

НЕЙТРОННО-ФИЗИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ МАСШТАБНОЙ НАРАБОТКИ ^{238}Pu ДЛЯ АВТОНОМНЫХ ИСТОЧНИКОВ ЭНЕРГИИ

Г.Г. Куликов*, А.Н. Шмелев**, В.Б. Глебов**, В.А. Ансэ**,
Е.Г. Куликов**

* Госкорпорация «Росатом»

119017, г. Москва, ул. Большая Ордынка, 24

** НИЯУ МИФИ

115409, г. Москва, Каширское ш., 31



Рассмотрены нейтронно-физические основы масштабной наработки изотопа ^{238}Pu для автономных источников энергии. Изотоп ^{238}Pu является уникальным источником длительного автономного энергоснабжения в различных устройствах для удаленных районов Земли и в космосе. Имеющиеся в настоящее время в России и мире мощности по его наработке недостаточны.

В работе рассматриваются цепочки наработки изотопа ^{238}Pu и устанавливаются оптимальные спектр и поток нейтронов для его наработки. Делается вывод, что наиболее привлекательным стартовым изотопом является ^{237}Np , который может быть извлечен из облученного ядерного топлива. Предлагаемый метод позволяет говорить о масштабной наработке плутония, отличающегося высоким содержанием изотопа ^{238}Pu и низким содержанием изотопа ^{236}Pu .

Ключевые слова: ^{238}Pu , цепочки нуклидных превращений, ^{237}Np .

Куликов Г.Г., Шмелев А.Н., Глебов В.Б., Ансэ В.А., Куликов Е.Г. Нейтронно-физические основы масштабной наработки ^{238}Pu для автономных источников энергии. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2023. – № 2. – С. 162-168. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2023.2.13> .

ВВЕДЕНИЕ

Изотоп плутония ^{238}Pu обладает рядом специфических свойств, делающих его ценным источником тепловой и электрической энергии для использования в радиоизотопных термоэлектрических генераторах (РИТЭГ) и в кардиостимуляторах. В космических аппаратах РИТЭГ играют роль одного из основных источников их энергообеспечения. Годовые потребности США в ^{238}Pu для космических РИТЭГ оцениваются в 1,5 – 2 кг и существенно превышают имеющиеся возможности по его наработке [1, 2].

Основным достоинством ^{238}Pu является его мощное удельное тепловыделение (~ 570 Вт/кг), которое может быть с КПД 10 – 12% преобразовано в электрическую энергию с помощью РИТЭГ. Длительный период полураспада ^{238}Pu ($T_{1/2} = 87,7$ лет) обеспечивает долговременное стационарное энергообеспечение.

© Г.Г. Куликов, А.Н. Шмелев, В.Б. Глебов, В.А. Ансэ, Е.Г. Куликов, 2023

ние космических аппаратов и кардиостимуляторов.

Хорошие делящиеся свойства ^{238}Pu делают его опасным материалом с точки зрения международного режима нераспространения ядерного оружия. К счастью, мощное тепловыделение ^{238}Pu и интенсивное спонтанное деление ($2,6 \cdot 10^3$ н/г·с) приводят к практической невозможности создания ядерного взрывного устройства (ЯВУ) из плутония с высоким содержанием ^{238}Pu . В документе МАГАТЭ [3] признается, что плутоний, содержащий более 80% ^{238}Pu , не может быть использован в ЯВУ и поэтому выведен из-под гарантий МАГАТЭ.

ПРОИЗВОДСТВО ^{238}Pu В ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРАХ

Наиболее подходящим стартовым материалом для наработки ^{238}Pu в ядерном реакторе является изотоп нептуния ^{237}Np [4]. Под действием нейтронного облучения ^{237}Np превращается в ^{238}Pu после короткого β^- -распада промежуточного изотопа ^{238}Np ($T_{1/2} = 2,1$ сут). На рисунке 1 приведена цепочка ядерных реакций, приводящих к образованию ^{238}Pu .

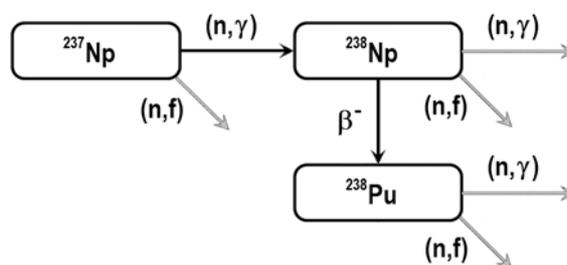


Рис. 1. Цепочка изотопных переходов при облучении ^{237}Np . Серые стрелки обозначают нежелательные каналы в процессе наработки ^{238}Pu , чёрные – желательные

Видно, что задача наработки ^{238}Pu из ^{237}Np решается в весьма противоречивых условиях. Нежелательные каналы значительно снижают выход целевого нуклида. Как следствие, стоимость ^{238}Pu высока и примерно составляет один миллион долларов США за килограмм.

Главное при наработке ^{238}Pu – требуется найти плотность потока и спектр нейтронов облучения ^{237}Np (предпочтительный спектр), чтобы выполнялись следующие условия:

- ^{237}Np должен, в основном, захватывать нейтроны, превращаясь в ^{238}Np , а не делиться;
- ^{238}Np должен, в основном, испытывать β^- -распад и переходить в ^{238}Pu , а не делиться и не захватывать нейтроны, что налагает ограничение на приемлемую величину нейтронного потока в материале мишени;
- ^{238}Pu должен в наименьшей мере делиться и захватывать нейтроны с тем, чтобы не уменьшалась его масса и не образовывались более тяжелые изотопы плутония.

ХАРАКТЕРИСТИКА ^{237}Np КАК СТАРТОВОГО МАТЕРИАЛА ДЛЯ НАРАБОТКИ ^{238}Pu

На рисунке 2 приведены энергетические зависимости микросечений радиационного захвата нейтронов и деления ^{237}Np [5].

Видно, что для того чтобы исходный облучаемый материал ^{237}Np , главным образом, захватывал нейтроны, а не бесполезно делился, желательно, чтобы спектр нейтронов, по крайней мере, находился ниже 0,1 МэВ. Причем с уменьшением энергии нейтронов имеется благоприятная тенденция роста отношения сечения захвата к

делению, достигающая в тепловой точке четырех порядков. Однако область тепловых и эпитепловых нейтронов не подходит для облучения мишенного материала в силу интенсивного расхода целевого нуклида ^{238}Pu там. Таким образом, область резонансного поглощения на ^{237}Np (1 – 600 эВ), где отношение сечений радиационного захвата к делению составляет три – четыре порядка, а резонансный интеграл равен 700 барн, можно рассматривать как предпочтительный спектр его облучения.

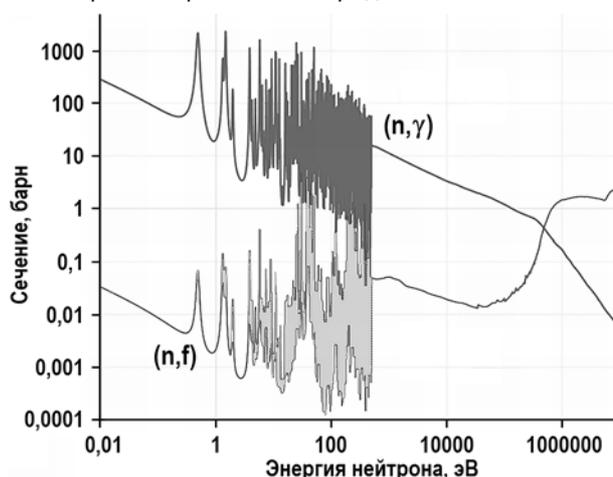


Рис. 2. Микросечения радиационного захвата и деления ^{237}Np

Изотоп ^{237}Np входит в состав трансурановых радиоактивных отходов (ТРАО), извлекаемых при переработке облученного ядерного топлива энергетических реакторов. Мало того, что ^{237}Np является долгоживущим химически опасным и радиотоксичным материалом, он ещё и пригоден для использования в ЯВУ (критическая масса ~ 57 кг). Поэтому выделение ^{237}Np из состава ТРАО и использование его для наработки ценного ^{238}Pu представляется вполне обоснованным. Важно только обеспечить достаточно высокую долю ^{238}Pu в плутонии, получаемом при нейтронном облучении ^{237}Np . К сожалению, есть ещё одно ограничение на изотопный состав плутония, получаемого при нейтронном облучении ^{237}Np . Дело в том, что нейтроны, облучающие ^{237}Np , инициируют не только полезную реакцию $^{237}\text{Np}(n,\gamma)^{238}\text{Pu}$, но и реакцию $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Pu}$, ведущую к появлению изотопа ^{236}Pu . Нежелательность этого изотопа основана на радиоактивности продуктов распада ^{236}Pu , среди которых есть источники жесткого γ -излучения (в основном, ^{208}Tl). Поэтому наработка ^{238}Pu в странах-производителях этого изотопа находится под жестким ограничением по содержанию изотопа ^{236}Pu .

Таблица 1

Состав плутония, производимого в Саванна-Ривер

Изотоп	Масса, %
^{236}Pu	$\leq 1 \cdot 10^{-4}$
^{238}Pu	83,5
^{239}Pu	14,01
^{240}Pu	1,98
^{241}Pu	0,37

В таблице 1 приведен типичный состав плутония, нарабатываемого до 1988 г. в Саванна-Ривер в штате Южная Каролина, США [6].

В настоящее время состав нарабатываемого плутония также должен соответствовать требованиям (например, NASA) по пригодности для космических РИТЭГ: содержание ^{238}Pu – не менее 85%, доля ^{236}Pu – не более 2 ppm [7].

ПРОИЗВОДСТВО ^{238}Pu В РОССИИ И США

В России производство РИТЭГ на основе ^{238}Pu для навигационных служб полностью прекращено, однако их производство для космических программ является важной составляющей в освоении космического пространства [8]. В отличие от США, Россия не прекращала производство ^{238}Pu , хотя оно требует значительных затрат.

Одним из ведущих производителей ^{238}Pu и других изотопов является производственное объединение «Маяк». Примерно пятая часть мирового производства изотопов находится на ПО «Маяк». Основная часть изотопной продукции, выпускаемой на ПО «Маяк», поставляется на экспорт. В 1992 г. ПО «Маяк» подписало контракт на поставку в США пяти килограммов изотопа ^{238}Pu . Контракт оценивался на сумму около шести миллионов долларов. Этим килограммам, по мнению экспертов, хватило на запуск трёх – пяти спутников с РИТЭГ. Фактически можно предположить, что все «постсоветские» запуски американских спутников с РИТЭГ осуществлялись на ^{238}Pu российского производства [9].

В настоящее время на ПО «Маяк» имеются два промышленных реактора третьего поколения – «Руслан» и «Людмила». Оба реактора обладают уникальными нейтронно-физическими характеристиками и позволяют получать широкий спектр радиоактивных изотопов гражданского назначения [10]. В сентябре 2015 г. на ПО «Маяк» приступили к проектированию нового реактора, его запуск запланирован на 2023 г. [10]. Он задуман как многоцелевой с возможностью генерации электроэнергии и получения широкого спектра радиоизотопов.

В ряде публикаций [1, 7, 11] анализируются возможности наработки ^{238}Pu в исследовательских реакторах США. Тепловой спектр нейтронов в исследовательских реакторах ATR (Idaho National Laboratory) и HFIR (Oak Ridge National Laboratory, ORNL) позволяет, с одной стороны, интенсифицировать полезную реакцию $^{237}\text{Np}(n,\gamma)^{238}\text{Pu}$, а с другой стороны – подавить нежелательную реакцию $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Pu}$, которая может быть инициирована только быстрыми нейтронами с энергией на уровне 0,6 МэВ.

В работе [11] представлены результаты нейтронно-физических расчетов наработки ^{238}Pu в исследовательском реакторе ATR при введении в его состав таблеток из 20% NpO_2 и 80% Al. Показано, что темп наработки может составить до 300 г ^{238}Pu в год при его доле в плутонии не менее 96% и при доле ^{236}Pu не выше 2 ppm.

В настоящее время ORNL возобновила производство ^{238}Pu на имеющемся исследовательском реакторе HFIR [12]. На конец 2019 г. масштаб наработки ^{238}Pu составлял приблизительно 400 граммов [13]. Одновременно в работе [7] представлены результаты нейтронно-физических расчетов наработки ^{238}Pu в исследовательском реакторе HFIR после его модернизации на эти цели. Показана возможность наработки примерно 1,15 кг ^{238}Pu в год при его содержании в плутонии на уровне 85% и при доле ^{236}Pu около 2,35 ppm.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Наилучшим стартовым изотопом для масштабной наработки плутония с высоким содержанием изотопа ^{238}Pu является изотоп ^{237}Np .

Для увеличения темпа наработки плутония следует стремиться к высокому потоку нейтронов, который, однако, ограничен некоторой величиной, определяемой требова-

нием, чтобы скорость реакции радиоактивного распада ^{238}Pu превышала суммарную скорость реакций делений и захвата на нем.

Для наработки плутония необходимого изотопного состава следует выбирать резонансный спектр нейтронов. При этом для использования резонансов радиационного захвата нейтронов на ^{237}Pu нужны малые ступеньки замедления нейтронов, а следовательно, среда должна быть тяжелой по атомному весу (например, свинец, висмут).

Благодарность

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда, проект № 22-22-00287.

Литература

1. US Department of Energy start-up plan for plutonium-238 production for radioisotope power systems. Электронный ресурс: https://www.energy.gov/sites/default/files/2015/09/f26/Final_Startup_Plan_for_Plutonium238.pdf (дата доступа 10.11.2022).
2. An exploration of mission concepts that could utilize small RPS. Электронный ресурс: <http://anstd.ans.org/NETS-2019-Papers/Track-2-Mission-Concepts-and-Logistics/abstract-31-0.pdf> (дата доступа 10.11.2022).
3. INFCIRC/153. The structure and content of agreements between the Agency and States required in connection with the Treaty on the non-proliferation of nuclear weapons. Электронный ресурс: https://www.iaea.org/sites/default/files/infcirc153_rus.pdf (дата доступа 10.11.2022).
4. *Shmelev A.N., Geraskin N.I., Kulikov G.G., Kulikov E.G., Apse V.A., Glebov V.B.* The problem of large-scale production of plutonium-238 for autonomous energy sources. // Journal of Physics: Conference Series. – 2020. – Vol. 1689. – Iss. 111. – Paper No. 012030. DOI: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1689/1/012030>.
5. *Shibata K., Iwamoto O., Nakagawa T., et al.* JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering. // Journal of Nuclear Science and Technology. – 2011. – Vol. 48(1). – PP. 1-30.
6. Radioisotope Power Systems for Deep Space Exploration – Some Background. Электронный ресурс: <https://www.nationalacademies.org/event/03-05-2021/docs/D7D82520CDCFA8423E16CD569643B93B8837DDEA9EDB> (дата доступа 10.11.2022).
7. *Daily C.R., McDuffee J.L.* Design studies for the optimization of ^{238}Pu production in NpO_2 targets irradiated at the High Flux Isotope Reactor. // Nuclear Technology. – 2020. – Vol. 206. – PP. 1182-1194. DOI: <https://doi.org/10.1080/00295450.2019.1674594>.
8. Опыт военных гидрографов РФ может ускорить очистку Севморпути от РИТЭГов – эксперт. Электронный ресурс: <http://www.atominform.ru/news9/i0545.htm> (дата доступа 10.11.2022).
9. Пентагону не хватило российского плутония. Электронный ресурс: <https://lenta.ru/articles/2005/06/28/plutonium/> (дата доступа 10.11.2022).
10. Комбинат «Маяк» приступил к проектированию новейшего исследовательского реактора. Электронный ресурс: <https://tass.ru/ural-news/2304431> (дата доступа 10.11.2022).
11. Optimization of plutonium-238 production in the Advanced Test Reactor for radioisotope thermoelectric generators in deep space exploration applications. Электронный ресурс: <https://www.researchgate.net/publication/332182780> (дата доступа 10.11.2022).
12. *Betzler B.R., Chandler D., Evans T.M., Davidson G.G., Daily C.R., Wilson S.C., Mosher S.W.* As-Built Simulation of the High Flux Isotope Reactor. // Journal of Nuclear Engineering. – 2021. – Vol. 2. – PP. 28-34. DOI: <https://doi.org/10.3390/jne2010003>.
13. Process development for plutonium-238 production at Oak Ridge National Laboratory. Электронный ресурс: <http://anstd.ans.org/NETS-2019-Papers/Track-5->

Radioisotope-Power-Systems/abstract-80-0.pdf (дата доступа 10.11.2022).

Поступила в редакцию 14.11.2022 г.

Авторы

Куликов Геннадий Генрихович, главный эксперт

E-mail: gegkulikov@rosatom.ru

Шмелев Анатолий Николаевич, профессор

E-mail: shmelan@mail.ru

Глебов Василий Борисович, с.н.с.

E-mail: vbglebov@mephi.ru

Апсэ Владимир Александрович, заведующий НИС

E-mail: apseva@mail.ru

Куликов Евгений Геннадьевич, доцент

E-mail: egkulikov@mephi.ru

UDC 621.039.8

Neutronic Foundations for Large-Scale Production of ^{238}Pu for Independent Energy Sources

Kulikov G.G. *, Shmelev A.N. **, Glebov V.B. **, Apse V.A. **, Kulikov E.G. **

* ROSATOM State Atomic Energy Corporation

24 Bolshaya Ordynka Str., 119017 Moscow, Russia

** МЭФН

31 Kashirskoe Sh., 115409 Moscow, Russia

ABSTRACT

The paper considers the neutronic foundations for large-scale production of ^{238}Pu for independent energy sources. The ^{238}Pu isotope is a unique source of long-term independent energy supply in various devices for remote areas on Earth and in space. At the same time, the capacity for its production currently available in Russia and worldwide is insufficient.

The paper considers the chains for producing the ^{238}Pu isotope and defines the optimal spectrum and neutron flux for its production. A conclusion is made that the most attractive starting isotope is ^{237}Np that can be extracted from irradiated nuclear fuel. The proposed method allows for large-scale production of plutonium, which is distinctive in high content of the ^{238}Pu isotope and low content of the ^{236}Pu isotope.

Key words: ^{238}Pu , nuclide transformation chains, ^{237}Np .

Kulikov G.G., Shmelev A.N., Glebov V.B., Apse V.A., Kulikov E.G. Neutronic Foundations for Large-Scale Production of ^{238}Pu for Independent Energy Sources. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2023, no. 2, pp. C. 162-168; DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2023.2.13> (in Russian).

REFERENCES

1. US Department of Energy Start-Up Plan for Plutonium-238 Production for Radioisotope Power Systems. Available at: https://www.energy.gov/sites/default/files/2015/09/f26/Final_Startup_Plan_for_Plutonium238.pdf (accessed Nov. 10, 2022).
2. An Exploration of Mission Concepts that Could Utilize Small RPS. Available at: <http://>

anstd.ans.org/NETS-2019-Papers/Track-2–Mission-Concepts-and-Logistics/abstract-31-0.pdf (accessed Nov. 10, 2022).

3. INFCIRC/153. The Structure and Content of Agreements Between the Agency and States Required in Connection with the Treaty on the Non-Proliferation of Nuclear Weapons. Available at: <https://www.iaea.org/sites/default/files/publications/documents/infircs/1972/infirc153.pdf> (accessed Nov. 10, 2022).

4. Shmelev A.N., Geraskin N.I., Kulikov G.G., Kulikov E.G., Apse V.A., Glebov V.B. The Problem of Large-Scale Production of Plutonium-238 for Autonomous Energy Sources. *Journal of Physics: Conference Series*. 2020, v. 1689, iss. 111, paper no. 012030; DOI: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1689/1/012030>.

5. Shibata K., Iwamoto O., Nakagawa T., Iwamoto N., Ichihara A., Kunieda S., Chiba S., Furutaka K., Otuka N., Ohsawa T., Murata T., Matsunobu H., Zukeran A., Kamada S. & Katakura J. JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2011, v. 48(1), pp. 1-30.

6. Radioisotope Power Systems for Deep Space Exploration – Some Background. Available at: <https://www.nationalacademies.org/event/03-05-2021/docs/D7D82520CDCFA8423E16CD569643B93B8837DDEA9EDB> (accessed Nov. 10, 2022).

7. Daily C.R., McDuffee J.L. Design Studies for the Optimization of ²³⁸Pu Production in NpO₂ Targets Irradiated at the High Flux Isotope Reactor. *Nuclear Technology*. 2020, v. 206. pp. 1182-1194; DOI: <https://doi.org/10.1080/00295450.2019.1674594>.

8. The Experience of Military Hydrographers of the Russian Federation can Speed up the Cleaning of the Northern Sea Route from RTGs – Expert. Available at: <http://www.atominfo.ru/news9/i0545.htm> (accessed Nov. 10, 2022) (in Russian).

9. The Pentagon Ran out of Russian Plutonium. Available at: <https://lenta.ru/articles/2005/06/28/plutonium/> (accessed Nov. 10, 2022) (in Russian).

10. The Mayak Plant Began Designing the Latest Research Reactor. Available at: <https://tass.ru/ural-news/2304431> (accessed Nov. 10, 2022) (in Russian).

11. Optimization of Plutonium-238 Production in the Advanced Test Reactor for Radioisotope Thermoelectric Generators in Deep Space Exploration Applications. Available at: <https://www.researchgate.net/publication/332182780> (accessed Nov. 10, 2022).

12. Betzler B.R., Chandler D., Evans T.M., Davidson G.G., Daily C.R., Wilson S.C., Mosher S.W. As-Built Simulation of the High Flux Isotope Reactor. *Journal of Nuclear Engineering*. 2021. Vol. 2. PP. 28–34. DOI: <https://doi.org/10.3390/jne2010003>.

13. Process Development for Plutonium-238 Production at Oak Ridge National Laboratory. Available at: <http://anstd.ans.org/NETS-2019-Papers/Track-5–Radioisotope-Power-Systems/abstract-80-0.pdf> (accessed Nov. 10, 2022).

Authors

Gennady G. Kulikov, Chief Expert
E-mail: gegkulikov@rosatom.ru

Anatoly N. Shmelev, Professor
E-mail: shmelan@mail.ru

Vasily B. Glebov, Senior Researcher
E-mail: vbglebov@mephi.ru

Vladimir A. Apse, Head of the Scientific and Research Sector
E-mail: apseva@mail.ru

Evgeny G. Kulikov, Assistant Professor
E-mail: egkulikov@mephi.ru