичным образом проведено определение скорости выщелачивания для модельных образцов переработки натрия технологией НОАН. Удельная активность цементных образцов по цезию-137 составила  $10^5$  Бк/кг. Усредненная кинетика выщелачивания отражена на рисунке 2.



Рис. 2. Кинетики выщелачивания образцов отвержденных РАО

В соответствии с требованиями ГОСТ Р 51883–2002 к захоронению в бетонные могильники допускаются отвержденные РАО, скорость выщелачивания которых ниже  $10^{-3}$  г/см<sup>2</sup>·сут при выдержке 28 сут. Согласно РБ-155-20, определение пористости производится для контроля значения других характеристик, в данном случае скорости выщелачивания радионуклидов из компаунда.

Для определения пористости измельченные образцы, используемые для определения скорости выщелачивания, массой 0,5 г помещали в ячейку анализатора газовой сорбции NOVA и анализировали объем и размер пор, согласно встроенным методикам. Результаты измерений представлены в таблице 2.

Приведенные в таблице 2 параметры могут быть связаны со скоростью выщелачивания радионуклидов и оказывать косвенное влияние. Учитывая, что продукт ТФО имеет развитую высокопористую структуру, то площадь контакта воды с образцом максимальна, и при этом скорость выщелачивания Cs-137 не превышает установленного предела. Следовательно, Cs-137 находится в прочном химическом соединении с матрицей компаунда.

Таблица 2 – Результаты определения объема и размера проб образцов ТФО и продукта НОАН

Параметр	Значение для ТФО	Значение для НОАН
Площадь поверхности, м <sup>2</sup> /г (усредненное значение по трем методам)	6,22	4,01
Объем пор, см <sup>3</sup> /г (усредненное значение по трем методам)	$3,65 \cdot 10^{-2}$	$5,31 \cdot 10^{-4}$
Размер пор, нм	0,74–69,67	2,95–387,23

Примечание: погрешность измерений содержания ртути составила: для значений площади поверхности  $\pm 1,7\%$ ; для значений объема пор  $\pm 2,9\%$ ; для значений размера пор  $\pm 2,5\%$

Испытания продукта ТФО на механическую прочность показали величину 38,5 МПа, цементного продукта технологии НОАН – 14,7 МПа. Нормативное требование для цементированных РАО составляет 4,9 МПа.

Устойчивость к длительному пребыванию в воде (90 сут) для продукта ТФО составила 29,8 МПа, для продукта НОАН 17,9 МПа.

Для определения соответствия полученного продукта ТФО натрий-калий-ртути критериям приемлемости были определены следующие характеристики образцов: механическая прочность, выщелачивание цезия-137, водостойкость. Полученные результаты сравнивали со значениями, полученными для продукта ТФО натрия (табл. 3). Существенного снижения параметров компаунда не наблюдалось.

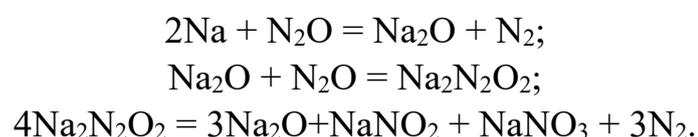
Таблица 3 – Сравнение результатов, полученных для образцов продукта ГФО натрия и натрий-калий-ртути

Параметр	Продукт ГФО натрий-калий-ртути	Продукт ГФО натрия
Механическая прочность (сжатие), МПа	27,1	38,5
Устойчивость к длительному пребыванию в воде (остаточная механическая прочность), МПа	16,7	29,8
Выщелачивание цезия-137, г/см <sup>2</sup> ·сут	$3,86 \cdot 10^{-5}$	$2,03 \cdot 10^{-5}$

Примечание: погрешность измерений: для значений скорости выщелачивания  $\pm 8,5$  %; для значений механической прочности на сжатие  $\pm 6$  %; для значений механической прочности на сжатие после длительного пребывания в воде  $\pm 7$  %

**В четвертой главе** представлен анализ методов нейтрализации остатков ЩЖМТ в оборудовании ЯЭУ типа БН. Рассмотрены методы отмывки оборудования, загрязненного радиоактивным ЩЖМТ: отмывка паром, отмывка органическими растворителями, газофазное окисление. Отражены преимущества и недостатки представленных методов. Проведена модернизация метода газофазного окисления (ГФО) недренируемых остатков ЩЖМТ для перевода внутриконтурного оборудования в пожаровзрывобезопасное состояние.

Опыт ИР БР-10 включает в себя нейтрализацию остатков ЩЖМТ в отдельном оборудовании после слива основной массы щелочного металла, например в отработавших ХЛО. На ИР БР-10 накоплено 16 ХЛО 1-го контура и 2 ХЛО 2-го контура, которые хранились заполненные натрием во всем их внутреннем объеме (200 литров). Основную массу ЩЖМТ из ХЛО сливали в баки промежуточного хранения. Для нейтрализации недренируемых остатков ЩЖМТ использовали способ ГФО, основанный на взаимодействии щелочного металла с газовой смесью-реагентом, состоящей из закиси азота и углекислого газа:

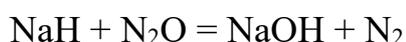


При взаимодействии щелочного металла с закисью азота образуется гипонитрит щелочного металла, который способен спонтанно разлагаться со значительным тепловым эффектом, скачком температуры на несколько сотен градусов, и, как следствие, сопровождается резким повышением давления из-за выделения газообразного азота. По этой причине в состав смеси-реагента вводится углекислый газ. Применение углекислого газа необходимо для

нейтрализации гипонитрита натрия в момент его образования. Процесс нейтрализации натрия в ХЛО протекает с образованием карбоната натрия:



Лабораторные исследования взаимодействия щелочных металлов (натрий, натрий-калий) с закисью азота показали, что начиная с 200 °С протекает медленная реакция с образованием газообразного азота и сухой смеси оксидов, нитритов и нитратов щелочных металлов. Все эти вещества хорошо растворимы в воде, выделение водорода отсутствовало. Кроме того, лабораторные исследования показали, что гидрид натрия (одна из накапливаемых в ХЛО примесей) также взаимодействует с закисью азота и нейтрализуется с выделением азота по реакции:



(реакция с тритидом натрия NaT аналогичная).

Таким образом, можно достичь химической фиксации трития в виде устойчивого вещества – твердой щелочи NaOT и предотвратить его выделение в защитный газ-носитель. Основные технологические параметры процесса взаимодействия щелочного металла с газовой смесью-реагентом были отработаны экспериментально на стендах ИР БР-10. Методом ГФО успешно нейтрализованы остатки натрия во второй петле второго контура без демонтажа и разборки на отдельное оборудование. Основные узлы экспериментального стенда для нейтрализации недренлируемых остатков щелочного металла представлены на рисунке 3.

К газовому циркуляционному контуру подключают оборудование, загрязненное остатками щелочного металла. В качестве газового циркуляционного контура может выступать контур, загрязненный щелочным металлом. Далее в газовый циркуляционный контур подают газ-носитель и дозируют в него газовую смесь-реагент. Соотношение газов-реагентов и температура процесса подбираются индивидуально для каждого случая и зависят от количества остатков натрия и примесей в оборудовании.

Щелочной металл взаимодействует с компонентами смеси-реагента по описанному выше механизму с образованием твердых, взрывопожаро-безопасных продуктов. По окончании нейтрализации щелочного металла в отмываемое оборудование порциями подают водяной пар. Если водород при этом отсутствует, значит нейтрализация прошла до конца. Если же зафиксировано содержание водорода в газовых пробах, то нейтрализацию повторяют.

При необходимости твердые продукты нейтрализации удаляют из оборудования путем растворения в воде. Полученный раствор сливают в спецканализацию. Далее оборудование высушивают горячим инертным газом и

демонтируют или подвергают дезактивации, или передают на длительное хранение. Если в удалении осадка из ХЛО нет необходимости, то сухие соли цементируются непосредственно в корпусе ХЛО.

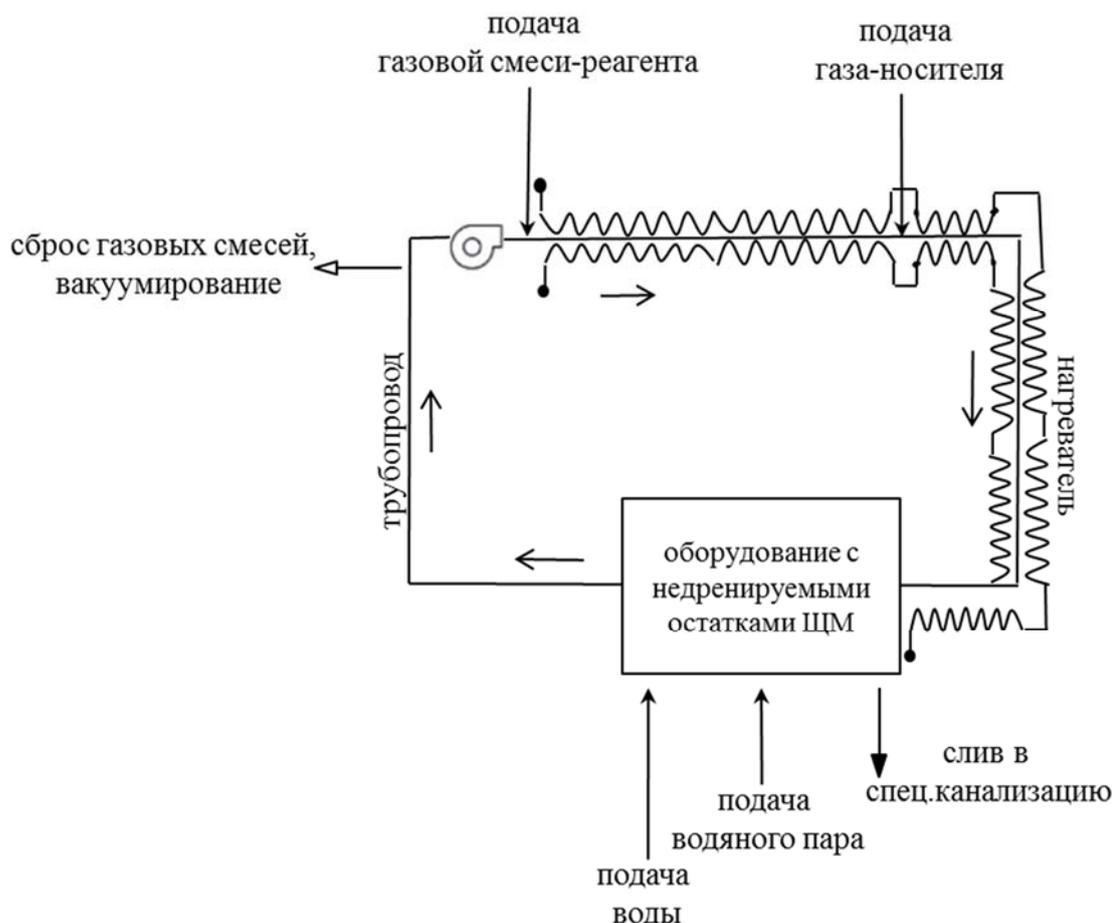


Рис. 3. Принципиальная схема реализации метода газофазного окисления

Основные технологические параметры процесса взаимодействия щелочного металла с газовой смесью-реагентом были отработаны экспериментально на ИР БР-10. Таким образом, было разработано научно-техническое обоснование для безопасной нейтрализации недренных остатков щелочного металла в отдельном оборудовании ИР БР-10 (ХЛО, баки, сифоны, трубопроводы).

На основании полученного опыта и достигнутых результатов был разработан, изготовлен и пущен в эксплуатацию модуль ЛУИЗА в реакторном зале ИР БР-10 для обезвреживания недренных остатков радиоактивного натрия в отработанных ХЛО первого контура и в сливных баках второго и первого контуров. К настоящему времени обезврежены шестнадцать отработавших ХЛО первого контура, две ХЛО второго контура и два сливных бака второго контура.

В пятой главе приведена сравнительная оценка стоимости переработки РАО натрия первого контура способами ТФО и НОАН. Методический подход при определении класса РАО, к которому относится переработанный натрий, основывался на следующем предположении. После окончательной остановки реактора, работавшего с негерметичными твэлами, класс РАО переработанного любым методом натрия будет определяться либо Cs-137 – осколком деления топлива, либо топливным изотопом с наибольшей величиной альфа-излучения (обычно Pu-239). Это связано с тем, что класс РАО материала определяется одним или несколькими изотопами, попавшими в диапазон самого «наихудшего» класса РАО. В таблице 4 в качестве примера приведены границы классов РАО для некоторых изотопов, упомянутых в настоящей работе.

Переработка натрия на реакторе SUPERPHENIX с использованием процесса НОАН с переводом натрия в гидроксид натрия (NaOH), с последующим цементированием осуществлена во Франции. В России к длительному хранению и захоронению допускаются только отвержденные РАО – компаунды, отвечающие требованиям РБ-155-20. По этой причине расчет стоимости переработки натрия технологией НОАН производился с учетом стадии отверждения. Исходное объемное соотношение натрия к цементному компаунду составляет 1:12,7 (удельный вес цементного камня составляет  $\sim 1,03 \text{ г/см}^3$ ). Массовое соотношение натрия к цементному компаунду составляет 1:13,5.

Таблица 4 – Границы классов твердых РАО для некоторых изотопов, Бк/г

Изотоп	Неограниченное использование	Ограниченное использование (не РАО)	4-й класс	3-й класс	2 класс Энерговыделение <0,1 кВт/м <sup>3</sup>	1 класс Энерговыделение 0,1 кВт/м <sup>3</sup>
Cs-137	<0,1	0,1÷10,0	10÷10 <sup>4</sup>	10 <sup>4</sup> ÷10 <sup>7</sup>	>10 <sup>7</sup>	>10 <sup>7</sup>
U-232, U-234, U-235, U-238	<0,1	0,1÷1,0	1,0÷10 <sup>2</sup>	10 <sup>2</sup> ÷10 <sup>3</sup>	10 <sup>3</sup> ÷10 <sup>6</sup>	>10 <sup>6</sup>
Pu-238, Pu-239, Pu-240	<0,1	0,1÷1,0	1,0÷10	10 <sup>1</sup> ÷10 <sup>2</sup>	10 <sup>2</sup> ÷10 <sup>5</sup>	>10 <sup>5</sup>
Стоимость захоронения (на 2027 год), руб./м <sup>3</sup>	–	–	73958,2	215789,4	1104391,8	2391770,5

Исходное объемное соотношение натрия к продукту, отвержденному методом твердофазного окисления щелочных металлов, составляет 1:2,5 (удельный вес шлакоподобного компаунда составляет  $\sim 3,7$  г/см<sup>3</sup>). Массовое соотношение натрия к шлакоподобному компаунду составляет 1:9,5.

Для оценки класса РАО переработанного натрия использовались экспериментальные оценки удельной активности Cs-137 и альфа-излучателей (при их наличии) в отработавшем ЩЖМТ следующих РУ: БР-10, БН-350, БН-600. Далее расчетно оценивалась активность потенциального продукта переработки ЩЖМТ методами ТФО и НОАН и стоимость его захоронения. Результаты представлены в таблице 5.

Следует отметить, что после окончательного останова реактора БН-600 величины активностей изотопов в ЩЖМТ могут отличаться от величин, принятых в расчете, что повлияет на значение стоимости захоронения.

Предварительные сравнительные оценки стоимости стадии окончательного захоронения переработанного в шлакоподобный компаунд (ШПК) натрия первого контура реакторов БР-10 и БН-600 способами ТФО и НОАН показали:

- 1) стоимость операции захоронения переработанного натрия по методу ТФО натрия в  $\sim 5$  раз меньше стоимости захоронения цементного компаунда, полученного при использовании процесса НОАН;
- 2) чтобы переработанный натрий первого контура БН-600 не являлся РАО, необходима предварительная очистка натрия по Cs-137 приблизительно на три порядка, как это было выполнено на реакторе БН-350;
- 3) объем продукта ТФО в 2,5 раза больше исходного объема РАО натрия 1-го контура, объем продукта по технологии НОАН в 15 раз больше исходного количества натрия, что требует строительства дополнительных зданий для хранения;
- 4) для реализации технологии НОАН необходимы значительные объемы инертного газа для разбавления водорода (в 100 раз), что увеличивает стоимость переработки ЩЖМТ;
- 5) для способа ТФО необходим шлак, который является отходом медеплавильной промышленности, а аргон многократно циркулирует по замкнутому контуру (5–6 н.м<sup>3</sup> для МИНЕРАЛ-100/150).

Таблица 5 – Расчетные оценки удельных активностей, объемов, класса РАО и стоимости захоронения переработанного ЩЖМТ РУ БР-10, БН-350, БН-600

Параметр	БР-10	БН-350	БН-600
Удельная активность ЩЖМТ, Бк/г	по $^{137}\text{Cs}$ : $8,7 \cdot 10^4$ по $^{239}\text{Pu}$ : $2,0 \cdot 10^2$	по $^{137}\text{Cs}$ : $1,0 \cdot 10^2$	по $^{137}\text{Cs}$ : $3,0 \cdot 10^4$ по альфа-нуклидам: 1
Класс РАО ЩЖМТ	3	4	3
Объем ЩЖМТ, м <sup>3</sup>	19	670	710
Удельная активность продукта ТФО, Бк/г	по $^{137}\text{Cs}$ : $9,2 \cdot 10^3$ по $^{239}\text{Pu}$ : $2,1 \cdot 10^1$	по $^{137}\text{Cs}$ : 10	по $^{137}\text{Cs}$ : $3,2 \cdot 10^3$ по альфа-нуклидам: 0,1
Класс РАО продукта ТФО	3	Ограниченное использование (не РАО)	4
Объем продукта ТФО, м <sup>3</sup>	47,5	1675	1770
Стоимость захоронения продукта ТФО, млн руб.	<b>10,3</b>	Не требует захоронения	<b>130,9</b>
Удельная активность продукта НОАН, Бк/г	по $^{137}\text{Cs}$ : $6,4 \cdot 10^3$ по $^{239}\text{Pu}$ : $1,5 \cdot 10^1$	по $^{137}\text{Cs}$ : 7,4	по $^{137}\text{Cs}$ : $2,2 \cdot 10^3$ по альфа-нуклидам: 0,07
Класс РАО продукта НОАН	3	Ограниченное использование (не РАО)	4
Объем продукта НОАН, м <sup>3</sup>	241,3	8509	9017
Стоимость захоронения продукта НОАН, млн руб.	<b>52,1</b>	Не требует захоронения	<b>666,9</b>

## ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ И РЕЗУЛЬТАТЫ ДИССЕРТАЦИОННОЙ РАБОТЫ

1. Разработан способ обращения с отработавшим ЩЖМТ, загрязненным ртутью, и локализации выделяющейся ртути для обеспечения радиационной безопасности и экологической приемлемости объектов ядерной техники (БР-10). Разработанным способом переработано 4,5 м<sup>3</sup> отработавшего ЩЖМТ ИР БР-10, загрязненного ртутью.

2. Предложен способ газофазного окисления недренируемых остатков ЩЖМТ для перевода внутривыпускного оборудования в пожаровзрывобезопасное состояние для обеспечения радиационной безопасности и экологической приемлемости выводимых из эксплуатации объектов ядерной техники, утилизации и захоронения накопленных РАО ЩЖМТ. Способом газофазного окисления на ИР БР-10 переведено в пожаровзрывобезопасное состояние 18 ХЛО, вторая петля второго контура без демонтажа и разборки петли на отдельное оборудование, баки длительного хранения, сиффоны, трубопроводы.

3. Выполнено определение механической прочности и скорости выщелачивания цезия-137 из продукта твердофазного окисления отработавшего ЩЖМТ, отвержденного различными исполнениями данного способа (МАГМА-ТФО, МИНЕРАЛ) на соответствие требованиям НП-019-15.

Скорость выщелачивания цезия-137 для продукта ТФО в среднем составила  $8,3 \cdot 10^{-5}$  г/см<sup>2</sup>·сут (допустимое значение  $10^{-3}$  г/см<sup>2</sup>·сут); механическая прочность продукта ТФО составила 38,5 МПа (нормативное значение 4,9 МПа). Устойчивость к длительному пребыванию в воде (90 сут) для продукта ТФО составила 29,8 МПа, что удовлетворяет требованиям ГОСТ Р 51883–2002 (более 4,9 МПа).

4. Проведена сравнительная оценка стоимости переработки РАО натрия первого контура технологиями ТФО и НОАН для БР-10, БН-350 и БН-600.

Стоимость захоронения переработанного натрия по методу ТФО в 5 раз меньше стоимости захоронения цементного компаунда, полученного при использовании процесса НОАН.

Показано, что объем продукта по технологии НОАН в 15 раз больше исходного объема натрия, что требует строительства дополнительных сооружений для хранения. Также для реализации технологии НОАН необходимы значительные объемы инертного газа для разбавления водорода (в 100 раз), что увеличивает стоимость переработки ЩЖМТ. Для способа ТФО необходим шлак, который является отходом медеплавильной промышленности, а аргон многократно циркулирует по замкнутому контуру (5–6 н.м<sup>3</sup> для МИНЕРАЛ-100/150).

5. На основании полученных данных целесообразно рекомендовать технологии пирохимической и газовой переработки отработавшего радиоактивного щелочного теплоносителя и его недренируемых остатков для реализации мероприятий этапа подготовки к выводу из эксплуатации реакторных установок типа БН. Данные технологии актуальны не только для РУ, ожидающих в обозримом будущем останова (БОР-60, БН-600), но и для эксплуатируемых ОИАЭ. Например, концепция вывода из эксплуатации БН-800 может быть дополнена практическими результатами по переработке радиоактивного натриевого теплоносителя, полученными на ИР БР-10. Также в концепциях вывода из эксплуатации строящихся (МБИР) и проектируемых (БН-1200) ОИАЭ могут быть использованы результаты настоящей диссертационной работы.

### **Список работ, опубликованных по теме диссертации:**

#### *Публикации в сборниках докладов:*

1. Газофазное окисление, как метод нейтрализации недренируемых остатков ЩЖМТ в оборудовании / В. Б. Смыков, **К. Г. Легких** // Сб. тезисов научно-технической конференции «Теплофизика реакторов нового поколения (Теплофизика 2022)», 2022 г. – С. 57–58;
2. Особенности переработки сплава «натрий-калий», загрязненного ртутью / М. Х. Кононюк, **К. Г. Легких**, В. Б. Смыков // Сб. тезисов научно-технической конференции «Теплофизика реакторов нового поколения (Теплофизика 2022)», 2022 г. – С. 162–164;
3. Отработка технологий иммобилизации натриевого теплоносителя на ИР БР-10 и возможности применения технологий безопасного обращения с натрием 1-го контура и его недренируемыми остатками в отдельном оборудовании БН-350 / **К. Г. Легких**, В. Б. Смыков // Сб. докладов отраслевой научно-технической конференции «Развитие технологии реакторов на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем (БН-2023)», г. Нижний Новгород, ОКБМ Африкантов, 2023 г. – С. 81–85;
4. Метод твердофазного окисления отработавшего ЩЖМТ. Соответствие критериям приемлемости для захоронения / В. Б. Смыков, **К. Г. Легких**, Е. М. Трифанова, О. В. Раскач // Сб. тезисов XVI Международной конференции «Безопасность АЭС и подготовка кадров», г. Обнинск, ИАТЭ, 2023. – С. 225–227;
5. Определение соответствия продукта твердофазного окисления отработавшего натриевого теплоносителя критериям приемлемости к длительному хранению / В. Б. Смыков, **К. Г. Легких**, Е. М. Трифанова, Е. А. Грушичева // Сб. тезисов научно-технической конференции «Теплофизические

- экспериментальные и расчетно-теоретические исследования в обоснование характеристик и безопасности ядерных реакторов (Теплофизика 2024)», г. Обнинск, АО «ГНЦ РФ – ФЭИ». – С. 51–52;
6. Оптимизация твердофазной технологии переработки РАО щелочных теплоносителей на полномасштабном образце установки МИНЕРАЛ-100/150» / В. Б. Смыков, В. В. Алексеев, **К. Г. Легких**, В. П. Жданов, Н. В. Коврежкин, И. В. Гуч, Э. М. Никитин, Д. А. Семенов, А. Н. Рыбин, С. Д. Семин, А. И. Ермаков // Сб. тезисов научно-технической конференции «Теплофизические экспериментальные и расчетно-теоретические исследования в обоснование характеристик и безопасности ядерных реакторов (Теплофизика 2024)», г. Обнинск, АО «ГНЦ РФ – ФЭИ». – С. 49–51;
  7. Расчетное моделирование устройства для утилизации натрия быстрых реакторов / К. В. Тыклеева, С. М. Уляхин, В. Н. Грабежной, С. В. Забродская, **К. Г. Легких**, В. Б. Смыков // Сб. тезисов научно-технической конференции «Нейтронно-физические проблемы атомной энергетики (Нейтроника-2024)», г. Обнинск, АО «ГНЦ РФ – ФЭИ», 2024 г. – С. 46–47.

*Публикации в научных журналах:*

8. Газофазное окисление как метод нейтрализации недренируемых остатков ЩЖМТ в оборудовании / В. Б. Смыков, **К. Г. Легких** // ВАНТ. Серия: Ядерно-реакторные константы. – 2022. – Вып. 4. – С. 145–148 (авторство не разделено);
9. Переработка теплоносителя первого и второго контуров при выводе из эксплуатации реактора БН-350 / В. Б. Смыков, А. В. Журин, **К. Г. Легких**, В. В. Алексеев, В. П. Жданов // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2023. – № 3. – С. 164–167 (авторство не разделено);
10. Особенности переработки сплава «натрий-калий», загрязненного ртутью / М. Х. Кононюк, **К. Г. Легких**, В. Б. Смыков // ВАНТ. Серия: Ядерно-реакторные константы. – 2023. – Вып. 2 – С. 231–237 (авторство не разделено);
11. Инновационные технологии иммобилизации натриевого теплоносителя первых контуров реакторов на быстрых нейтронах и переработки ЖРО, образующихся в процессе их эксплуатации / **К. Г. Легких**, В. Б. Смыков // Атомная Энергия. – 2024. – Т. 137. – Вып. 1–2. – С. 114–120 (авторство не разделено);
12. Определение соответствия продукта твердофазного окисления отработавшего натриевого теплоносителя критериям приемлемости к длительному хранению / В. Б. Смыков, **К. Г. Легких**, Е. М. Трифанова,

Е. А. Грушичева // ВАНТ. Серия: Ядерно-реакторные константы. – 2025. – Вып. 1. – С. 225–231 (авторство не разделено);

13. Оптимизация твердофазной технологии переработки РАО щелочных теплоносителей на полномасштабном образце установки МИНЕРАЛ-100/150» / В. Б. Смыков, В. В. Алексеев, **К. Г. Легких**, В. П. Жданов и др. // ВАНТ. Серия: Ядерно-реакторные константы. – 2025. – Вып. 2. – С. 235–243 (авторство не разделено).

*Публикации в журналах, не реферируемых ВАК:*

14. Innovative technologies for immobilizing the sodium primary coolant of fast neutron reactors and processing liquid radioactive waste generated during reactor operation / V. B. Smykov, **K. G. Legkikh** // Springer. Journal ID: 10512 Article ID: 1186·Dispatch Date: 05.02.2025·Proof No: 1, pp. 1–7.

*Патент на изобретение:*

15. В. Б. Смыков, А. А. Пронин, **К. Г. Легких**. Способ перевода оборудования с недренируемыми остатками щелочного металла во взрывопожаробезопасное состояние и устройство его осуществления. Патент РФ на изобретение № 2794139, МПК G21G 4/04, 2023 г.

Подписано к печати 22.05.2025 г. Заказ № 123.  
Формат 60×84 <sup>1</sup>/<sub>16</sub>. Усл. п. л. 0,8. Уч.-изд. л. 1,1. Тираж 80 экз.

---

Отпечатано с оригинала автора в АО «ГНЦ РФ – ФЭИ».  
249033, Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, 1.