

РАДИАЦИОННАЯ И ХИМИЧЕСКАЯ УСТОЙЧИВОСТЬ МАГНИЙФОСФАТНОЙ МАТРИЦЫ ДЛЯ ИММОБИЛИЗАЦИИ ^{14}C

© 2020 г. А. А. Лизин^{a,*}, Д. М. Яндаев^a, А. Ю. Шадрин^{b,**}, М. Ю. Калёнова^{a,***},
А. В. Дмитриева^a, С. В. Томилина^a, И. С. Голубенко^a, М. И. Хамдеев^a, В. Н. Момотов^a,
Д. Е. Тихонова^a, О. С. Дмитриева^a, А. А. Колобова^a, С. С. Погляд^a, М. В. Додонова^a,
С. Е. Винокуров^{2,***}, Б. Ф. Мясоедов²

^a Научно-исследовательский институт атомных реакторов, 433510, Димитровград Ульяновской обл.,
Западное шоссе, д. 9

^b Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов
им. акад. А. А. Бочвара, 123098, Москва, ул. Рогова, д. 5а

² Ведущий научно-исследовательский институт химической технологии, 115409, Москва, Каширское шоссе, д. 33

² Институт геохимии и аналитической химии им. В. И. Вернадского РАН, 119991, Москва, ул. Косыгина, д. 19

*e-mail: lizin@niiar.ru

**e-mail: ashadrin9@yandex.ru

*** e-mail: vgot@vniith.ru

**** e-mail: vinokurov@geokhi.ru

Получена 14.01.2019, после доработки 22.01.2019, принята к публикации 29.01.2019

Представлены результаты изготовления, изучения радиационной и гидролитической устойчивости магний-калийфосфатной (МКФ) матрицы, которая разрабатывается для целей иммобилизации ^{14}C – продукта переработки смешанного нитридного уран-плутониевого топлива. Образцы МКФ матрицы, содержащие в своем составе 20 и 40 мас% карбоната кальция как формы отходов, фиксирующей ^{14}C , были подвергнуты облучению ускоренными электронами с энергией до 2.5 МэВ до доз 10^6 , 10^7 и 10^8 Гр. Установлено, что деструкция целевых фаз начинается при дозе 10^7 Гр вплоть до полного их разложения после накопления дозы 10^8 Гр. Не установлено значительного увеличения значений скоростей выщелачивания для всех исследуемых катионов из радиационно-поврежденных образцов после накопления дозы 10^8 Гр, оценена продолжительность геологического хранения матрицы до полного разложения основных фиксирующих ^{14}C фаз.

Ключевые слова: магнийфосфатная матрица, иммобилизация ^{14}C , радиационная устойчивость, химическая устойчивость

DOI: 10.31857/S0033831120010116

ВВЕДЕНИЕ

В рамках реализуемого Госкорпорацией «Росатом» проекта «Прорыв» и создания опытно-демонстрационного реактора БРЕСТ-ОД-300 с пристанционной переработкой СНУП ядерного топлива разрабатываются процессы и аппараты для обращения с радиоактивными отходами (РАО) [1]. Все РАО с целью их длительного долговременного хранения необходимо переводить в твёрдые,

устойчивые, труднорастворимые материалы с высокими показателями качества, прежде всего по радиационной и гидролитической стойкости [2].

Существенным отличием ядерного топливного цикла (ЯТЦ) и схем переработки отработавшего СНУП ядерного топлива (СНУП ОЯТ) является накопление изотопа ^{14}C в результате захвата нейтронов в ядерном реакторе: $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$. При переработке СНУП ОЯТ практически весь ^{14}C выделяется в газовую фазу на предварительной

Таблица 1. Химический состав полученных образцов МКФ матрицы, содержащих CaCO_3

Содержание CaCO_3 в образцах, мас%	Массовая доля элементов в образцах, %							
	O	H	P	Mg	K	Ca	C	B
20	57.07	3.49	8.88	6.98	11.17	9.38	2.79	0.23
40	55.22	2.79	7.08	5.58	8.97	15.45	4.68	0.23

стадии окисления (волоксидации) топлива и отделения его от оболочек твэлов. Образующийся углекислый газ, содержащий ^{14}C , направляют в абсорбционную колонну, которая орошается водным раствором гидроксида натрия в циркуляционном режиме [3]. Для регенерации раствора гидроксида натрия используют гидроксид кальция, который концентрирует ^{14}C и является отходной формой.

Карбонат кальция является термически неустойчивой формой и при температурах выше 900°C разлагается. В связи с этим для иммобилизации ^{14}C может быть использованы только матрицы, получение которых исключает технологические операции термообработки при высоких температурах. К таким материалам можно отнести, прежде всего, МКФ матрицу состава $\text{MgKPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ [4–7] – синтетический аналог природного минерала К-струвит [8]. Ранее в работе [9] было показано, что МКФ матрица позволяет надежно иммобилизовать карбонат кальция в количестве до 50 мас%.

Цель настоящей работы заключалась в изучении радиационной и гидролитической устойчивости образцов МКФ матрицы, содержащих CaCO_3 , и оценке влияния внешнего облучения ускоренными электронами на характеристики матрицы.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Образцы МКФ матрицы синтезировали по методике, описанной в работе [4]. Для изготовления образцов матрицы в водный раствор добавляли KH_2PO_4 , перемешивали в течение 10–15 мин, затем вносили H_3BO_3 , перемешивали, далее при перемешивании добавляли MgO , смесь гомогенизировали в течение 5 мин, но не до схватывания. Заключительной стадией было добавление карбоната кальция. После внесения CaCO_3 визуально наблюдалось незначительное выделение CO_2 (как ранее показано в работе [9] – не более 3%), а время

затвердевания полученной смеси составило 15–20 мин после внесения оксида магния. Образцы выдерживали во фторопластовых формах в течение 15 сут для набора прочности. Полученные компаунды имели форму плоского прямоугольного параллелепипеда с боковым ребром 3 мм и сторонами основания около 20 мм. Всего было изготовлено по 12 образцов двух составов: с 20 и 40 мас% карбоната кальция (химический состав образцов приведен в табл. 1). При этом по три образца каждого состава использовались для накопления одинаковой поглощенной дозы (10^6 , 10^7 и 10^8 Гр), а также в качестве необлученных образов сравнения.

Облучение образцов проводили на импульсном линейном ускорителе электронов ИЛУ-6 с энергией до 2.5 МэВ. Время экспозиции для достижения заданных доз определяли по калибровке пленочных дозиметров СО ПД(Ф)Р-5/50 (ГСО 7865-2000), расположенных на различном расстоянии от центра пучка. Мощность поглощенной дозы составляла $(1.1\text{--}2.5) \times 10^3$ Гр/с в зависимости от расположения образца на ускорителе от центра пучка электронов. Величину поглощённой дозы рассчитывали из спектров поглощения при длине волны 513 нм облученной пленки дозиметра, полученных с использованием сканирующего спектрофотометра СФ-56. В качестве образца сравнения использовали необлученные образцы пленки.

Фазовый состав образцов МКФ матрицы изучали рентгеновским дифракционным методом (ДРОН-7). Для идентификации фазового состава использовали картотеки рентгеновских дифракционных данных JCPDS [10] и комплекс программ RENTGEN. Индицирование и расчет параметров целевой фазы образцов матрицы ($\text{MgKPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) проводили методом наименьших квадратов по программе CHEKCELL.

Гидролитическую устойчивость образцов (характеристики образцов приведены в табл. 2) определяли в соответствии с ГОСТ 52126-2003 [11]

Таблица 2. Характеристика образцов МКФ матрицы, использованных для определения гидролитической устойчивости

Содержание CaCO ₃ в образцах, мас%	Поглощенная доза, Гр	Площадь поверхности, см ²	Плотность образца, г/см ³	Масса образца, г
20	0 ^a	11.4	1.75	2.34
	10 ⁶	11.9	1.68	2.17
	10 ⁷	11.1	1.32	1.70
	10 ⁸	10.9	1.32	1.49
	40	0 ^a	10.3	1.67
	10 ⁶	10.2	1.67	1.78
	10 ⁷	10.2	1.56	1.60
	10 ⁸	10.5	1.49	1.40

^a Необлученные образцы сравнения.

при контакте с бидистиллированной водой при комнатной температуре (около 25°C). Образцы на платиновой проволоке помещали в центр фторопластовых стаканов, отбор проб проводили через 1, 3, 7, 10, 14, 21 и 28 сут. При этом полученный раствор после выщелачивания в полном объеме изымали для анализа после каждого периода выщелачивания и заливали новую порцию бидистиллированной воды.

Определение содержания калия, магния, кальция и фосфора (с пересчетом на PO₄³⁻-ион) в растворах проводили методом дуговой атомно-эмиссионной спектрометрии на установке, включающей спектрометры СТЭ-1 с фотодиодной линейкой МАЭС № М10052 и PGS-2 с фотодиодной линейкой МАЭС № М08077 с программным обеспечением «Атом-3.3» и генератором «Везувий-3». Для построения градуировочных графиков и определения концентрации элементов в пробах использовали образцы сравнения (ОС). Аликвоты проб и ОС объемом 0.05 см³ наносили на торец угольного электрода, высушивали под ИК лампой и анализировали атомно-эмиссионным методом в дуге переменного тока силой 12 А и времени экспозиции 20 с. Градуировочные зависимости строили в программе Атом 3.3 в логарифмических координатах.

Определение карбонат-ионов проводили методом титрования с использованием двух индикаторов – фенолфталеина и метилового оранжевого [12, 13]. При титровании смеси ионов OH⁻ и CO₃²⁻

исходили из того, что с фенолфталеином гидроксид-ион и карбонат-ион оттитровываются до H₂O и до гидрокарбонат-иона соответственно, а с метиловым оранжевым – до H₂O и до H₂CO₃ соответственно. Разница в объемах соляной кислоты при титровании с двумя индикаторами соответствует титрованию HCO₃⁻ до H₂CO₃. Поэтому сначала раствор титровали с фенолфталеином до бесцвечивания (V_1), а затем добавляли метиловый оранжевый и продолжали титровать до появления оранжевого цвета (V_2). Содержание карбонат-ионов рассчитывали в соответствии с формулой (1):

$$c(\text{CO}_3^{2-}) = \frac{c(\text{HCl}) \cdot 2V_2}{V_{\text{p-pa}}}, \quad (1)$$

где $c(\text{CO}_3^{2-})$ – концентрация карбонат иона, моль/л; $c(\text{HCl})$ – концентрация соляной кислоты, моль/л; $V_{\text{p-pa}}$ – объем аликвоты, взятой для титрования, мл.

Раствор 0.01 н. HCl для титрования готовили растворением стандарт-титра 0.1 н. HCl в 1000 мл дистиллированной воды с последующим 10-кратным разбавлением. Для титрования использовали бюретки объемом 25 мл второго класса точности, изготовленные по ГОСТ 29251-91. Конечную точку титрования определяли визуально. Для учета количества карбонат-ионов, накопившихся за счет поглощения CO₂ из воздуха за время проведения эксперимента, каждый раз титровали бидистиллированную воду, которая выдерживалась в том же помещении и в течение того же времени, что

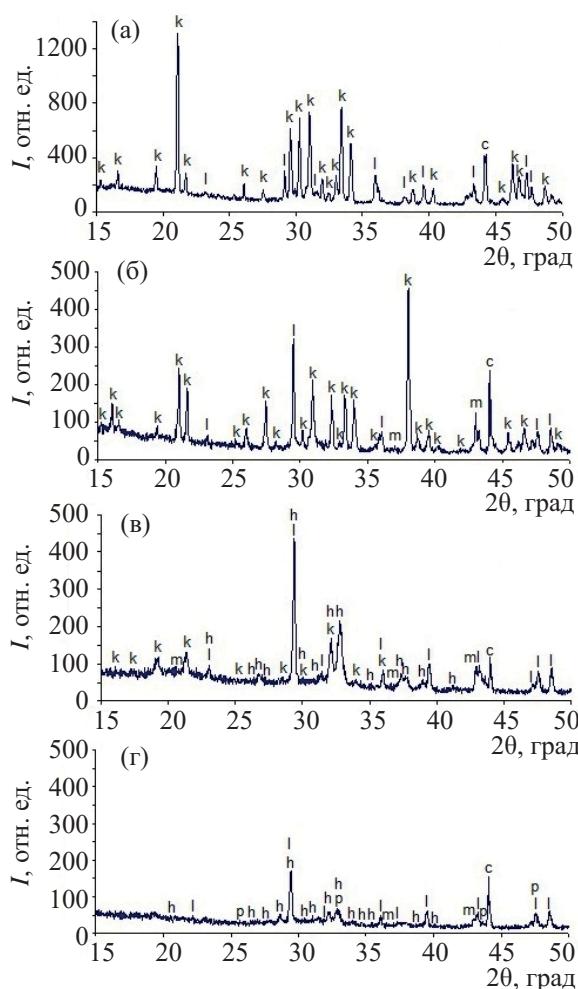


Рис. 1. Вид рентгенограмм необлученного (а) и облученных электронами до доз 10^6 (б), 10^7 (в) и 10^8 Гр (г) образцов МКФ, содержащей 20% CaCO_3 . Отнесение рефлексов к фазам: к – $\text{MgKPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, л – CaCO_3 , м – MgO , h – $\text{K}_6\text{P}_6\text{O}_{18} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, р – MgCO_3 , н – CaO , г – $\text{Mg}_2\text{P}_2\text{O}_7$, с – алмаз. То же на рис. 2.

и контактная вода с образцами МКФ матрицы. Концентрация карбонат-ионов в бидистилированной воде находилось на уровне 10% от их содержания в растворах после выщелачивания.

Дополнительно содержание карбонат-ионов в растворах после выщелачивания образцов магний-fosfatной матрицы определяли с использованием карбонатселективного электрода XC-CO₃-001.

Предварительно проводили калибровку ионоселективного электрода с использованием стандартных растворов гидрокарбоната натрия с концентрацией 10^{-6} – 10^{-2} моль/л. Исходный раствор

концентрации 0.01 моль/л готовили растворением навески кристаллического NaHCO_3 марки х.ч. в 100 мл дистиллированной воды, остальные растворы – последовательным десятикратным разбавлением исходного раствора дистиллированной водой. В качестве электрода сравнения использовали хлорсеребряный электрод ЭСР10101.

В приготовленных стандартных растворах определяли потенциал карбонат-селективного электрода. По полученным данным строили график зависимости потенциала электрода от отрицательного логарифма концентрации карбонат-ионов в растворе.

Затем измеряли потенциал электрода в анализируемых пробах. Сравнивая полученное значение потенциала с калибровочным графиком, определяли концентрацию карбонат-ионов в анализируемой пробе.

Погрешность в определении ионов K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , $c(\text{CO}_3^{2-})$, ионов бора и фосфора в исходной дистиллированной воде и в растворах после выщелачивания не превышала 20–25%.

Интегральную скорость выщелачивания компонентов рассчитывали по формуле (2)

$$R_i = \frac{m_i}{f_i \cdot S \cdot t_n}, \quad (2)$$

где R_i – скорость выщелачивания, $\text{г}/(\text{см}^2 \cdot \text{сут})$; m_i – масса i -го элемента в растворе после выщелачивания, г ; f_i – массовая доля элемента в образце; S – открытая «геометрическая» поверхность образца, см^2 ; t_n – продолжительность n -го периода выщелачивания, сут.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Рентгendifракционные картины изученных образцов МКФ матрицы, содержащих 20 и 40 мас% CaCO_3 , приведены на рис. 1 и 2 соответственно. Показано, что образцы состоят из двух основных фаз – тригонального CaCO_3 и орторомбического $\text{MgKPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$.

Фазовый состав матриц после облучения до дозы 10^6 Гр отличается присутствием дополнительной фазы MgO (которая также присутствует в виде продукта деструкции при увеличении поглощенной дозы) и снижением интенсивностей рефлексов

основных фаз. Фазовый состав образцов с 20 и 40 мас% CaCO_3 после их облучения до доз не более 10^7 Гр идентичен. После облучения материалов до доз выше 10^7 и 10^8 Гр наблюдается существенное изменение фазового состава. Так, при достижении дозы 10^7 Гр интенсивности рефлексов фазы $\text{MgKPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ существенно снижаются (до уровня минорной примесной фазы), и кроме фаз со структурами CaCO_3 и MgO присутствуют фазы $\text{K}_6\text{P}_6\text{O}_{18} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ и CaO .

При достижении дозы 10^8 Гр дифракционные рефлексы фазы $\text{MgKPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ не регистрируются для обоих составов. Образцы с 20% CaCO_3 образованы фазами орторомбического $\text{K}_6\text{P}_6\text{O}_{18} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, тригонального CaCO_3 , тригонального MgCO_3 минорной фазой MgO , и, возможно, кубической фазой K_2O . В то же время образцы с 40% CaCO_3 сложены из фаз тригонального CaCO_3 , кубического MgO , моноклинного пирофосфата магния $\text{Mg}_2\text{P}_2\text{O}_7$ и минорной фазы $\text{K}_6\text{P}_6\text{O}_{18} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$. Такое изменение фазового состава, вероятно, связано с полной радиационной деструкцией целевых фаз и их разложением на более простые и термодинамически более устойчивые кристаллические структуры за счет разрыва химических связей и кристаллизацией новых фаз под действием ускоренных электронов.

По результатам индицирования полученных рентгенограмм были рассчитаны параметры кристаллической решетки орторомбической фазы $\text{MgKPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (табл. 3). Изменение параметров кристаллической решетки и ее объема после облучения до доз не более 10^7 Гр незначительно. Отсутствие существенных изменений в значениях параметров элементарной ячейки целевой фазы $\text{MgKPO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, которая будет фиксировать изотоп ^{14}C , очевидно, связано с незначительной способностью ускоренных электронов с энергией до 2.5 МэВ к смещению ядер атомов в кристаллической решетке из своих позиций. Этот факт крайне важен при длительном хранении матрицы с включением долгоживущего изотопа ^{14}C (период полураспада 5730 лет), испытывающего β^- -превращение, так как материал матрицы при этом не будет подвержен существенному радиационному распуханию.

Разница в полученных результатах количественного анализа и значениях концентраций карбонат-

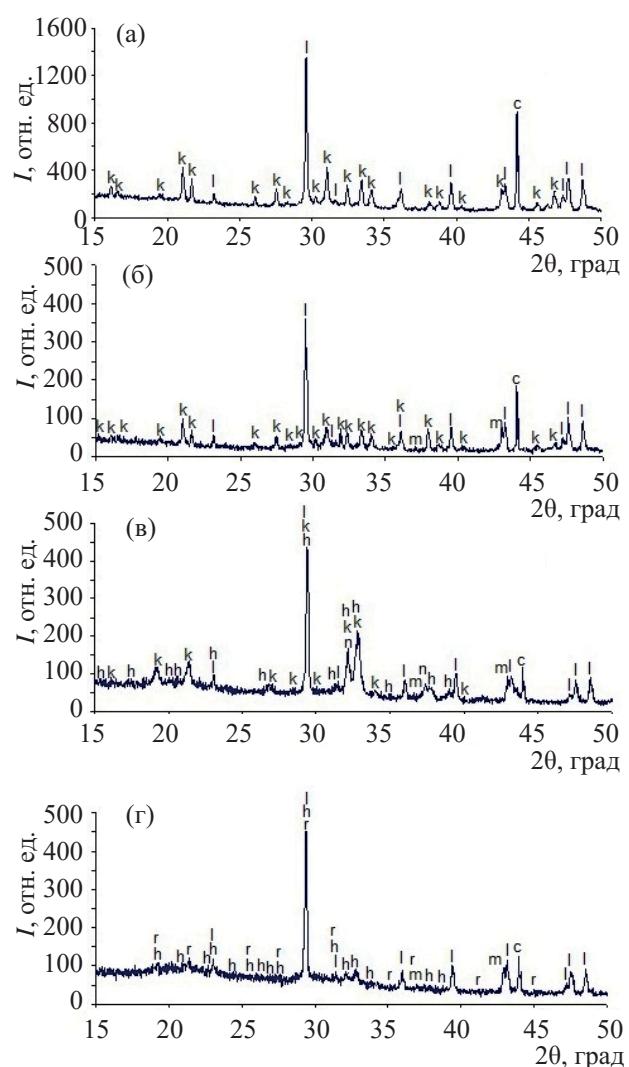


Рис. 2. Вид рентгенограмм необлученного (а) и облученных электронами до доз 10^6 (б), 10^7 (в) и 10^8 Гр (г) образцов МКФ, содержащей 40% CaCO_3 .

ионов в растворах после выщелачивания (для двух независимых методов – титриметрического и потенциометрического) не превышала 5% для одних и тех же проб.

Данные о скоростях выщелачивания компонентов как облученных, так и необлученных образцов МКФ матрицы, содержащих 20 и 40 мас% CaCO_3 , приведены в табл. 4 и 5 соответственно. Из сравнения этих данных видно, что скорость выщелачивания компонентов существенно не зависит ни от наполнения по CaCO_3 , ни от поглощенной дозы.

Таблица 3. Параметры орторомбической фазы $MgKPO_4 \cdot 6H_2O$ необлученных и облученных образцов МФМ

Содержание $CaCO_3$ в образцах, мас%	Поглощенная доза, Гр	Параметры кристаллической решетки			
		$a, \text{\AA}$	$b, \text{\AA}$	$c, \text{\AA}$	$V, \text{\AA}^3$
20	0	6.874 ± 0.015	6.149 ± 0.006	11.060 ± 0.020	467.5 ± 1.5
	10^6	6.873 ± 0.012	6.170 ± 0.010	11.060 ± 0.020	470.8 ± 1.5
	10^7	6.875 ± 0.022	6.140 ± 0.010	11.166 ± 0.028	471.6 ± 2.4
40	0	6.870 ± 0.010	6.143 ± 0.008	11.064 ± 0.018	467.6 ± 1.7
	10^6	6.898 ± 0.014	6.158 ± 0.008	11.063 ± 0.019	469.9 ± 1.6
	10^7	6.840 ± 0.026	6.180 ± 0.020	11.164 ± 0.030	472.0 ± 3.0

Таблица 4. Скорость выщелачивания образцов МКФ матрицы, содержащих 20 мас% $CaCO_3$, облученных ускоренными электронами

Поглощенная доза, Гр	Период, сут	Скорость выщелачивания компонентов, г/(см ² ·сут)				
		K	Mg	Ca	PO_4^{3-}	CO_3^{2-}
10^8	1	3.5×10^{-2}	2.2×10^{-3}	1.4×10^{-4}	5.2×10^{-3}	5.0×10^{-2}
	3	1.7×10^{-2}	1.2×10^{-3}	1.0×10^{-4}	2.5×10^{-3}	2.4×10^{-2}
	7	8.8×10^{-3}	7.5×10^{-4}	4.4×10^{-5}	1.4×10^{-3}	1.2×10^{-2}
	10	6.5×10^{-3}	6.5×10^{-4}	3.0×10^{-5}	1.0×10^{-3}	9.0×10^{-3}
	14	4.7×10^{-3}	5.6×10^{-4}	2.2×10^{-5}	7.8×10^{-4}	7.2×10^{-3}
	21	3.3×10^{-3}	4.8×10^{-4}	2.0×10^{-5}	5.8×10^{-4}	5.0×10^{-3}
	28	2.5×10^{-3}	4.6×10^{-4}	1.9×10^{-5}	4.8×10^{-4}	4.0×10^{-3}
	1	3.4×10^{-2}	2.7×10^{-3}	1.0×10^{-4}	4.2×10^{-3}	5.0×10^{-2}
	3	1.7×10^{-2}	1.3×10^{-3}	7.0×10^{-5}	2.0×10^{-3}	2.2×10^{-2}
	7	9.5×10^{-3}	7.3×10^{-4}	4.5×10^{-5}	1.1×10^{-3}	1.2×10^{-2}

С течением времени скорость выщелачивания компонентов закономерно уменьшается. Это объясняется основной кинетической стадией коррозии матрицы – начальной скоростью выщелачивания. Относительно высокие скорости выщелачивания объясняются механизмом ионного обмена и диффузией контактного раствора за

счет компенсации заряда поверхности матрицы молекулами воды, и, как следствие, гидролизом компонентов матрицы. В целом можно отметить, что скорости выщелачивания находятся на допустимом уровне и несколько превышают его для отдельных компонентов МФМ. Значения скоростей выщелачивания в соответствии с

Таблица 5. Скорость выщелачивания образцов МКФ матрицы, содержащих 40 мас% CaCO₃, облученных ускоренными электронами

Поглощенная доза, Гр	Период, сут	Скорость выщелачивания компонентов, г/(см ² ·сут)				
		K	Mg	Ca	PO ₄ ³⁻	CO ₃ ²⁻
0	1	4.7×10 ⁻²	3.0×10 ⁻³	9.7×10 ⁻⁵	2.0×10 ⁻²	3.5×10 ⁻²
	3	2.2×10 ⁻²	1.7×10 ⁻³	6.0×10 ⁻⁵	9.2×10 ⁻³	1.5×10 ⁻²
	7	1.1×10 ⁻²	8.8×10 ⁻⁴	2.6×10 ⁻⁵	4.7×10 ⁻³	8.0×10 ⁻³
	10	8.2×10 ⁻³	7.6×10 ⁻⁴	1.8×10 ⁻⁵	3.4×10 ⁻³	6.0×10 ⁻³
	14	6.0×10 ⁻³	6.6×10 ⁻⁴	1.3×10 ⁻⁵	2.5×10 ⁻³	4.7×10 ⁻³
	21	4.2×10 ⁻³	6.2×10 ⁻⁴	1.3×10 ⁻⁵	1.8×10 ⁻³	3.3×10 ⁻³
	28	3.3×10 ⁻³	5.7×10 ⁻⁴	1.0×10 ⁻⁵	1.4×10 ⁻³	2.8×10 ⁻³
	10 ⁸	4.0×10 ⁻²	3.0×10 ⁻³	6.5×10 ⁻⁵	4.6×10 ⁻³	4.0×10 ⁻²
10 ⁸	3	2.0×10 ⁻²	1.6×10 ⁻³	4.3×10 ⁻⁵	2.4×10 ⁻³	1.7×10 ⁻²
	7	1.1×10 ⁻²	1.0×10 ⁻³	2.8×10 ⁻⁵	1.3×10 ⁻³	9.8×10 ⁻³
	10	8.8×10 ⁻³	9.0×10 ⁻⁴	2.6×10 ⁻⁵	1.0×10 ⁻³	8.0×10 ⁻³
	14	6.3×10 ⁻³	8.1×10 ⁻⁴	2.3×10 ⁻⁵	8.1×10 ⁻⁴	6.7×10 ⁻³
	21	4.3×10 ⁻³	6.8×10 ⁻⁴	2.0×10 ⁻⁵	6.2×10 ⁻⁴	5.1×10 ⁻³
	28	3.3×10 ⁻³	5.9×10 ⁻⁴	1.9×10 ⁻⁵	5.0×10 ⁻⁴	4.3×10 ⁻³

действующими нормативами для цементных компаундов регламентируются только для радионуклидов ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr [14, 15] и не должны превышать значения 10⁻³ г/(см²·сут).

Результаты настоящих исследований позволяют оценить время хранения МФМ матрицы вплоть до ее полной деструкции. Так, например, возьмем для примера образец с загрузкой 20 мас% по CaCO₃. При переработке ОЯТ, по данным расчетов, на операциях волоксидации нитридного ОЯТ образуется 1.28 кг ¹⁴C в год с общей активностью 6.9·10¹⁴ Бк. После улавливания ¹⁴C и отверждения образуется около 682 кг CaCO₃ из абсорбционной колонны и, соответственно, МКФ матрица массой 3410 кг с содержанием CaCO₃ 20 мас%. Удельная активность матрицы составит 6.9×10¹⁴/3410 = 2.02×10¹¹ Бк/кг. При дозе 10⁸ Гр материал будет полностью подвергнут деструкции, т.е. получит энергию 10⁸ Дж на 1 кг. Так как для ¹⁴C $T_{1/2} = 5730$ лет, а энергия одного β -распада ¹⁴C составляет 156.47 кэВ, то по закону радиоактивного распада МФМ с содержанием CaCO₃ 20% накопит дозу 10⁸ Гр приблизительно за 2300 лет при условии

того, что вся энергия, выделившаяся при β -распаде ¹⁴C будет поглощена веществом. Для более точной оценки сроков хранения матриц с целью окончательного обоснования сроков и условий геологического хранения ¹⁴C, окончательного выбора МКФ матрицы для иммобилизации ¹⁴C в составе карбоната кальция и выбора оптимальной загрузки необходимо проведение ядерно-физических расчетов.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Шадрин А.Ю., Двоеглазов К.Н., Масленников А.Г., Кащеев В.А., Третьякова С.Г., Шмидт О.В., Виданов В.Л., Устинов О.А., Волк В.И., Веселов С.Н., Ишунин В.С. // Радиохимия. 2016. Т. 58, № 3. С. 234. (Shadrin A.Yu., Dvoeglazov K.N., Maslennikov A.G., Kashcheev V.A., Tret'yakova S.G., Shmidt O.V., Vidanov V.L., Ustinov O.A., Volk V.I., Veselov S.N., Ishunin V.S. // Radiochemistry. 2016. Vol. 58, N 3. P. 271. doi 10.1134/S1066362216030085)

2. Федеральный закон №190 ФЗ « Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации» // Рос. газета. Федеральный выпуск № 5529 от 15 июля 2011 г.
3. Якунин С.А., Устинов О.А., Шадрин А.Ю., Шудегова О.В. // Атом. энергия, 2016. Т. 120, №3. С. 176. (Yakunin S.A., Ustinov O.A., Shadrin A.Yu., Shudegova O.V. // At. Energy. 2016. Vol. 120, N 3. P. 229. doi 10.1007/s10512-016-0122-y)
4. Винокуров С.Е., Кулкова С.А., Крупская В.В., Мясоедов Б.Ф. // Радиохимия. 2018. Т. 60, № 1. С. 66. (Vinokurov S.E., Kulikova S.A., Krupskaya V.V., Myasoedov B.F. // Radiochemistry. 2018. Vol. 60, N 1. P. 70. doi 10.1134/S1066362218010125).
5. Vinokurov S.E., Kulikova S.A., Myasoedov B.F. // Materials. 2018. Vol. 11. P. 976. doi 10.3390/ma11060976.
6. Vinokurov S.E., Kulikova S.A., Krupskaya V.V. et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2018. Vol. 315, N 3. P. 481. doi 10.1007/s10967-018-5698-3.
7. Wagh A.S. Chemically Bonded Phosphate Ceramics: Twenty-First Century Materials with Diverse Applications. Amsterdam: Elsevier, 2016. 2nd ed. 422 p.
8. Graeser S., Postl W., Bojar H.-P. et al. // Eur. J. Mineral. 2008. Vol. 20, N 4. P. 629. doi 10.1127/0935-1221/2008/0020-1810.
9. Дмитриева А.В., Каленова М.Ю., Кулкова С.А. и др. // ЖПХ. 2018. Т. 91, № 4. С. 572. (Dmitrieva A.V., Kalenova M.Yu., Kulikova S.A. et al. // Russ. J. Appl. Chem. 2018. Vol. 91, N 4. P. 641. doi 10.1134/S107042721804016X).
10. Powder Diffraction File. International Center for Diffraction Data. Swarthmore, Pennsylvania (USA), 1999.
11. ГОСТ 52126-2003: Отходы радиоактивные. Определение химической устойчивости отверженных высокоактивных отходов методом длительного выщелачивания: Национальный стандарт Российской Федерации. М.: Изд-во стандартов, 2003.
12. Булатов А.В., Зеймаль А.Е. и др. Методические указания к практикуму «Химические методы анализа»: Учеб. пособие. СПб.: ВВМ, 2010. 54 с.
13. Крешков А.П. Основы аналитической химии. Т. 2: Теоретические основы. Количественный анализ. М.: Химия, 1971. 456 с.
14. НП-019-15: Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности».
15. ГОСТ Р 51883-2002: Отходы радиоактивные цементированные. Общие технические требования. М.: Изд-во стандартов, 2002. 3 с.