

## РЕЗУЛЬТАТЫ ТРАНСМУТАЦИИ ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ В СПЕКТРЕ НЕЙТРОНОВ ТЕПЛОВОГО И БЫСТРОГО РЕАКТОРОВ

**Н.В. Иванов, Ю.А. Казанский, Г.В. Карпович**

*Обнинский институт атомной энергетики НИЯУ МИФИ  
249040, Калужская обл., г. Обнинск, Студгородок, д.1.*



Радиоактивность выгруженного отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) из реактора в течение первых сотен лет определяется осколками деления (ОД), в дальнейшем основной вклад в активность ОЯТ формируются актиниды. Существующие сценарии обращения с ОЯТ основываются на трансмутации малых актинидов (МА) в осколки деления в быстрых реакторах. Рассмотрены сценарии трансмутации осколков деления в спектрах тепловых и быстрых нейтронов и радиационные характеристики в зависимости от времени. Нуклидный состав осколков деления взят из результатов моделирования выгорания сборки 439GT (тип ТВСА) для ВВЭР-1000 в течение трех лет на комплексе МСУ-5. Полученные данные использовались для определения исходного состава нуклидов при разных выдержках перед началом трансмутации (облучения в потоках нейтронов) для программы ORIGEN2.

Приведены три варианта облучения осколков деления: трансмутация без выдержки, выдержка осколков деления четыре года перед облучением, выдержка 30 лет перед облучением. Длительность облучения выбрана равной трем и 15-ти годам. Эффективность трансмутации определялась с помощью зависящего от времени «коэффициента трансмутации», равного отношению радиоактивности нуклидов в процессе трансмутации и после ее окончания к их радиоактивности без трансмутации.

Рассчитанные коэффициенты трансмутации оказались заметными только во время облучения в реакторе: их значения достигали 5 – 10 и зависели только от длительности выдержки осколков деления перед началом трансмутации. После извлечения осколков деления из нейтронного потока коэффициент трансмутации в течение нескольких лет снижался до единицы. Еще через сотню лет после облучения в спектре нейтронов теплового реактора коэффициент трансмутации снижается до 0.8 – 0.5 в зависимости от длительности процесса трансмутации. После облучения в спектре нейтронов быстрого реактора в интервале 200 – 1000 лет наблюдается небольшой рост коэффициента трансмутации до значений 1.2 – 1.8 и затем после тысячи лет снижение до значений 0.9 – 0.7.

Основной вывод – специальное выжигание осколков деления не имеет смысла, поскольку незначительный выигрыш в радиоактивности (чуть менее чем в два раза) наступает через тысячу лет.

Индифферентность осколков деления к трансмутации частично можно объяснить долей стабильных нуклидов, которая увеличивается по мере

длительности хранения осколков деления. После окончания цикла использования топлива в нем среди осколков деления есть примерно 15% стабильных нуклидов, а через тридцать лет выдержки количество стабильных изотопов достигает 85%.

**Ключевые слова:** осколки деления, трансмутация, коэффициент трансмутации, радиоактивность.

## ВВЕДЕНИЕ

Известно, что после выгрузки из реактора отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) его радиоактивность определяется, в основном, осколками деления, а после нескольких сотен лет хранения – актинидами (так называемыми малыми актинидами – нептунием, америцием, кюрием). Опасность ОЯТ обусловлена возможностью выхода из него радиоактивных продуктов в окружающую среду и уровнем их радиоактивности. Поэтому решение проблемы с ОЯТ и радиоактивными отходами (РАО) находится в снижении вероятности выхода радиоактивных продуктов в окружающую среду и радиоактивности.

Три десятилетия назад тема снижения радиоактивности тяжелых ядер и осколков деления путем трансмутации была очень популярной. Суть трансмутации заключается в облучении радиоактивных материалов в реакторах (специальных и (или) энергетических). В результате облучения тяжелые ядра превращаются в осколки деления, которые, поглощая нейтроны, могут стать стабильными либо короткоживущими. Трансмутация осколков деления нашла отражение во многих публикациях, обзорах, семинарах и конференциях. Малая их часть отражена в [1 – 8].

По трансмутации осколков деления были получены следующие основные (по мнению авторов статьи) результаты:

- трансмутация РАО может быть реализована, поскольку в цепной реакции деления имеется запас «лишних» нейтронов [2, 4 – 6];
- условиям трансмутации в современных условиях (скорость поглощения нейтронов при облучении должна заметно превосходить скорость радиоактивного распада) соответствуют всего лишь около десятка осколков деления [2, 3, 5, 7];
- для заключения о целесообразности трансмутации осколков деления необходимо учитывать вероятность выхода радиоактивных продуктов в окружающую среду, радиоактивность дочерних нуклидов [3, 8].

В более поздних публикациях следует отметить экспериментальное изучение выжигания двух долгоживущих нуклидов технеция и йода [9, 10].

В работе проведены расчеты коэффициентов трансмутации не для отдельных нуклидов, а для всех осколков деления (в том числе и для стабильных, поскольку маловероятно разделение радиоактивных и стабильных осколков деления). При этом полезно использовать предложенный в работе [8] коэффициент трансмутации  $\xi$ , который определен как отношение радиоактивности нуклидов (в процессе трансмутации и после ее окончания) к радиоактивности этих же нуклидов без трансмутации. Это отношение зависит от времени и может быть больше единицы (трансмутация вредна) и меньше единицы (трансмутация полезна). Зависимость коэффициента трансмутации в функции времени носит «биполярный» относительно единицы характер. Поэтому возникает проблема – можно ли в результате трансмутации «сегодня» допустить увеличение радиоактивности, чтобы «завтра» было ее снижение.

### ИСХОДНЫЕ ДАННЫЕ

Для трансмутации был выбран состав осколков деления в количестве 830-ти нуклидов, который получен в результате моделирования на комплексе MCU-PTR [11] выгорания в течение трех лет сборки 439GT (тип ТВСА) для ВВЭР-1000 [12]. В дальнейшем моделировалось облучение этого набора осколков деления в нейтронном потоке с использованием программы ORIGEN2 [13].

Программа ORIGEN2 имеет свою константную базу одногрупповых сечений для типовых спектров теплового и быстрого реакторов. Расчет производился на гомогенной модели с пространственно-однородным потоком нейтронов и без учета эффектов блокировки сечений. Поэтому расчеты коэффициентов трансмутации  $\xi_r$  носят приближенный характер.

Расчет проводился для двух спектров нейтронов – быстрого реактора ( $\Phi = 3.65 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ ) и теплового реактора ( $\Phi = 3.65 \cdot 10^{14} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ ).

### РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ КОЭФФИЦИЕНТОВ ТРАНСМУТАЦИИ

Моделирование облучения осколков деления выполнено для трех длительностей выдержки после выгрузки ОД из реактора: без выдержки ОД перед облучением; с выдержкой четыре года ОД перед облучением; с выдержкой перед облучением 30 лет. Для каждого из этих вариантов время непрерывного облучения в постоянной плотности потока нейтронов облучения составляло три года и 15 лет.

На рисунках 1 – 4 показаны зависимости от времени коэффициентов трансмутации  $\xi_r$  для теплового и быстрого спектров нейтронов. Для наглядности временные логарифмические шкалы смещены так, чтобы начало облучения начиналось при одинаковом времени при всех выдержках облучения, равном 0.04 года.

### ВЫВОДЫ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Рассчитанные коэффициенты трансмутации оказались заметными только во время нахождения осколков деления в реакторе: их значения достигают 5 – 10 и зависят только от длительности выдержки осколков деления перед началом трансмутации. Чем длительнее выдержка, тем больше значение коэффициента трансмутации. Это, скорее всего, коррелирует с долей стабильных осколков деления, которая при выдержке 30 лет составляет около 85%, а при нулевой длительности выдержки – всего лишь около 15%. После извлечения осколков деления из нейтронного потока коэффициент трансмутации в течение нескольких лет снижается до единицы. Еще через сотню лет после облучения в спектре нейтронов теплового реактора коэффициент трансмутации снижается до 0.5 – 0.8. При этом четко просматривается тенденция – чем длительнее облучение, тем больше выигрыш в результате трансмутации.

После облучения в спектре нейтронов быстрого реактора в интервале 100 – 800 лет наблюдается небольшой рост коэффициента трансмутации до значений 1.2 – 1.8 и затем после тысячи лет снижение до значений 0.9 – 0.7. Источником увеличения коэффициента трансмутации оказывается  $^{151}\text{Sm}$  с заметным вкладом в радиоактивность после 200 лет. Вблизи 500 лет содержание этого изотопа в ОД, облученных в быстром спектре, в 4.4 раза больше, чем у ОД, находящихся в хранилище без облучения, а вклад в общую активность ОД составляет 44,9%, тогда как среди необлученных ОД  $^{151}\text{Sm}$  дает только 14.6%. Данный эффект не наблюдается в случае облучения ОД в тепловом спектре из-за большого сечения радиационного захвата  $^{151}\text{Sm}$  ( $\sim 1.2 \cdot 10^4$  барн) в тепловой области энергий, что приводит к меньшему накоплению  $^{151}\text{Sm}$  в облучаемых в тепловом спектре ОД.

Подробное рассмотрение полученных результатов позволяет полагать, что специальное выжигание осколков деления не имеет смысла, поскольку незначительный выигрыш в радиоактивности не более чем в два раза наступает через тысячу лет. Кроме того, вероятность выхода из-под контроля при изготовлении и облучении осколков деления больше, чем при хранении этих же осколков деления в хранилищах.

Были сделаны оценки коэффициентов трансмутации для осколков деления после 30-летней выдержки при условии их отделения от стабильных осколков деления. В этом случае, как и следовало ожидать, после 1000 лет коэффициент трансмутации снизился до значений 0,2 (в результате трансмутации радиоактивность снизилась в пять раз).

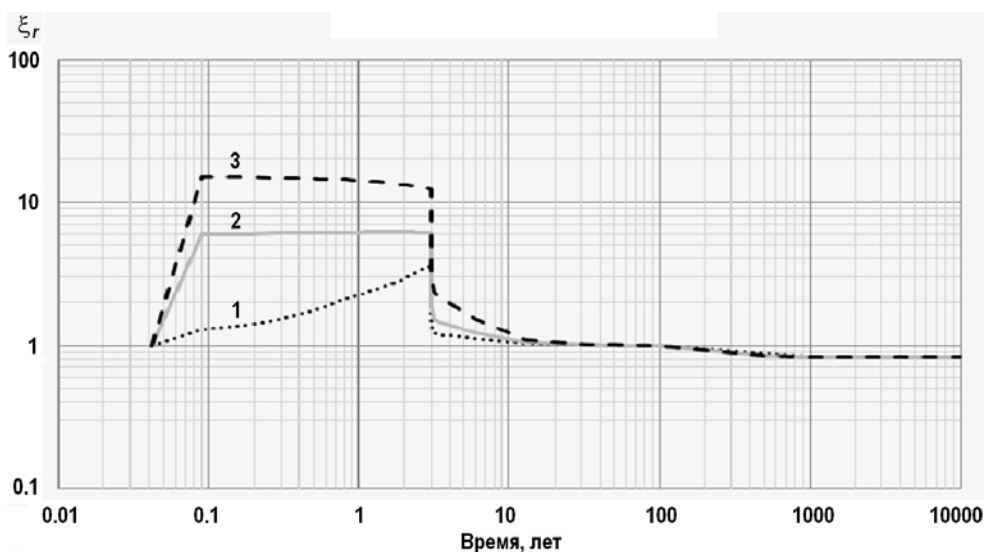


Рис. 1. Коэффициент трансмутации для осколков деления после выгрузки их из реактора: 1 – без выдержки перед облучением; 2 – с выдержкой четыре года; 3 – с выдержкой 30 лет (облучение в течение трех лет в тепловом спектре нейтронов)

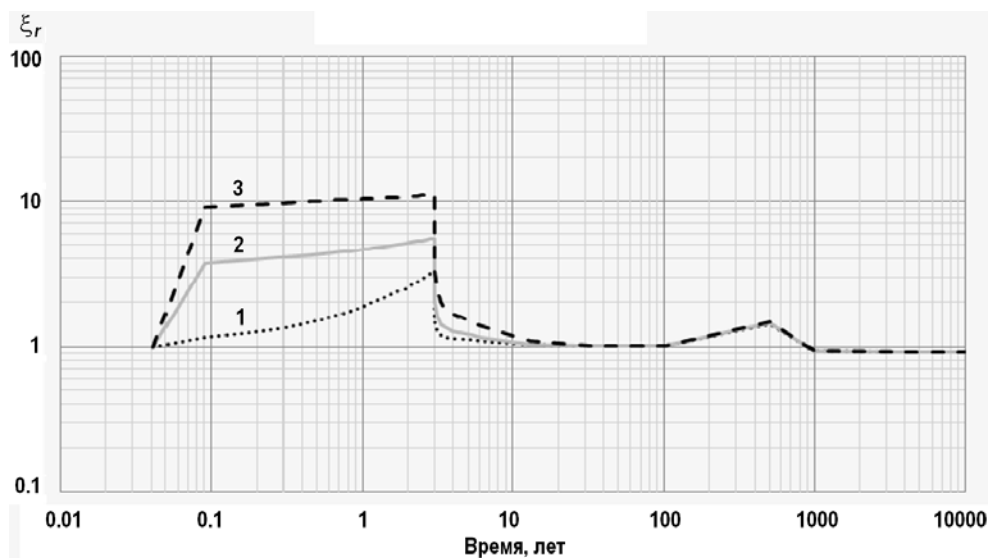


Рис. 2. Коэффициент трансмутации для осколков деления после выгрузки их из реактора: 1 – без выдержки перед облучением; 2 – с выдержкой четыре года; 3 – с выдержкой 30 лет (облучение в течение трех лет в быстром спектре нейтронов)

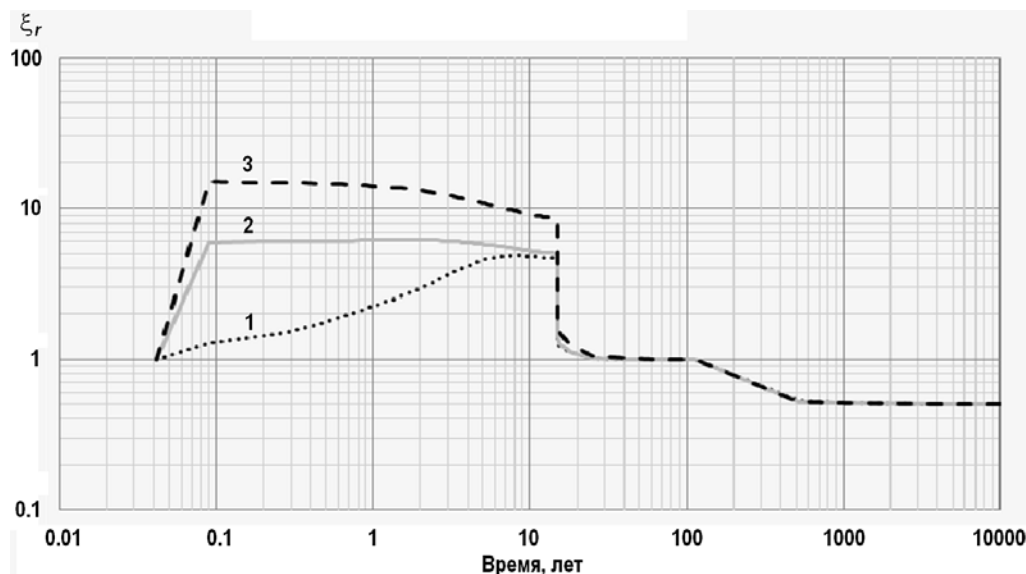


Рис. 3. Коэффициент трансмутации для осколков деления после выгрузки их из реактора: 1 – без выдержки перед облучением; 2 – с выдержкой четыре года; 3 – с выдержкой 30 лет (облучение в течение 15-ти лет в тепловом спектре нейтронов)

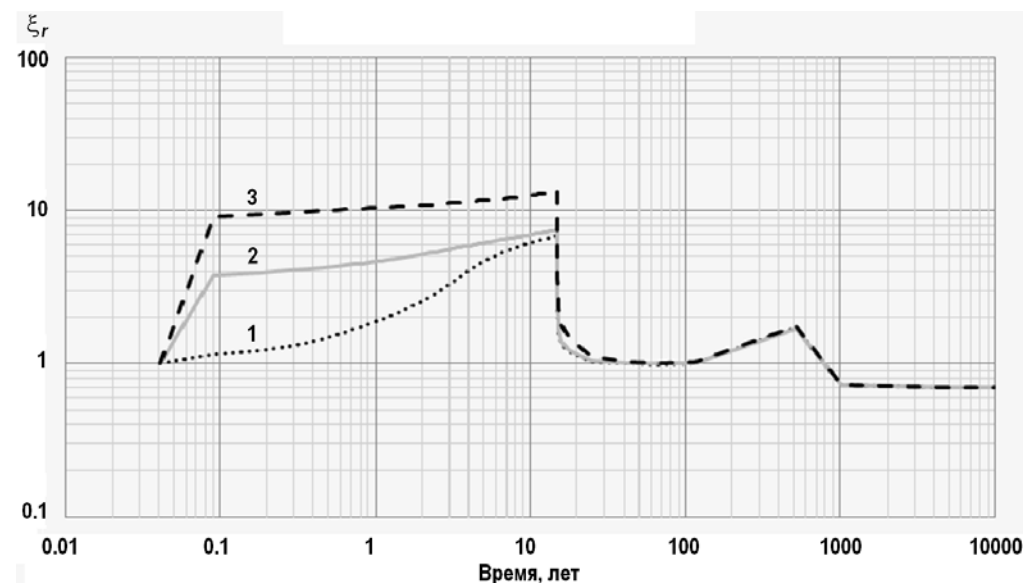


Рис. 4. Коэффициент трансмутации для осколков деления после выгрузки их из реактора: 1 – без выдержки перед облучением; 2 – с выдержкой четыре года; 3 – с выдержкой 30 лет (облучение в течение 15-ти лет в быстром спектре нейтронов)

### Литература

1. Mukaiyama T., Gurji Y. Characteristics of minor actinides transmutation in minor actinide burner reactors and power reactor. First OECD/NEA Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation. – Mito City (Japan); November 6 – 8, 1990. – PP. 326-346.
2. Salvatores M. The physics of transmutation for radioactive waste minimisation. The Frederic Joliot summer school in reactor physics. Cadarache, France, August 1998.
3. Казанский Ю.А., Дудкин А.И., Клинов Д.А. Трансмутация: мода или необходимость? // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 1993. – №1. – С. 65-69.

4. *Гай Е.В., Игнатюк А.В., Работнов Н.С., Шубин Ю.Н.* Концепция обращения с долгоживущими ядерными отходами. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 1994. – № 1. – С. 17-21.
5. *Шмелев А.Н., Ансе В.А., Куликов Г.Г., Морин Д.В., Новиков А.Е.* О трансмутации долгоживущих продуктов деления в ядерных установках. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 1994. – № 1. – С. 30-37.
6. *Slessarev I., Salvatores M.* The potential of nuclear transmutation: «neutron economics» of critical reactors and hybrids. Proc. of the International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems. – Versailles (France); September 11-14. – 1995. – Vol. 1. – PP. 482-488.
7. *Krivitski I.Yu.* Actinide and Fission Product Burning in Fast Reactors with a Moderator. Proc. of the Int. Conf. On Future Nucl. Syst. GLOBAL-99. – USA, Jackson Hole, Wyoming. Aug 29 – Sep 3 1999.
8. *Казанский Ю.А., Клинов Д.А.* Эффективность трансмутации осколков деления // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2000. – № 4. – С. 38-46.
9. *Yang W.S., Kim Y., Hill R.N., Taiwo T.A. and Khalil H.S.* Long-Lived Fission Product Transmutation Studies. // Nuclear Science and Engineering. – 2004. – Vol. 146. – PP. 291-318.
10. *Kun Liu, Hongchun Wu, Liangzhi Cao, Youqi Zheng.* Studies on LLFP transmutation in a pressurized water reactor. // Journal of Nuclear Science and Technology. – 2013. – Vol. 50. – No. 6. – PP. 581-598.
11. *Гуревич М.И., Шкаровский Д.А.* Расчет переноса нейтронов методом Монте-Карло по программе MCU. / Учеб. пособие. – М.: НИЯУ МИФИ, 2012. – 154 с.
12. *Lotsch T., Khalimonchuk V., Kurchin A.* Proposal of a benchmark for core burnup calculations of a VVER-1000 reactor core. AER Symposium on VVER Reactor Physics and Reactor Safety. – Varna (Bulgaria); Oct 21 – 25 2009. – P. 57.
13. *Croff A.G.* A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code. – Oak Ridge National Lab., TN (USA). July, 1980. – 196 p. Электронный ресурс:  
[https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig\\_q=RN:11560149](https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:11560149) (дата доступа 02.02.2017).

Поступила в редакцию 01.04.2017 г.

#### **Авторы**

Иванов Николай Витальевич, аспирант

E-mail: ivanovnik100@gmail.com

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

E-mail: kazansky@iate.obninsk.ru

Карпович Глеб Владиславович, аспирант

E-mail: gleb3452006@rambler.ru

## THE RESULTS OF THE TRANSMUTATION OF FISSION FRAGMENTS IN THE SPECTRUM OF NEUTRONS OF THERMAL AND FAST REACTORS

Ivanov N.V., Kazansky Yu.A., Karpovich G.V.

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

### ABSTRACT

The radioactivity of discharged spent nuclear fuel (SNF) from the reactor during the first hundred years is determined by fission fragments (FF), subsequently actinides contribute the main to the activity of SNF. Actual scenarios for SNF management are based on the transmutation of minor actinides (MA) into fission fragments in fast reactors. The scenarios of transmutation of fission fragments in a thermal neutron spectrum and fast neutron spectrum and the radiation characteristics as a function of time are considered. The nuclide composition of the fission fragments is based on results of modeling the burnup of the assembly 439GT (TVSA type) for VVER-1000 over three years on the MCU-5 complex. The data obtained was used to determine the initial composition of nuclides at different exposures before the initiation of transmutation (irradiation in neutron fluxes) for the ORIGEN2 program.

Three possible ways of irradiation of fission fragments are given: transmutation without cooling, cooling of fission fragments for four years before irradiation, cooling for 30 years before irradiation. The duration of irradiation was chosen equal to 3 and 15 years. Transmutation efficiency is determined by a time-dependent «coefficient of transmutation» equal to the ratio of radioactivity of nuclides in the process of transmutation and after its termination to their radioactivity without transmutation.

The coefficients of transmutation were noticeable only during irradiation in the reactor: their values reached 5 – 10 and depended on the duration of the fission fragments cooling before the beginning of transmutation. After the extraction of fission fragments from the neutron flux, the coefficient of transmutation was reduced to one within several years. A hundred years after irradiation in the thermal neutron spectrum, the coefficient of transmutation is reduced to 0.8 – 0.5, depending on the duration of the transmutation process. After irradiation in the fast neutron spectrum in the interval 200 – 1000 years, a slight increase in the transmutation coefficient to values 1.2 – 1.8 is observed and then after a thousand years decrease to values of 0.9 – 0.7.

The main conclusion is a special burning of fission fragments does not make sense, because non-significant gain in radioactivity (a little less than double) comes after the thousand years.

The indifference of fission fragments to transmutation can be explained by the fraction of stable nuclides, which increases with the duration of storage of fission fragments. After the end of the cycle of fuel use, there are approximately 15% of stable nuclides among the fission fragments, and after thirty years of aging, the amount of stable isotopes reaches 85%.

**Key words:** fission products, transmutation, transmutation coefficient, radioactivity.

### REFERENCES

1. Mukaiyama T., Gurji Y. Characteristics of minor actinides transmutation in minor actinide burner reactors and power reactor. First OECD/NEA Information Exchange

Meeting on Actinide and Fission Product Portioning and Transmutation. Mito City (Japan); Nov 6 – 8, 1990; pp. 326-346.

2. Salvatores M. The physics of transmutation for radioactive waste minimisation. The Frederic Joliot summer school in reactor physics. Cadarache, France, August 1998.

3. Kazansky Yu. A., Dudkin A. I., Klinov D. A. *Transmutacija: moda ili neobhodimost'?* [Transmutation: fashion or necessity?] *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 1993, no. 1, pp. 65-69 (in Russian).

4. Gay E. V., Ignatyuk A. V., Rabotnov N. S., Shubin Yu. N.. *Koncepciya obrashcheniya s dolgozhivushchimi yadernymi othodami* [Concept treatment of long-lived nuclear waste management]. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 1994, no. 1, pp. 17-21 (in Russian).

5. Shmelev A. N., Apse V. A., Kulikov G. G., Morin D. V., Novikov A. E. *O transmutacii dolgozhivushchih produktov deleniya v yadernyh ustanovkakh* [On the transmutation of long-lived fission products in nuclear facilities]. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 1994, no. 1, pp. 30-37 (in Russian).

6. Slessarev I., Salvatores M. The potential of nuclear transmutation: «neutron economics» of critical reactors and hybrids. Proc. of the International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems. Versailles (France); Sep 11 – 14 1995, v. 1, pp. 482-488.

7. Krivitski I. Yu. Actinide and Fission Product Burning in Fast Reactors with a Moderator. Proc. of the Int. Conf. On Future Nucl. Syst. GLOBAL-99. USA, Jackson Hole, Wyoming. Aug 29 – Sep 3 1999.

8. Kazansky Yu. A., Klinov D. A. *Effektivnost' transmutacii oskolkov deleyniya* [Transmutation Efficiency of Fission Fragments.] *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2000, no. 4, pp. 38-46 (in Russian).

9. Yang W. S., Kim Y., Hill R. N., Taiwo T. A. and Khalil H. S. Long-Lived Fission Product Transmutation Studies. *Nuclear Science and Engineering*. 2004, v. 146, pp. 291-318.

10. Kun Liu, Hongchun Wu, Liangzhi Cao, Youqi Zheng. Studies on LLFP transmutation in a pressurized water reactor. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2013, v. 50, no. 6, pp. 581-598.

11. Gurevich M. I., Shkarovsky D. A. *Raschet perenosa nejtronov metodom Monte-Karlo po programme MCU* [Calculation of neutron transport by the Monte Carlo method according to the program of the MCU]. Moscow. NRNU MEPhI Publ., 2012. 154 p. (in Russian).

12. Lotsch T., Khalimonchuk V., Kurchin A. Proposal of a benchmark for core burnup calculations of a VVER-1000 reactor core. AER Symposium on VVER Reactor Physics and Reactor Safety; Varna (Bulgaria); Oct 21 – 25 2009; p. 57.

13. Croff A. G. A User's Manual for the ORIGEN2 Computer Code. Oak Ridge National Lab., TN (USA). July, 1980; 196 p.

Available at: [https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig\\_q=RN:11560149](https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:11560149) (accessed 02.02. 2017).

#### Authors

Ivanov Nikolay Vital'evich, PhD Student

E-mail: [ivanovnik100@gmail.com](mailto:ivanovnik100@gmail.com)

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

E-mail: [kazansky@iate.obninsk.ru](mailto:kazansky@iate.obninsk.ru)

Karpovich Gleb Vladislavovich, Postgraduate Student

E-mail: [gleb3452006@rambler.ru](mailto:gleb3452006@rambler.ru)