

ТРАНСМУТАЦИЯ МАЛЫХ АКТИНИДОВ В СПЕКТРЕ НЕЙТРОНОВ РЕАКТОРА НА ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНАХ

Ю.А. Казанский Ю.А., М.И. Романов*

Обнинский институт атомной энергетики ИАТЭ НИЯУ МИФИ. 249040, г. Обнинск, Студгородок, 1.

**Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ». 115409, г. Москва, Каширское шоссе, 31.*



Замыкание топливного цикла на основе природного урана предполагает извлечение урана и плутония из отработавшего топлива. Среди оставшихся тяжелых ядер главный вклад в радиоактивность вносят малые актиниды. Одна из идей сокращения радиоактивности переработанного топлива заключается в повторном длительном облучении малых актинидов (такой процесс принято называть трансмутацией). Есть работы, в которых утверждается необходимость трансмутации в спектрах жестких нейтронов и для этого планируется включать в топливный цикл специализированные реакторы-выжигатели и подкритические системы с ускорителями.

В данной работе рассмотрена целесообразность трансмутации малых актинидов в нейтронных спектрах реакторов на тепловых нейтронах. Использован основной фактор, влияющий на целесообразность трансмутации, отношение радиоактивностей с трансмутацией и без нее $s_K(t)$. Это отношение в функции времени может быть и больше, и меньше единицы, и ее значения вносят решающий вклад в оценку целесообразности. Проведены расчеты функций $s_K(t)$ для малых актинидов. Сделаны выводы (с точки зрения уменьшения радиоактивности): вряд ли стоит трансмутировать нептуний, поскольку десятикратное снижение радиоактивности будет через сотню тысяч лет; сравнительно малый эффект (снижение радиоактивности на порядок через пятьсот лет) наблюдается для кюрия; для америция радиоактивность уменьшается от десяти до ста раз через 300 лет после облучения. Показано также, что наилучшие значения $s_K(t)$ достигаются при выгорании малых актинидов до 70–80%.

Для заключения о целесообразности трансмутации америция и кюрия предлагается учесть в рассматриваемых сценариях различие в вероятностях выхода в окружающую среду, различие биологических эффективностей, а также эффективность трансмутации малых актинидов, непрерывно поступающих в хранилища отработавшего топлива при работающей ядерной энергетике.

Ключевые слова: малые актиниды, топливный цикл, трансмутация, отработавшее топливо.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Крупномасштабная ядерная энергетика с использованием природного урана возможна только при использовании реакторов на быстрых нейтронах и реали-

© Ю.А. Казанский Ю.А., М.И. Романов, 2014

зации замкнутого топливного цикла. Это было осознано достаточно давно [1], и в нашей стране в последнее десятилетие получило отражение в разработанной Федеральной целевой программе по развитию ядерной энергетики с учетом необходимости строительства реакторов на быстрых нейтронах и замыкания ядерного топливного цикла [2].

Отработавшее ядерное топливо имеет радиоактивность, которая на много порядков превышает радиоактивность свежего топлива. В первые сотни лет основной вклад в радиоактивность выгруженного топлива вносят осколки деления, а затем образующиеся в реакторе новые тяжелые нуклиды – изотопы плутония и изотопы так называемых малых актинидов (МА) – нептуния, америция и кюрия.

В случае замкнутого топливного цикла уран и плутоний возвращаются в топливный цикл, и малые актиниды со временем становятся основными источниками радиоактивности.

Изолированные от внешней среды источники радиоактивности не представляют опасности, но всегда существует конечная вероятность их выхода из под контроля. Таким образом, возникает риск ущерба, пропорциональный уровню радиоактивности и вероятности выхода источников радиоактивности в окружающую среду. Исследованиям рисков при хранении отработавшего ядерного топлива посвящено много работ [3].

Существует еще одна опасность – хищение МА для создания взрывных ядерных устройств, например, для самого распространенного изотопа нептуния критическая масса составляет около 60 кг. Если последнее будет преобладающим, то надо будет уничтожать (трансмутировать) нептуний, оставляя в стороне проблемы с его радиоактивностью.

Образующуюся в результате работы ядерных реакторов долгоживущую радиоактивность должно либо уничтожить, либо надежно захоронить. До сих пор единственный и основной способ охраны окружающей среды – это захоронение отработавшего ядерного топлива, общее представление о котором дает, например, монография [4].

Один из перспективных путей снижения радиоактивности в топливном цикле ядерной энергетики (и, следовательно, рисков) основывается на идее трансмутации. Суть трансмутации заключается в возможности превращения радиоактивных нуклидов в результате взаимодействия нейтронов с ядрами в короткоживущие или стабильные (также и в долгоживущие с периодами более миллионов лет) нуклиды. Трансмутация осколков деления оказалась в целом малоэффективной [5 – 7]. Но трансмутация тяжелых ядер в результате деления ядер нейтронами в быстрых энергетических реакторах дает многообещающие надежды, на основании которых построена заманчивая идеология достижения радиационной эквивалентности при обращении с радиоактивными отходами [8 – 10]. Масштабная трансмутация тяжелых ядер в осколки деления в настоящее время и в ближайшие десятилетия будет возможна только в реакторах на тепловых нейтронах, поэтому в данной работе рассмотрены результаты трансмутации малых актинидов в спектре реакторов на тепловых нейтронах.

Необходимость, возможность и целесообразность трансмутации – это сложная многофункциональная задача, в решении которой радиоактивность играет одну из главных ролей. Отметим также, что при расчетах ущерба надо будет принимать во внимание различие в вероятностях выхода радионуклидов в окружающую среду хранящихся на складах нуклидов с их вероятностью выхода в окружающую среду при химической переработке и нахождении в энергетическом реакторе. Последняя вероятность намного больше.

В результате трансмутации радиоактивность может значительно увеличиться, и для живущих поколений риск ущерба возрастет, но для будущих поколений риск ущерба будет меньше. Надо выбирать и искать аргументы для выбора допустимых временных интервалов и амплитуд роста радиоактивности. Поэтому при решении вопроса о целесообразности трансмутации тяжелых ядер необходимо установить временные сроки, для которых можно допустить увеличение рисков.

Одно из необходимых и достаточных требований для ускоренного уничтожения определенного радиоактивного нуклида (постоянная распада λ) в результате реакции поглощения нейтрона можно записать следующим образом:

$$\sigma_a \varphi / \lambda > 1, \quad (1)$$

где σ_a – среднее сечение поглощения нейтронов данным нуклидом в интегральной (по энергии) плотности потока нейтронов φ .

Если ставится задача снижения радиоактивности, то условие (1) является необходимым, но не достаточным. Эта проблема давно была осознана, и некоторые результаты расчетов были представлены в работах [4, 6]. Дело в том, что в результате трансмутации могут образовываться нуклиды с другими периодами полураспада. Поэтому в результате трансмутации возможно не только уменьшение радиоактивности, но и ее увеличение.

Если выжигать тяжелые нуклиды путем превращения их в осколки деления, то необходимое и достаточное условия можно записать в следующем виде:

$$\sigma_f \varphi / \lambda > 1 \quad \text{и} \quad f(t) < \lambda \exp(-\lambda t), \quad (2)$$

где $f(t)$ – зависимость радиоактивности осколков деления от времени, вид которой зависит от условий облучения топлива (время облучения, плотность потока нейтронов).

Записанное условие предполагает, что образец находится непрерывно в постоянном потоке нейтронов.

Рассмотрим идеальную схему уничтожения отдельных тяжелых нуклидов. Пусть есть нуклид, скорость исчезновения которого определяется постоянной распада λ , и в результате распада этого нуклида не образуются радиоактивные нуклиды. Рассмотрим два варианта: в одном – изучаемый нуклид с момента времени $t = 0$ находится в хранилище; в другом – такое же количество нуклидов превращено в осколки деления (такое предположение реализуется, если сечение деления исследуемого нуклида во много раз больше сечения радиационного поглощения). Радиоактивность осколков деления представим конкретной функцией $f(t)$, которая реализуется при работе реактора на тепловых нейтронах типа ВВЭР-1000 для трехлетнего нахождения топлива в реакторе. На рис. 1 показаны отношения радиоактивностей осколков деления к радиоактивности, обусловленной радиоактивным распадом выбранного нуклида. Это отношение ξ будем называть эффективностью трансмутации:

$$\xi(t) = 2f(t)/\exp(-\lambda t). \quad (3)$$

Отметим, что чем меньшее значение примет $\xi(t)$, тем более обоснованным станет процесс превращение ядер в осколки деления с позиции радиоактивности, т.е. тем лучший эффект трансмутации будет достигнут.

Предположение о появлении только стабильных ядер после радиоактивного распада приводит к уменьшению значений отношения $\xi(t)$. Предположение о рождении только осколков деления при облучении также уменьшает это отно-

шение. Другими словами, данные на рис. 1 дают предельно малые (наилучшие эффективности) значения отношений $\xi(t)$.

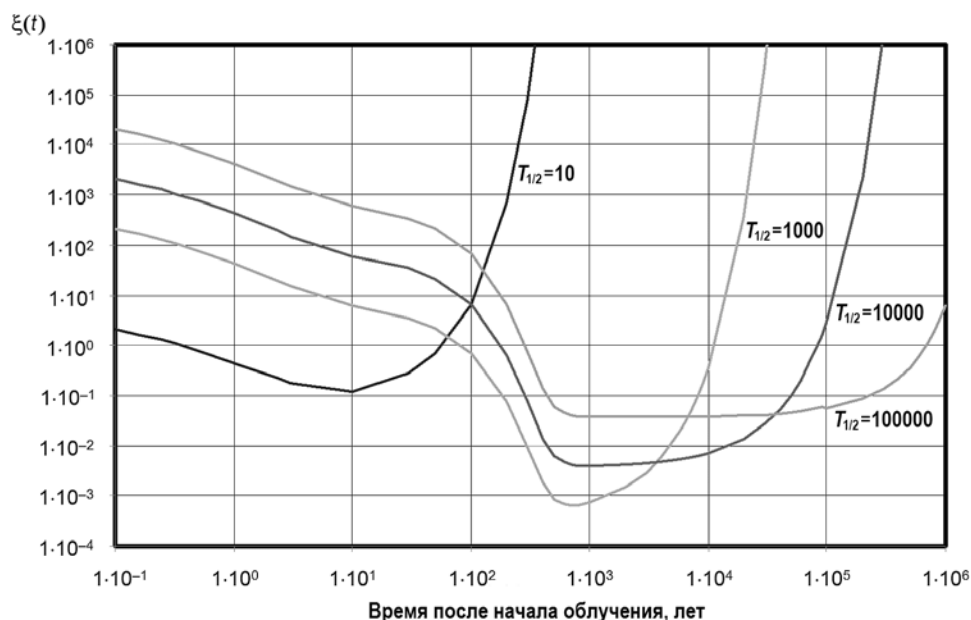


Рис. 1. Зависимость эффективности трансмутации $\xi(t)$ от времени для нуклидов с периодами полураспада 10, 100, 1000, 10000, 100000 лет: ось абсцисс – время после начала облучения; ось ординат – безразмерные значения $\xi(t)$

В зависимости от периодов полураспада тяжелых ядер эффективность трансмутации в функции времени после облучения в реакторе может быть как больше единицы (нет смысла в трансмутации), так и меньше единицы (трансмутация имеет смысл). Если для любых тяжелых нуклидов вначале радиоактивность осколков деления превышает радиоактивность тяжелого ядра ($\xi > 1$), то существенным является время T_ξ , когда значения ξ становятся менее единицы. Для идеального случая (рис. 1) значения T_ξ оказываются связанными с периодом полураспада тяжелого нуклида. Для периодов полураспада от тысячи до миллиона лет значения T_ξ вырастают от 100 до 500 лет.

При рассмотрении целесообразности трансмутации малых актинидов, вносящих основной вклад в радиоактивность отработавшего ядерного топлива (нептуний, америций, кюрий), условия оказываются более сложными в сравнении с приведенными графиками на рис. 1. Здесь требуется детальный количественный анализ с использованием численного моделирования.

ПРОГРАММНОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ И РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

Для расчетов использовалась программа ORIGEN2 [11], в которую потребовалось внести ряд изменений, учитывающих осколки деления всех нуклидов, а не избранных по умолчанию. В частности, список образующих продукты деления нуклидов был дополнен изотопами америция, кюрия и нептуния. Временные и абсолютные распределения радиоактивности осколков деления для этих нуклидов принимались такими же, как и для ^{235}U .

При исследовании трансмутации малых актинидов моделировался вариант ампульного эксперимента: ампулы с исходным материалом помещались в реактор со стабильными параметрами облучения. Рассчитывались зависимость от време-

ни радиоактивности при облучении элементов нептуния, америция и кюрия в спектре нейтронов теплового реактора (ВВЭР-1000) с плотностью потока нейтронов $3.65 \cdot 10^{14}$ н/см²с и изменение радиоактивности малого актинида во времени без облучения. Отношение этих зависимостей и есть искомый показатель трансмутации $\xi(t)$. Поскольку количественные составы изотопов в образцах с облучением и без облучения в начальный момент времени ($t=0$) были одинаковыми, то коэффициент трансмутации $\xi(0) = 1$.

Нептуний был представлен одним изотопом (^{237}Np), а изотопные составы америция и кюрия соответствовали изотопному составу этих элементов, выгружаемых из реактора ВВЭР-1000 с трехлетней кампанией.

Результаты расчетов функций $\xi(t)$ приведены на рис. 2 – 4. Так как начальные значения коэффициента трансмутации $\xi(0) = 1$, то за время порядка 0,1 года значения $\xi(t)$ быстро достигают насыщения и становятся слабо зависимыми от времени. Поэтому на рисунках временная шкала начинается со значений 0,1 года.

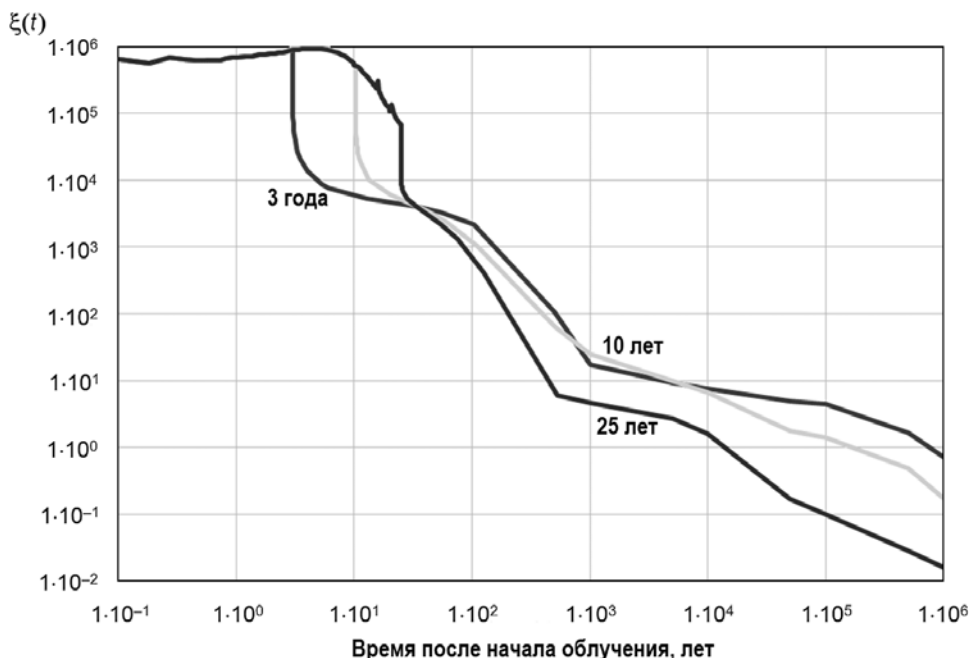


Рис. 2. Эффективность трансмутации $\xi(t)$ для нептуния при разных временах выдержки (3, 10, 25 лет) в тепловом спектре нейтронов

ВЫВОДЫ

Приведенные данные по нептунью (рис. 2) показывают, что трансмутация при условии выжигания нептуния порядка 95% (нахождение нептуния 25 лет в потоке нейтронов теплового реактора) позволяет получить выигрыш в радиоактивности через 20000 лет. Если ставится цель по снижению радиоактивности и, следовательно, риска на период менее 100000 лет, то возвращение нептуния для выжигания в тепловой реактор не имеет смысла.

Более перспективная ситуация для проведения трансмутации оказывается у америция. Здесь (рис. 3) выигрыш в радиоактивности наблюдается через 80–100 лет и достигает двух порядков. Более быстро выигрыш в активности достигается при трансмутации кюрия – от пяти до 30-ти лет (рис. 4). Однако выигрыш в снижении радиоактивности в лучшем случае достигает 10 раз ($\xi = 0,1$).

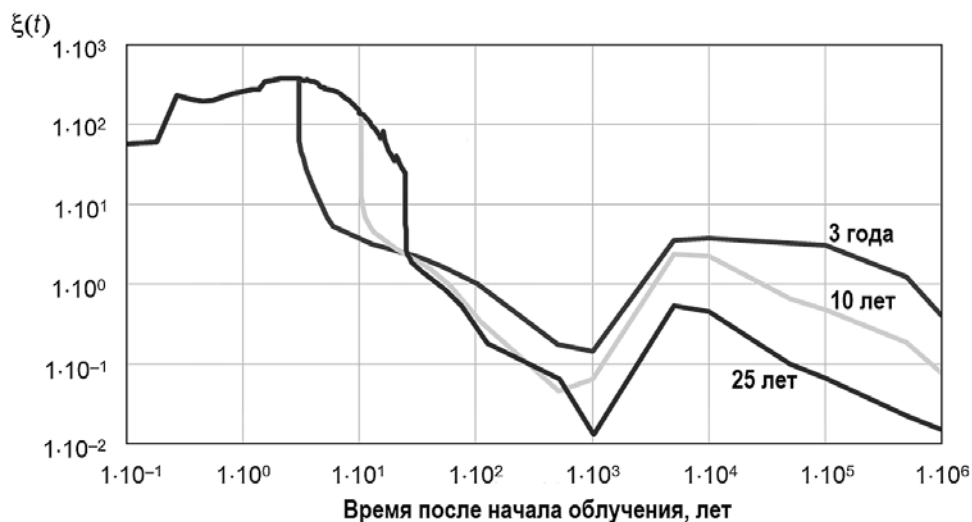


Рис. 3. Эффективность трансмутации $\xi(t)$ для америция при разных временах выдержки (3, 5, 10 лет) в тепловом спектре нейтронов.

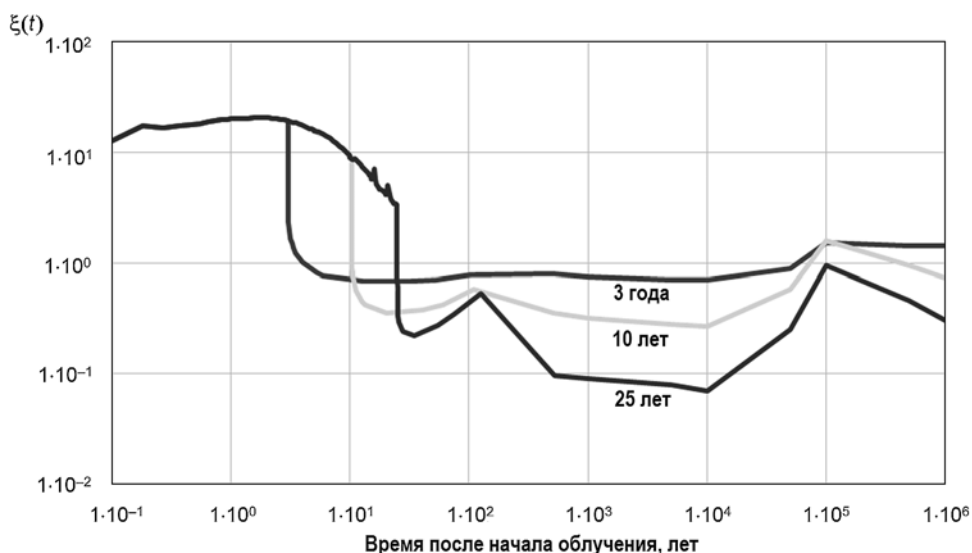


Рис. 4. Эффективность трансмутации $\xi(t)$ для кюрия при разных временах выдержки (3, 5, 10 лет) в тепловом спектре нейтронов.

Полученных результатов явно недостаточно, чтобы сделать однозначный вывод о необходимости или целесообразности трансмутации. Требуется принять во внимание очевидное обстоятельство – РАО оказываются опасными только при выходе в окружающую среду. Очевидно, что вероятность выхода РАО из под контроля будет достаточно большой при их нахождении в реакторе и при химической переработке. Учет этих обстоятельств может существенно повлиять на целесообразность трансмутации.

Авторы благодарны профессорам В.В. Артисюку и А.Н. Шмелеву за обсуждение проблемы и сделанные замечания.

Литература

1. *Лейпунский А.И., Орлов В.В., Лыткин В.Б., Троянов М.Ф., Юрова Л.Н.* Пути эффективного использования горючего в ядерной энергетике с быстрыми реакторами. // Атомная энергия. – 1971. – Т. 31. – Вып. 4. – С. 241.
2. Федеральная целевая программа «Ядерные энерготехнологии нового поколения на период 2010-2015 годов и на перспективу до 2020 года», утвержденная постановлением Правительства РФ 03 февраля 2010 г. №50.
3. *Pigford T.* Actinide Burning and Waste Disposal, *Proc. Int. Conf. Next Generation of Nuclear Power Technology*, Berkley, University of California, 5 October, UCB-NE-4176 (1990)
4. *Лебедев В.М.* Ядерный топливный цикл. Технологии, безопасность, экология. – М.: Энергоатомиздат. 2005.
5. *Казанский Ю.А., Дудкин А.Н., Клинов Д.А.* Трансмутация: мода или необходимость? // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 1993. – № 1. – С. 65-69.
6. *Slessarev I., Salvatores M.* The potential of nuclear transmutation: “neutron economics” of critical reactors and hybrids. International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems. September 11-14, 1995. Vol. 1, pp. 482-488.
7. *Казанский Ю.А., Клинов Д.А.* Эффективность трансмутации осколков деления. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2000. – №4. – С. 38-46.
8. *Ганев И.Х., Орлов В.В., Адамов Е.О.* Достижение радиационной эквивалентности при обращении с радиоактивными отходами ядерной энергетике. // Атомная энергия. – 1992. – Т. 73. – Вып.1. – С. 44-50.
9. *Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. Муратов В.Г., Орлов В.В.* Степень приближения к радиационной эквивалентности высокоактивных отходов и природного урана в топливном цикле ядерной энергетике России. // Атомная энергия. – 1996. – Т. 81. – Вып. 6. – С.403-409.
10. *Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. Муратов В.Г., Орлов В.В.* Трансмутационный топливный цикл в крупномасштабной ядерной энергетике России. – М.: ГУП НИКИЭТ, 1999.
11. *Groff A.G.* A user’s manual for the ORIGEN2 computer code. // Oak Ridge National Laboratory, 1980.

Поступила в редакцию 18.10.2013 г

Авторы

Казанский Юрий Алексеевич, профессор, доктор физ.-мат. наук

E-mail: kazansky@iate.obninsk.ru

Романов Михаил Игоревич, аспирант

UDC 621.039.54(04)

TRANSMUTING MINOR ACTINIDES WITH THERMAL REACTOR NEUTRONS

Kazansky Yu.A., Romanov M.I.*

Obninsk Institute for Nuclear Power Engineering, National Research Nuclear University «MEPhI». 1, Studgorodok, Obninsk, Kaluga reg., 249040 Russia

* National Research Nuclear University «MEPhI».

31, Kashirskoe highway, Moscow, 115409, Russia

ABSTRACT

The process of closing natural U based nuclear fuel cycle presupposes extracting U and Pu from spent fuel. Among the remaining heavy nuclei the major contribution of radioactivity is due to minor actinides. One of the ideas suggested to reduce the radioactivity of spent fuel is to reradiate minor actinides for a longer period of time, such process being referred to as transmutation.

Some authors claim the necessity of transmutation in the high energy neutron spectra. To accomplish this the purpose oriented burner-reactors and accelerator-based sub critical systems are to be incorporated into nuclear fuel cycle

The particular paper considers feasibility of transmuting minor actinides with thermal reactor neutrons. Basic factor of transmutation feasibility – ratio of radioactivity levels with and without transmutation $\xi(t)$ has been used. This ratio in function $\xi(t)$ can be either more or less 1, the values making major contribution into the feasibility assessment. Functions $\xi(t)$ for minor actinides have been calculated. The following conclusions have been made in terms of reducing radioactivity: (a) Ne is not a subject for transmuting; (b) a relatively small effect has been observed for Cm, its radioactivity reducing by an order in 500 years; (c) Am reduces its radioactivity from 10 to 100 times 300 years after being reradiated. The authors have shown that the best $\xi(t)$ values are reached when minor actinides burn-up is up to 70–80%.

In order to come to a conclusion on transmutation feasibility for Am and Cm the authors suggest that in the scenarios involved the following issues be taken into account – how risks of their release into the environment differ, how biological effectiveness differs as well as efficiency of transmuting minor actinides produced by operating nuclear power and continuously placed into spent fuel storage.

Key words: minor actinides, nuclear fuel cycle, transmutation, spent fuel.

REFERENCES

1. Leypunsky A.I., Orlov V.V., Lytkin V.B., Troyanov M.F., Yurova L.N. Puti effektivnogo ispol'zovaniya goryuchego v yadernoy energetike s bystryimi reaktorami [The effective use of fuel in nuclear power with fast reactors]. *Atomnaya energiya*. 1971, vol. 31, no. 4, p. 241.
2. Federal'naja celevaja programma «Yadernye energotekhnologii novogo pokoleniya na period 2010-2015 godov i na perspektivu do 2020 goda», utverzhennaya postanovleniem Pravitel'stva RF 03 fevralya 2010 g. №50. [Federal target program "Nuclear Power New Generation in 2010-2015 and until 2020] (in Russian).
3. Pigford T. Actinide Burning and Waste Disposal, Proc. Int. Conf. Next Generation of Nuclear Power Technology, Berkley, University of California, 5 October, UCB-NE-4176 (1990).
4. Lebedev V.M. *Yaderny toplivnyytsikl. Tekhnologii, bezopasnost', ekologiya* [Nuclear fuel cycle. Technology, safety, ecology]. Moscow, Energoatomizdat Publ. 2005. (in Russian)
5. Kazansky Yu.A., Dudkin A.N., Klinov D.A. Transmutaciya: moda ili neobhodimost'? [Transmutation: fashion or necessity ?] *Izvestiya vuzov. Yadernaya energetika*.

1993, no. 1, pp. 65–69.

6. Slessarev I., Salvatores M. The potential of nuclear transmutation: “neutron economics” of critical reactors and hybrids. International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems. September 11-14, 1995, vol. 1, pp. 482-488.

7. Kazansky Yu.A., Klinov D.A. Effektivnost' transmutacii oskolkov deleniya [Efficiency of Fission Products Transmutation]. *Izvestiya vuzov. Yadernaya energetika*. 2000, no. 4, pp. 38-46.

8. Ganev I.H., Orlov V.V., Adamov E.O. Dostizhenie radiacionnoy ekvivalentnosti pri obraschenii s radioaktivnymi othodami yadernoy energetiki [Achieving radiation equivalence for radioactive waste nuclear power]. *Atomnaya energiya*. 1992, vol. 73, no. 1, pp. 44-50.

9. Adamov E.O., Ganev I.H., Lopatkin A.V. Muratov V.G., Orlov V.V. Stepen' priblizheniya k radiacionnoy ekvivalentnosti vysokoaktivnyh othodov i prirodnogo urana v toplivnom cikle yadernoy energetiki Rossii [The degree of approximation to the radiation equivalence of high level waste and natural uranium fuel cycle nuclear energy in Russia]. *Atomnaya energiya*. 1996, vol. 81, no. 6, pp. 403-409.

10. Adamov E.O., Ganev I.H., Lopatkin A.V. Muratov V.G., Orlov V.V. Transmutacionny toplivny cikl v krupnomasshtabnoj yadernoj energetike Rossii. [Transmutation fuel cycle in a large-scale nuclear power in Russia]. Moscow, GUP NIKIYeT Publ., 1999. (in Russian)

11. A.G. Groff, A user's manual for the ORIGEN2 computer code. Oak Ridge National Laboratory, 1980.

Authors

Kazansky Yuriy Alekseevich, Professor, Dr. Sci (Phys.-Math.)

E-mail: kazansky@iate.obninsk.ru

Romanov Mihail Igorevich, Postgraduate Student