

МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ

НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЯДЕРНЫЙ
УНИВЕРСИТЕТ «МИФИ»

В.А. Апсэ, А.Н. Шмелев, Г.Г. Куликов, Е.Г. Куликов

**Основы безопасного обращения и обезвреживания
радиоактивных отходов**

*Допущено ФУМО по УГСН 14.00.00
Ядерная энергетика и технологии в качестве учебного пособия
для студентов высших учебных заведений,
обучающихся по направлению «Ядерные физика и технологии»*

Москва 2019

УДК 621.039.73(075)

ББК 31.4я7

О-75

Основы безопасного обращения и обезвреживания радиоактивных отходов: Учебное пособие / В.А. Апсэ, А.Н. Шмелев, Г.Г. Куликов, Е.Г. Куликов. М.: НИЯУ МИФИ, 2019. 112 с.

Рассмотрены физические процессы, связанные с безопасным обращением и с обезвреживанием радиоактивных отходов предприятий ядерного топливного цикла. Показано, каким образом долгоживущие радионуклиды, входящие в состав радиоактивных отходов, могут быть обезврежены (трансмутированы) путем превращения их в короткоживущие и стабильные изотопы. Оценены перспективы использования различных ядерных установок (ядерные реакторы, электроядерные и термоядерные установки) для осуществления нейтронной трансмутации радиоактивных отходов. Сформулированы основные требования, а также критерии осуществимости и эффективности трансмутационного процесса.

Предназначено для использования студентами старших курсов и аспирантами при изучении курсов «Ядерные технологии», «Ядерные технологии и экология ядерного топливного цикла», «Основы обращения с радиоактивными отходами».

Рецензент д-р физ.-мат. наук Ю.Е. Титаренко

ISBN 978-5-7262-2553-1

© Национальный
исследовательский
ядерный университет
«МИФИ», 2019

ОГЛАВЛЕНИЕ

Список сокращений.....	5
Глава 1. Технологии переработки и захоронения радиоактивных отходов.....	6
1.1. Введение.....	6
1.2. Классификация РАО.....	7
1.3. Переработка высокоактивных отходов.....	8
1.3.1. Захоронение РАО в геологических формациях.....	11
1.4. Переработка жидких САО и НАО.....	15
1.5. Переработка газообразных РАО.....	16
1.6. Переработка твердых РАО.....	18
1.7. Дезактивация оборудования РХЗ.....	19
Контрольные вопросы.....	21
Глава 2. Физические основы обезвреживания радиоактивных отходов.....	22
2.1. Введение.....	22
2.2. Основные уравнения нейтронной трансмутации.....	24
2.2.1. Темп накопления и изотопный состав ПД.....	24
2.2.2. Уравнения изотопной трансмутации ДПД.....	25
2.3. Условия осуществления изотопной трансмутации ДПД.....	28
2.4. Потребление нейтронов при изотопной трансмутации ДПД.....	30
2.5. Эффективность изотопной трансмутации ДПД.....	37
2.6. Элементарная трансмутация ДПД.....	41
2.7. Условия осуществления элементарной трансмутации ДПД.....	43
2.7.1. Два подхода к оценке потребления нейтронов при элементарной трансмутации ДПД.....	44
2.8. Потребление нейтронов при элементарной трансмутации ДПД.....	48
2.9. Эффективность элементарной трансмутации ДПД.....	59

2.10. Элементная трансмутация ДПД в ТЯУ.....	75
2.10.1. Элементная трансмутация цезия.....	84
2.10.2. Элементная трансмутация палладия.....	85
2.11. Элементная трансмутация ДПД в ЭЛЯУ.....	87
Контрольные вопросы.....	89
Глава 3. Нейтронная трансмутация младших актинидов.....	90
3.1. Введение.....	90
3.2. Потенциальная роль МА в защите плутония от распространения.....	93
3.3. Физические особенности трансмутации кюриевой фракции.....	96
3.4. Запаздывающие нейтроны деления МА.....	96
3.5. Подкритические системы для сжигания МА.....	97
3.6. Пример концепции бланкета для сжигания кюриевой фракции.....	104
3.7. Переработка РАО в процессе трансмутации.....	106
3.8. Обращение с облученными конструкционными материалами.....	109
Контрольные вопросы.....	111
Список литературы.....	112

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ

АЭС – атомная электростанция
БР – быстрые реакторы
ВАО – высокоактивные отходы
ДПД – долгоживущие продукты деления
ЖС – жесткий спектр
КМ – конструкционные материалы
КрПД – короткоживущие продукты деления
МА – младшие актиниды
МС – мягкий спектр
НАО – низкоактивные отходы
ОТВС – облученная тепловыделяющая сборка
ОЯТ – облученное ядерное топливо
ПД – продукты деления
ППН – плотность потока нейтронов
РАО – радиоактивные отходы
РХЗ – радиохимический завод
САО – среднеактивные отходы
СПД – среднеживущие продукты деления
ТБФ – трибутилфосфат
ТВС – тепловыделяющая сборка
ТР – тепловые реакторы
ТЯУ – термоядерная установка
ЭЛЯУ – электроядерная установка
ЯЭС – ядерная энергетическая система

Глава 1

ТЕХНОЛОГИИ ПЕРЕРАБОТКИ И ЗАХОРОНЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

1.1. Введение

Все ядерные технологии связаны с использованием или сопровождаются образованием радиоактивных веществ. Например, свежие ТВС ядерных реакторов содержат радиоактивные изотопы урана, а облученные ТВС – радиоактивные изотопы урана, плутония, трансурановых элементов и продукты деления (ПД). Часть этих изотопов может быть выделена и использована. Так делящиеся и воспроизводящие изотопы могут быть введены в состав свежего ядерного топлива АЭС, а некоторые ПД и трансурановые элементы применяются как тепловые источники или источники ионизирующего излучения в медицине и промышленности. Оставшиеся радиоактивные вещества, полезное применение которых пока не представляется возможным, относят к радиоактивным отходам (РАО). Итак, РАО – радиоактивные вещества, полезное применение которых пока невозможно.

Поэтому к РАО относят:

- 1) продукты ядерных технологий, непригодные для промышленного применения;
- 2) все материалы и изделия, загрязненные радиоактивными веществами, до их дезактивации.

Специфическая особенность РАО заключается в невозможности их уничтожения традиционными методами (сжигание, перевод в другую химическую форму). В любой химической форме РАО сохраняют свою радиоактивность и остаточное тепловыделение. Традиционными методами можно только преобразовать РАО в форму, удобную для окончательного захоронения в подземных геологических структурах. Нетрадиционные методы уничтожения РАО предполагают создание специализированных ядерных установок, в которых РАО подвергаются действию ионизирующих излучений (нейтроны или гамма-кванты) с целью превращения долгоживущих изотопов в короткоживущие или стабильные.

Наибольшую опасность представляют РАО процесса химической переработки облученного ядерного топлива (ОЯТ). Эти РАО

опасны как по количеству, так и по интенсивности излучения, во многом определяемому ПД. Количество ПД в ОЯТ составляет 30–40 кг/т ОЯТ тепловых реакторов и около 100 кг/т ОЯТ быстрых реакторов. Соответствующие величины активности ПД: 6 МКи/т ОЯТ-ТР и 20 МКи/т ОЯТ-БР (на момент выгрузки из реактора).

Для сравнения

1. Полный выброс радиоактивных веществ при аварии на Чернобыльской АЭС оценивается в 90 МКи.

2. Полный выброс радиоактивных веществ при аварии в Кыштыме (взрыв хранилища жидких РАО в 1957 г.) оценивается в 20 МКи.

1.2. Классификация РАО

РАО классифицируются по агрегатному состоянию (жидкие, газообразные, твердые) и по уровню удельной активности (низкоактивные, среднеактивные, высокоактивные). В табл. 1.1 и 1.2 приведены уровни удельной активности, при которых РАО относятся к категориям низко-, средне- и высокоактивных РАО. Это нормы, принятые российскими регулирующими органами.

Таблица 1.1

Классификация жидких и газообразных РАО

Категория	Удельная активность, Ки/л	
	жидкие	газообразные
Низкоактивные	$\leq 10^{-5}$	$\leq 10^{-13}$
Среднеактивные	$10^{-5}-1$	$10^{-13}-10^{-9}$
Высокоактивные	> 1	$> 10^{-9}$

Цель переработки РАО – обеспечить защиту человека и окружающей среды от негативных свойств радиоактивных веществ: ионизирующее излучение, тепловыделение и химическая токсичность.

Классификация твердых РАО

Категория	Мощность дозы*, Р/ч	Вид излучения		
		α , Ки/кг	β , Ки/кг	γ , Гр/ч**
Низкоактивные	< 0.2	$2 \cdot 10^{-7} - 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-6} - 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-7} - 3 \cdot 10^{-4}$
Среднеактивные	0.2–2	$10^{-5} - 10^{-2}$	$10^{-4} - 10^{-1}$	$3 \cdot 10^{-4} - 10^{-2}$
Высокоактивные	> 2	$> 10^{-2}$	$> 10^{-1}$	$> 10^{-2}$

* На поверхности.

** В 10 см от поверхности.

1.3. Переработка высокоактивных отходов

Существуют две основные формы ВАО.

1. ВАО химической переработки ОЯТ. Это, главным образом, жидкие отходы, так как промышленная переработка ОЯТ основана преимущественно на водной экстракционной технологии. Известно, что при переработке 1 т ОЯТ энергетических реакторов образуется примерно 45 м^3 жидких ВАО, 150 м^3 жидких среднеактивных отходов и до 2000 м^3 жидких низкоактивных отходов.

2. Облученные ТВС (ОТВС) энергетических реакторов.

Эти ТВС рассматриваются в США, где введен мораторий на химическую переработку ОЯТ коммерческих АЭС, как контейнеры ВАО, готовые для временного хранения в бассейнах АЭС или в неглубоких (приповерхностных) хранилищах, а затем для окончательного захоронения в глубоких геологических хранилищах.

Основные этапы переработки ВАО

1. Промежуточное хранение:

а) для ОТВС – размещение в бассейнах-хранилищах на АЭС и на заводах по переработке ОЯТ;

б) для жидких ВАО – размещение в резервуарах из нержавеющей стали; обеспечивается контроль за тепловыделением (при необходимости, принудительный теплоотвод) и за составом газовой подушки над уровнем ВАО (продувка воздухом, удаление водорода, образующегося при радиоллизе воды).

2. Выпаривание жидких ВАО.

Выпаривание обеспечивает 150–200-кратное уменьшение объема ВАО. При этом происходит:

- а) повышение удельной активности концентрированных ВАО;
- б) увеличение удельного тепловыделения, связанного с естественным распадом нуклидов и, как следствие, повышение температуры ВАО;
- в) усиление коррозионной активности ВАО с повышенной концентрацией и повышенной температурой;
- г) усиленное газообразование из-за радиолитического распада воды и нитратов (повышается взрывоопасность водородовоздушной смеси).

Для борьбы с этими процессами принимаются такие меры:

- а) контроль за содержанием водорода в газовой подушке;
- б) продувка воздухом для разбавления и удаления водорода;
- в) контроль за температурой газовой подушки (не выше 50–60 °С);
- г) принудительное охлаждение резервуаров;
- д) использование коррозионно-стойких сплавов и нержавеющей сталей в испарительных установках и резервуарах ВАО;
- е) добавление в ВАО реагентов, замедляющих коррозию;
- ж) размещение резервуаров с концентрированными ВАО ниже уровня земли, на бетонных поддонах.

3. Отверждение ВАО.

Цель этого этапа переработки – внедрение ВАО в устойчивую матрицу, препятствующую миграции ВАО в окружающую среду, другими словами иммобилизация ВАО, существенное снижение их миграционной способности.

В настоящее время наиболее подходящей формой иммобилизации ВАО считается их включение в состав стекол.

Разработаны две технологии стеклования ВАО.

1. Одностадийная технология.

Жидкие концентрированные ВАО загружаются в тигель, куда также вводятся стеклообразующие добавки. При постепенном разогреве смеси последовательно происходит:

- а) окончательное выпаривание ВАО;
- б) прокаливание высушенных ВАО при температуре 300–400 °С;

в) плавление стекломассы при температуре 1100–1150 °С.

После охлаждения тигель вместе со всем его содержимым отправляется на захоронение.

2. Двухстадийная технология.

Примером двухстадийного стеклования ВАО является АVM-технология, разработанная во Франции.

Основные стадии АVM-технологии:

а) прокаливание исходных ВАО при температуре 300–400 °С;

б) смешивание кальцината со стеклообразующими добавками и пересыпание в плавильную печь;

в) разогрев и стеклование массы при 1100–1150 °С;

г) периодический слив стекломассы в стальные контейнеры;

д) промежуточное хранение и захоронение контейнеров.

Существуют технологии, альтернативные стеклованию ВАО. Это включение ВАО в другие устойчивые материалы (керамика, стеклокерамика, минералоподобные материалы типа SYNROC).

Рассмотрим подробнее SYNROC-технологию. SYNROC – сокращение от Synthetic Rock, т.е. синтетические скальные породы. Разработка технологии создания искусственных скальных пород и иммобилизации ВАО базируется на надежде, что эти материалы будут столь же устойчивы и долговечны, как и их природные аналоги. Эта технология разработана и опробована в Австралии.

Типичный пример применения SYNROC-технологии:

1) смешивание ВАО с предшественниками синтетических скальных пород, пример смеси предшественников SYNROC-материала: TiO_2 (71 %), CaO (11 %), ZrO_2 (7 %), BaO (6 %), Al_2O_3 (5 %);

2) прокаливание при температуре 650–750 °С;

3) горячее прессование порошка в таблетки SYNROC-материала (температура – 1100–1200 °С, давление – 150–200 атм);

4) контейнеризация таблеток SYNROC-материала, промежуточное хранение и окончательное захоронение.

Испытания показали, что:

1) минералоподобные SYNROC-материалы имеют физические, химические и коррозионные свойства, схожие со свойствами природных скальных материалов, т.е. могут оказаться устойчивыми к воздействию окружающей среды в течение длительного времени;

2) SYNROC-таблетки могут содержать до 20 вес. % ВАО;

3) скорость выщелачивания SYNROC-материалов обычной водой составляет 10^{-6} – 10^{-5} г с 1 см^2 поверхности в сутки.

По указанным выше показателям SYNROC-материалы уступают только боросиликатному стеклу, у которого:

1) содержание ВАО достигает 30 вес. %, это связано с тем, что стекло обладает неупорядоченной кристаллической структурой и поэтому способно удерживать широкий диапазон радионуклидов; минералы с упорядоченной кристаллической решеткой (керамика, SYNROC-материалы) способны удерживать лишь радионуклиды с определенными размерами атомов и с определенной валентностью;

2) скорость выщелачивания стекла обычной водой составляет 10^{-8} – 10^{-7} г/($\text{см}^2 \cdot \text{сут.}$).

Итак, SYNROC-материалы проигрывают стеклу по способности удерживать большие количества ВАО и по скорости выщелачивания водой, но остаются вторыми после стекла материалами для иммобилизации ВАО.

После иммобилизации ВАО в стеклоблоках или в таблетках SYNROC-материала эти отвержденные формы помещают в стальные контейнеры. Дальнейшее обращение с ВАО предполагает промежуточное хранение контейнеров в неглубоких приповерхностных хранилищах с воздушным или водным охлаждением в течение 30–50 лет. Предусматривается возможность извлечения контейнеров для обследования состояния твердых форм и, возможно, для дальнейшей обработки.

1.3.1. Захоронение РАО в геологических формациях

Следующая стадия – окончательное захоронение контейнеров ВАО в подземных геологических формациях. Чтобы геологические формации были пригодны для захоронения ВАО, они должны удовлетворять следующим требованиям.

1. Формации должны быть достаточно далеки от крупных населенных пунктов и размещены в сейсмически стабильном районе, без землетрясений и вулканической активности.

2. Геологический пласт хранилища не должен иметь выхода на поверхность земли.

3. В хранилище должна быть слабая циркуляция грунтовых вод.

4. Пласт хранилища должен обладать хорошей теплопроводностью, пластичностью и способностью адсорбировать радионуклиды.

Как кандидаты рассматриваются три формации:

- 1) соляные месторождения;
- 2) глинистые осадочные породы;
- 3) твердые скальные породы.

Проанализируем достоинства и недостатки этих формаций.

Соляные месторождения

Достоинства

1. Гидрогеологические условия в районах разведанных соляных месторождений таковы, что соли сохраняются в неизменном состоянии миллионы лет, несмотря на то, что, вообще говоря, соли растворимы в обычной воде.

2. Пластичность.
3. Высокая теплопроводность.

Недостатки

1. Растворимость в воде.
2. Потенциальная полезность, т.е. возможность промышленного освоения месторождений.
3. Радиолит под действием ионизирующих излучений с усиленным газовыделением (например, с выделением хлора).

Глинистые породы

Достоинства

1. Полная водонепроницаемость.
2. Высокая сорбционная способность по отношению к большинству ПД (кроме ^{129}I и ^{99}Tc).
3. Пластичность.

Недостатки

1. Малая сорбционная способность отдельных ПД (^{129}I и ^{99}Tc).
2. Низкая теплопроводность.
3. Близость к поверхности земли.

Скальные породы

Достоинство

1. Высокая водонепроницаемость.

2. Высокая механическая прочность и химическая устойчивость.

Недостатки

1. Низкая пластичность, возможность образования трещин и миграции радионуклидов в биосферу.

2. Низкая теплопроводность.

Рассмотрим процессы, происходящие с ВАО, захороненными в глубокие подземные хранилища, на примере строящегося в США геологического хранилища «Yucca Mountain» (штат Невада). Схема хранилища приведена на рис. 1.1.

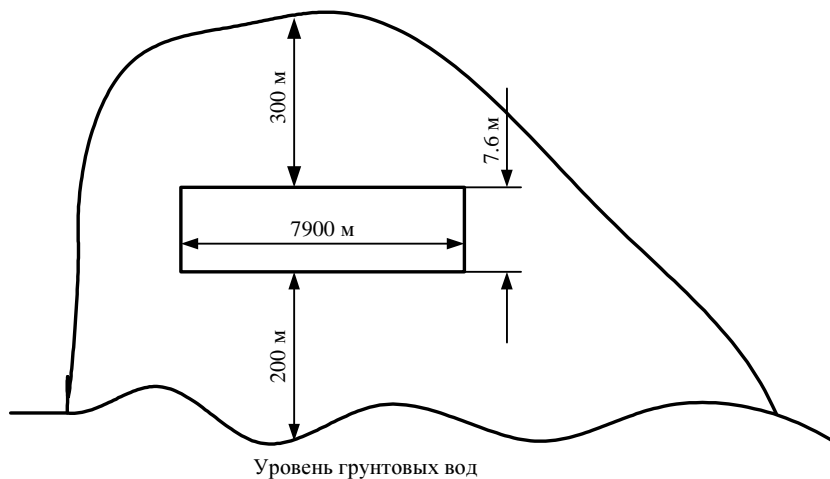


Рис. 1.1. Схема подземного хранилища «Yucca Mountain»

Строительство хранилища начато в 1994 г. К апрелю 1997 г. завершена проходка основного штрека (длина – 7900 м, диаметр – 7,6 м, глубина под поверхностью горы – 300 м, высота над уровнем грунтовых вод – 200 м). В 2002 г. завершены все исследования (геологические, гидрологические, геохимические, геотермальные и т.д.) и подана заявка в Комиссию по ядерному регулированию США для получения лицензии на эксплуатацию хранилища. В 2010 г. планировалось начать заполнение хранилища (планируемый объем хранилища – 77 тыс. т ВАО). Но лицензия на эксплуатацию хранилища до сих пор не получена.

Скальная порода, в которой размещено хранилище, представляет собой туф с большим количеством трещин. Измерена скорость вертикального просачивания воды в хранилище; она составляет ~ 1 л на 1 м² поверхности дна хранилища в год (несколько капель воды на 1 м² в час) или это слой воды 1 мм/год.

По оценкам, определяющее влияние на возможность контакта воды с радионуклидами и их выноса в биосферу будет оказывать тепловыделение загруженных ВАО. При полностью загруженном хранилище часть объема горы, прилегающая к хранилищу, может разогреться до ~ 130 °С, т.е. выше температуры кипения воды. В результате образуется замкнутый контур естественной конвекции воды от горячего хранилища к удаленным холодным областям скальных пород. Там пар будет конденсироваться и стекать вниз. Гидрологические условия в загруженном хранилище будут кардинально отличаться от гидрологии незагруженного хранилища.

Основные гидрологические эффекты загруженного хранилища:

- 1) создание конденсатного слоя воды над хранилищем из-за естественной конвекции горячего пара и холодной воды;
- 2) пропитка водой области горы, прилегающей к хранилищу;
- 3) повышение растрескивания прилежащих слоев туфа под воздействием пара и градиента температуры;
- 4) усиление химической активности горячей воды (ускорение коррозии контейнеров, повышение растворимости радионуклидов).

Итак, внутреннее тепловыделение ВАО может стать серьезным препятствием, ограничивающим вместимость дорогостоящих геологических хранилищ. Это тепловыделение обусловлено распадом среднеживущих ПД (¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr) и младших актинидов (изотопы нептуния, америция и кюрия). В краткосрочной перспективе (100–200 лет) основной вклад в распадное тепловыделение дают ПД. В более отдаленной перспективе ($t > 1000$ лет) доминирующая роль в тепловыделении ВАО переходит к младшим актинидам.

Поэтому изучается альтернативный подход к управлению ВАО, состоящий в извлечении из них долгоживущих ПД и младших актинидов (МА). Извлеченные ПД и МА могут быть:

- 1) использованы как источники ионизирующего излучения и тепла;

2) использованы для денатурации оружейного или реакторного плутония (дело в том, что при нейтронном облучении изотопов ^{237}Pu и ^{241}Am , входящих в состав МА, образуется изотоп ^{238}Pu , сильный источник тепловыделения α -распада и нейтронов спонтанного деления; смешивание ^{238}Pu с плутонием может сделать последний практически непригодным для военного применения);

3) трансмутированы в специальных ядерных установках, т.е. превращены в короткоживущие или стабильные изотопы посредством, например, нейтронного облучения.

1.4. Переработка жидких САО и НАО

1. Осаждение и удаление твердых отходов из жидких фаз (отстаивание и фильтрация с применением коагулянтов).

2. Ионообменная очистка оставшихся растворов.

3. Упаривание для получения сухого остатка.

4. Иммобилизация САО и НАО путем битуминизации (смешивание с битумной массой) или цементирования (отверждение в бетоне).

5. Контейнеризация отвержденных отходов.

6. Временное хранение и окончательное захоронение.

Достоинства битума как материала для иммобилизации:

1) слабое выщелачивание водой;

2) пригодность для любых химических форм САО (соли, гидроксиды, органические соединения);

3) хорошая радиационная стойкость.

К *недостаткам* битума следует отнести его горючесть (продукт переработки нефти) и размягчение при нагреве (асфальт).

Альтернативным вариантом иммобилизации САО и НАО является их цементирование. Бетон, как материал для иммобилизации отходов, имеет следующие достоинства:

1) дешевизна и простота обращения;

2) высокая радиационная стойкость;

3) высокая теплопроводность;

4) бетон не горюч и не размягчается при нагреве.

Однако бетон не обладает достаточной химической стойкостью к воздействию воды. Ниже приведены сравнительные данные по скорости выщелачивания различных материалов водой.

1. Стекло: 10^{-8} – 10^{-7} г/(см²·сут.).
2. SYNROC: 10^{-6} – 10^{-5} г/(см²·сут.).
3. Битум: 10^{-6} – 10^{-4} г/(см²·сут.).
4. Бетон: 10^{-3} – 10^{-2} г/(см²·сут.).

Поэтому стекла и SYNROC-материалы преимущественно используются для иммобилизации ВАО, а битум и бетон – для иммобилизации САО и НАО.

Химическая стойкость бетона может быть повышена за счет пропитки цемента органическими мономерами. При затвердевании такой цементной смеси мономеры полимеризуются, и химическая стойкость бетонных блоков существенно повышается.

1.5. Переработка газообразных РАО

Негативные свойства газообразных РАО:

- 1) внешнее облучение самими РАО и осевшими радиоактивными веществами;
- 2) внутреннее облучение при вдыхании воздуха, загрязненного газообразными РАО или аэрозолями;
- 3) химическая токсичность газообразных РАО при попадании в организм человека.

В состав газообразных РАО входят:

- 1) радиоактивные благородные газы (изотопы Кг и Хе);
- 2) радиоактивные изотопы йода;
- 3) радиоактивный изотоп углерода ¹⁴С;
- 4) тритий.

После выдержки ОЯТ в течение 3–5 лет в нем остаются только сравнительно долгоживущие радионуклиды:

- 1) из благородных газов – только ⁸⁵Кг ($T_{1/2} = 10.7$ лет);
- 2) из изотопов йода – только ¹²⁹И ($T_{1/2} = 1.6 \cdot 10^7$ лет);
- 3) изотоп углерода ¹⁴С ($T_{1/2} = 5730$ лет);
- 4) тритий ³Н ($T_{1/2} = 12.3$ года).

Удаление ⁸⁵Кг

Для удаления ⁸⁵Кг используются следующие методы:

- 1) низкотемпературная адсорбция на активированном угле и молекулярных ситах;

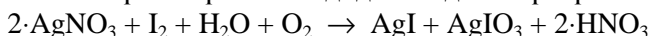
- 2) адсорбция в жидком углекислом газе CO₂;
- 3) адсорбция жидкими фторуглеродами.

Удаление ¹²⁹I

В газообразных РАО йод может находиться в виде молекулярного йода I₂, йодидов (I⁻) и йодатов (IO₃⁻). Для удаления радионуклида ¹²⁹I используются следующие методы:

1) поглощение йода щелочами или азотной кислотой в скрубберах (установки для химического взаимодействия жидких и газообразных веществ с целью их очистки), йод окисляется до твердого малорастворимого соединения HI₂O₈;

2) хемосорбция на цеолите (пористый минерал, хороший сорбент), пропитанном нитратом серебра AgNO₃; молекулярный йод связывается в малорастворимом йодиде и йодате серебра:



Удаление ¹⁴C

В газообразных РАО изотоп ¹⁴C содержится в виде оксидов ¹⁴CO или ¹⁴CO₂ в небольших количествах. Радиоизотоп ¹⁴C является продуктом реакции ¹⁴N(*n, p*)¹⁴C на азоте, содержащимся в воздухе, в примесях теплоносителя или конструкционных материалов.

До сих пор не разработаны промышленные методы улавливания ¹⁴CO или ¹⁴CO₂. В лабораторных условиях изучается возможность использования жидких поглотителей ¹⁴C на основе гидроксидов, фторуглеродов и алюмосиликатов. Найдены фторуглероды, которые при низких температурах (от минус 40 до +4 °C) улавливают 99,9 % ¹⁴C.

Удаление трития

В ядерных реакторах тритий образуется в результате нейтронных реакций теплоносителя и примесей конструкционных материалов (водород, литий). Кроме того, тритий может образовываться при тройном делении ядерного топлива, т.е. при очень редком процессе деления, когда образуются не два, а три осколка. Поскольку тройное деление происходит с очень малой вероятностью, количество трития в топливе не превосходит 2·10⁻⁵ вес. %.

Тритий обладает следующими свойствами.

1. Тритий является источником мягкого β -излучения.

2. Тритий легко вступает в реакции изотопного обмена с обычной водой, образуя тритиевую воду НТО или T_2O при переработке ОЯТ. Поэтому тритий присутствует во всех жидких РАО процесса химической переработки ОЯТ.

Для выделения трития используются следующие методы:

1) волокисидация ОЯТ перед растворением (окисление в атмосфере кислорода при повышенной температуре; $t = 450\text{--}650\text{ }^\circ\text{C}$); присутствие влаги в газовой фазе приводит к связыванию трития в тритиевой воде;

2) улавливание тритиевой воды цеолитом;

3) промывка органической фазы ТБФ после водной экстракции.

Обработка аэрозолей и пыли

Аэрозоли и пыль – газообразные материалы с содержанием твердых и жидких частиц в диапазоне $10^{-2}\text{--}10\text{ г/м}^3$. Для их обработки применяются следующие методы:

1) гравитационное осаждение в пылеуловительных камерах;

2) центробежное выделение твердых и жидких частиц из газа при спиральном движении потока в циклонах (поток газа вводится в циклоны под углом к оси цилиндра, и частицы аэрозолей и пыли, сталкиваясь со стенками цилиндра, выпадают из потока);

3) электростатическое осаждение (придание частицам заряда и осаждение в электрическом поле);

4) промывка газов в скрубберах;

5) ультрафильтрация с использованием специальных фильтров на основе стекловолокна и полимеров, с применением металлотканевых и металлокерамических фильтров.

1.6. Переработка твердых РАО

В состав твердых РАО входят:

1) детали оборудования, строительные материалы, мусор, спецодежда;

2) ионообменные смолы и фильтры;

3) нерастворившиеся оболочки твэлов;

4) осадки на стенках оборудования.

Для переработки твердых РАО применяются два метода:

1) уменьшение объема РАО:

а) сжигание с уменьшением объема РАО в 10–100 раз;

б) прессование с уменьшением объема до 10 раз;

2) контейнеризация и захоронение.

Особая технология используется при переработке оболочек твэлов. Их радиоактивность обусловлена следующими процессами:

1) образование радионуклидов в металлах, входящих в состав оболочек, под действием нейтронного облучения;

2) диффузия актинидов и ПД из топлива в оболочку твэла, т.е. в поверхностном слое оболочки могут находиться α -активные актиниды;

3) остатки нерастворившегося топлива на поверхности оболочек.

Этапы обработки оболочек твэлов:

1) временное хранение в бетонных бункерах под слоем воды (из-за возможности возгорания циркония на воздухе);

2) химическая обработка плавиковой кислотой HF при повышенной температуре (550–600 °C); на поверхности образуются рыхлые пленки, содержащие α -активные трансураниевые изотопы, затем эти пленки удаляются растворением в кислотных или щелочных составах;

3) плавление оболочек в слитки в электропечах;

4) контейнеризация слитков и захоронение.

1.7. Дезактивация оборудования РХЗ

Еще один вид твердых РАО представляют собой осадки, накапливающиеся на внутренних поверхностях резервуаров и трубопроводов РХЗ. Осадки образуются на стенках оборудования в результате следующих процессов.

1. *Сорбция радионуклидов из растворов ОЯТ.* В результате внутри оборудования создаются радиационные поля с мощностью дозы до 10^6 Р/ч. Радиоактивность стенок постепенно становится сопоставимой и даже большей, чем активность растворов ОЯТ.

2. *Постепенное насыщение стенок радионуклидами.* Если стенки – чистые, то на выходе из контуров активность раствора ниже,

чем на входе. При испытаниях оборудования, через которое прокачивались слабоконцентрированные растворы плутония, плутоний практически не было на выходе. Он весь оседал на стенках. Постепенно стенки насыщались, и потери сокращались. При повышении содержания ОЯТ в растворах должно пройти некоторое время, пока стенки насытятся до нового, более высокого уровня.

3. *Закалка осадков в результате колебаний теплофизических и физико-химических условий переработки.* На стенках остаются наиболее устойчивые соединения РАО по механической прочности, по химической и термодинамической устойчивости.

Наиболее важные осадки – цирконаты и силикаты, склонные к полимеризации и образованию коллоидных систем (соли кремниевой кислоты H_2SiO_3 , оксиды кремния, магния, кальция и щелочных металлов).

Основным механизмом дезактивации оборудования является десорбция осадков со стенок до уровней, допускающих ремонт или демонтаж оборудования, т.е. перевод твердых РАО в жидкую форму с последующей обработкой по известным технологиям. Для этого проводится многоэтапная промывка загрязненного оборудования. Сначала используется слабый раствор азотной кислоты HNO_3 для очистки стенок от остатков растворов ОЯТ. На следующем этапе проводится чередующаяся обработка поверхностей сначала составами, ослабляющими и разрыхляющими осадки, а затем составами, растворяющими осадки.

Часто применяется окислительно-восстановительный метод, включающий чередование обработки поверхностей щелочными и кислотными растворами. Щелочная обработка приводит к разложению труднорастворимых солей и гидратации оксидов, что превращает плотные соли в рыхлые гидроксиды. Кислотная обработка приводит к растворению осадков и выносу их из оборудования в виде жидких РАО.

Контрольные вопросы

1. Назовите основные компоненты РАО.
2. Назовите основные категории РАО.
3. Перечислите основные стадии переработки высокоактивных РАО.
4. Перечислите требования, предъявляемые к геологическим формациям для захоронения РАО.
5. Какие геологические формации рассматриваются как кандидаты для подземного захоронения РАО? Перечислите их достоинства и недостатки.
6. В чем состоят основные проблемы захоронения РАО в хранилище «Yucca Mountain» (США)?
7. Перечислите основные стадии переработки средне- и низкоактивных РАО.
8. Какие материалы используются для отверждения РАО? Расставьте их в порядке приоритета и обоснуйте этот порядок.
9. Перечислите основные стадии переработки твердых РАО.
10. Какая технология применяется для дезактивации оборудования, используемого при переработке ОЯТ?

Глава 2

ФИЗИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ ОБЕЗВРЕЖИВАНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

2.1. Введение

Функционирование ядерной энергосистемы сопровождается образованием РАО, основными типами которых являются:

1. продукты деления (ПД) и младшие актиниды (МА), накапливающиеся в топливе энергетических реакторов;

2. активированные конструкционные материалы энергетических реакторов (материалы оболочек твэлов и ТВС, графит, внутриреакторные конструкции, корпус реактора и т.д.).

Существующие технологии обращения с такими ядерными материалами предполагают их переработку по следующей схеме:

1. иммобилизация РАО в материалах, устойчивых к воздействию окружающей среды (стеклование, введение в состав минералоподобных веществ, битуминизация, цементация);

2. контейнеризация полученных материалов;

3. временное хранение и окончательное захоронение в геологических формациях.

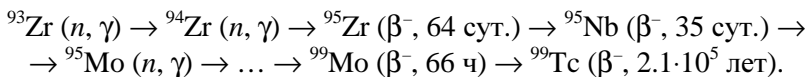
Эти технологии реализуют пассивную стратегию защиты человека и окружающей среды путем создания многочисленных (по меньшей мере, четырех) инженерных барьеров длительного действия (инертные матрицы, стальные контейнеры, подземные хранилища на большой глубине, стабильные геологические породы) на пути проникновения РАО из мест захоронения в биосферу.

Существует альтернативный подход к обращению с РАО, реализующий активную стратегию обезвреживания долгоживущих радионуклидов путем превращения их в короткоживущие или стабильные изотопы. Такое превращение часто называют *трансмутацией*. Трансмутация радионуклидов может быть осуществлена путем их облучения потоками элементарных частиц в специализированных ядерных установках (трансмутаторах), а также в энергетических ядерных установках, как их побочная функция. Расчетно-теоретические оценки показали, что на сегодняшний день наиболее эффективной представляется трансмутация под действием нейтронного облучения (нейтронная трансмутация).

Рассмотрим некоторые примеры нейтронной трансмутации долгоживущих радионуклидов из состава ПД.

1. Радионуклид ^{93}Zr является долгоживущим продуктом деления (ДПД) с периодом полураспада $T_{1/2} = 1.5 \cdot 10^6$ лет. Бета-распад ^{93}Zr не сопровождается γ -излучением.

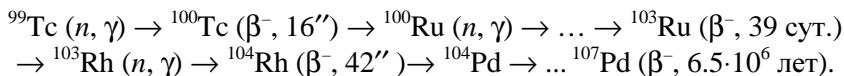
Если ^{93}Zr поместить в нейтронное поле, то он станет начальным изотопом следующей цепочки изотопных переходов:



В результате нейтронного облучения и последующей выдержки долгоживущий радионуклид ^{93}Zr превращается в стабильные изотопы молибдена (^{95}Mo , ^{96}Mo , ^{97}Mo , ^{98}Mo). Только в конце цепочки появляется новый долгоживущий радионуклид ^{99}Tc , который может накопиться в облученном материале, но в крайне незначительном количестве. Если же предположить непрерывную химическую очистку от продуктов трансмутации, то никаких новых долгоживущих радионуклидов образовываться не будет, а цепочка трансмутации заканчивается быстрым распадом ^{95}Zr .

2. Упомянутый выше радионуклид ^{99}Tc также является ДПД с периодом полураспада $T_{1/2} = 2.1 \cdot 10^5$ лет. Это единственный элемент ДПД, не содержащий других изотопов, кроме ^{99}Tc , т.е. осколочный технеций – это элемент, состоящий на 100 % из ^{99}Tc .

Если ^{99}Tc поместить в нейтронное поле, то он станет начальным изотопом следующей цепочки изотопных переходов:



В результате нейтронного облучения и последующей выдержки долгоживущий радионуклид ^{99}Tc превращается в стабильные изотопы рутения, родия и палладия (^{100}Ru , ^{101}Ru , ^{102}Ru , ^{103}Rh , ^{104}Pd , ^{105}Pd , ^{106}Pd). И только в конце цепочки появляется новый долгоживущий радионуклид ^{107}Pd ($T_{1/2} = 6.5 \cdot 10^6$ лет), который также будет содержаться в облученном материале, но опять же в крайне незначительном количестве. И в этом случае, если предположить непре-

рывную химическую очистку облучаемого материала от продуктов трансмутации, то никаких новых долгоживущих радионуклидов образовываться не будет, а цепочка трансмутации закончится быстрым распадом ^{100}Tc .

Вопросам нейтронной трансмутации радионуклидов из состава ДПД и будут посвящены следующие разделы учебного пособия.

2.2. Основные уравнения нейтронной трансмутации

2.2.1. Темп накопления и изотопный состав ПД

Для начала рассмотрим ядерную энергетическую систему (ЯЭС) без нейтронных трансмутаторов. В топливе ядерных реакторов ЯЭС происходят процессы, которые связаны с ПД.

1. Образуются два или три ПД при каждом делении (деление с образованием трех ПД имеет сравнительно малую вероятность).

2. Образовавшиеся ПД участвуют в цепочках изотопных переходов, включающих реакции радиационного захвата нейтронов и естественный распад (в основном β^- и β^+ -распад). Таким образом, какая-то ограниченная трансмутация ПД происходит в самом реакторе, но общий баланс процессов образования и уничтожения ПД складывается в пользу их накопления.

Оценим темп накопления ПД в АЭС. Одна тонна ^{235}U содержит следующее количество ядер ^{235}U :

$$N_{235} = \frac{10^6 \text{ г}}{235 \text{ г/моль}} \cdot 6 \cdot 10^{23} \text{ яд. / моль} = 2.56 \cdot 10^{27} \text{ яд.}$$

Если все эти ядра разделятся нейтронами, то, во-первых, образуется одна тонна ПД, и, во-вторых, выделится тепловая энергия (по 200 МэВ на каждое деление), т.е.

$$E (1 \text{ т } ^{235}\text{U}) = 2.56 \cdot 10^{27} \text{ яд.} \cdot 200 \text{ МэВ} = 5.12 \cdot 10^{29} \text{ МэВ.}$$

Известно, что $1 \text{ МэВ} = 1.6 \cdot 10^{-19} \text{ МВт}\cdot\text{с}$. Тогда

$$E(1 \text{ т } ^{235}\text{U}) = 5.12 \cdot 10^{29} \text{ МэВ} \cdot 1.6 \cdot 10^{-19} \text{ МВт} \cdot \text{с} / \text{МэВ} = \\ = 8.2 \cdot 10^{10} \text{ МВт} \cdot \text{с} = 0.95 \cdot 10^6 \text{ МВт} \cdot \text{сут.} \approx 1000 \text{ ГВт} \cdot \text{сут.}$$

Итак, одна тонна ПД накапливается при выделении тепловой энергии 1000 ГВт·сут. Если перевести тепловую энергию в электрическую, используя типичный коэффициент полезного действия АЭС (36–37 %), то 1000 ГВт·сут. превратится в 360–370 ГВт(э)·сут., или примерно 1 ГВт(э)·год. Таким образом, темп накопления ПД округленно составляет 1 т ПД на 1 ГВт(э) в год.

Что касается изотопного состава ПД, то в момент выгрузки из реактора это примерно 200 изотопов 36 элементов. Многие из этих изотопов радиоактивны и распадаются с периодами полураспада от миллисекунд до миллионов лет. После извлечения ОЯТ из реактора, в процессе его длительной выдержки (3–10 лет) перед переработкой или окончательным захоронением, все нейтронные реакции в топливе, естественно, прекращаются; продолжают осуществляться лишь реакции радиоактивного распада. Через 150 сут. выдержки остаются примерно 130 изотопов 34 элементов. Из них 85 % по массе – стабильные изотопы ($T_{1/2} \geq 10^{11}$ лет) и только 15 % – радиоактивные. Радиоактивные ПД включают 28 изотопов 20 элементов, которые можно условно разделить на три группы: короткоживущие (КрПД, $T_{1/2} \leq 1$ год, 12 изотопов 7 элементов), среднеживущие (СПД, с $T_{1/2}$ от одного года до 87 лет (^{151}Sm), 9 изотопов 6 элементов) и долгоживущие (ДПД, $T_{1/2} \geq 6.5 \cdot 10^4$ лет (^{79}Se), 7 изотопов 7 элементов – ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{126}Sn , ^{129}I и ^{135}Cs). По массе КрПД составляют около 1 %, СПД – 6 % и ДПД – 8 %. Среди радиоактивных ПД нет изотопов с $T_{1/2}$ дольше, чем 87 лет (^{151}Sm), и короче, чем 65 тысяч лет (^{79}Se).

После выдержки ОЯТ все ПД могут быть извлечены из него и подвергнуты трансмутации в специализированных ядерных установках с соответствующим образом подобранным нейтронным спектром и плотностью потока нейтронов.

2.2.2. Уравнения изотопной трансмутации ДПД

Рассмотрим вопросы трансмутации ДПД, т.е. ПД с периодами полураспада дольше, чем 65 тыс. лет. Ясно, что захоронение ДПД в

геологических формациях вплоть до существенного снижения уровня их активности и радиотоксичности не может обеспечить безопасность окружающей среды и биосферы, поскольку вряд ли возможно гарантировать сохранность контейнеров ДПД на столь длительный срок. Поэтому трансмутация ДПД в короткоживущие или стабильные изотопы является единственным надежным методом их обезвреживания.

Накопление изотопов ДПД в ЯЭС без трансмутаторов может быть описано уравнением:

$$\frac{dG_i}{dt} = Y_i \cdot N_f; \quad G_i(0) = 0; \quad (2.1)$$

решение которого: $G_i(t) \approx Y_i \cdot N_f \cdot t$, где $G_i(t)$ – количество ядер i -го изотопа ДПД в момент времени t ; Y_i – количество ядер i -го изотопа ДПД, содержащееся в облученном топливе, в расчете на одно деление в реакторе; N_f – скорость реакции деления в реакторах АЭС; t – время функционирования ЯЭС.

Видно, что масса ДПД пропорциональна мощности ЯЭС, т.е. скорости реакции деления тяжелых ядер, и времени.

Предположим, что в некий момент времени Δt_0 в составе ЯЭС появились трансмутаторы ДПД. Тогда у канала накопления ДПД в ядерных реакторах появляется конкурент, поскольку начинает действовать канал уничтожения ДПД в трансмутаторах. Уравнение для количества ядер изотопа i из состава ДПД $G_i(t)$ в ЯЭС с трансмутаторами может быть записано в следующем виде:

$$\begin{aligned} \frac{dG_i}{dt} &= Y_i \cdot N_f - \sigma_i \cdot \Phi \cdot G_i; \\ G_i(\Delta t_0) &= Y_i \cdot N_f \cdot \Delta t_0, \end{aligned} \quad (2.2)$$

где σ_i – усредненное по энергии микроскопическое сечение нейтронной реакции, используемой для трансмутации изотопа ДПД; как правило, это реакция радиационного захвата нейтронов; Φ – плотность потока нейтронов в трансмутаторе; $G_i(\Delta t_0)$ – количество ядер ДПД, накопленное ЯЭС к моменту начала трансмутации.

Уравнения (2.1) и (2.2) не содержат члена, описывающего радиоактивный распад ДПД, поскольку постоянная распада $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ для радионуклидов с периодами полураспада в тысячи и миллионы лет пренебрежимо мала по сравнению с $(\sigma_i \cdot \Phi)$. Произведение $(\sigma_i \cdot \Phi)$ называют *скоростью трансмутации* в расчете на одно ядро, а обратную величину – *эффективным временем жизни* долгоживущего радионуклида в нейтронном поле:

$$T_{\text{эф},i} = 1 / (\sigma_i \cdot \Phi).$$

Предполагая, что скорость образования ДПД и скорость его трансмутации не зависят от времени, решение уравнения (2.2) можно записать в следующем виде:

$$G_i(t) = G_{i,eq} + [G_i(\Delta t_0) - G_{i,eq}] \cdot \exp\{-\sigma_i \cdot \Phi \cdot (t - \Delta t_0)\} \quad (2.3)$$

для $t \geq (\Delta t_0)$.

Здесь $G_{i,eq}$ – равновесное количество ядер ДПД, устанавливающееся в ЯЭС с трансмутаторами. Значение равновесного количества ядер радионуклида $G_{i,eq}$ может быть определено из условия равенства нулю левой части уравнения (2.2). Действительно, режим равновесной трансмутации характеризуется балансом между процессом образования ДПД в реакторах АЭС и процессом их уничтожения в трансмутаторах. При выходе на этот режим ядерная энергосистема обретает новое качество: в ней прекращается накопление ДПД. Они продолжают образовываться в ядерных реакторах, но темп их производства полностью компенсируется темпом их уничтожения в трансмутаторах. Количество ДПД в такой системе остается неизменным. Возникает задача – сделать это количество ДПД как можно более низким, а выход на равновесную трансмутацию – как можно более быстрым.

Итак, приравнявая нулю левую часть уравнения (2.2), можно найти величину равновесного количества изотопа ДПД:

$$G_{i,eq} = \frac{Y_i \cdot N_f}{\sigma_i \cdot \Phi}. \quad (2.4)$$

Анализируя решение (2.3) уравнения (2.2), можно сделать следующие выводы.

1. В общем случае выход на режим равновесной трансмутации является асимптотическим, т.е. количество изотопа ДПД $G_i(t)$ приближается к своему равновесному значению $G_{i,eq}$ сверху или снизу, в зависимости от знака разности $(G_i(\Delta t_0) - G_{i,eq})$, по мере уменьшения до нуля экспоненты с показателем $(-\sigma_i \cdot \Phi \cdot (t - (\Delta t_0)))$.

2. В единственном случае, когда количество ядер ДПД, накопленное ЯЭС к началу трансмутации, равно равновесному количеству ДПД в трансмутаторе, т.е. $G_i(\Delta t_0) = G_{i,eq}$, равновесный режим установится сразу с началом трансмутации. Сопоставляя уравнение (2.1) для количества ДПД, производимого реакторами АЭС, с уравнением (2.4) для равновесного количества ДПД, можно видеть, что время накопления равновесного количества ДПД, а следовательно и наилучшее время начала трансмутации с точки зрения кратчайшего выхода на равновесный режим, равно эффективному времени жизни радионуклида в нейтронном поле трансмутатора:

$$T_{eq} = T_{\sigma\Phi} = 1 / (\sigma_i \cdot \Phi).$$

2.3. Условия осуществления изотопной трансмутации ДПД

По крайней мере, два условия обязательно должны быть выполнены для осуществления нейтронной трансмутации ДПД. Первое из них связано с нейтронным балансом трансмутатора. В нем должен быть некоторый избыток нейтронов, пригодных для использования в трансмутационных целях. В ядерном реакторе это нейтроны утечки или нейтроны, поглощаемые воспроизводящим материалом (^{238}U или ^{232}Th) для накопления вторичного топлива (плутония или ^{233}U). Например, в быстрых реакторах-размножителях с расширенным воспроизводством плутония часть ^{238}U может быть заменена на ДПД. Тогда нейтроны, ранее поглощавшиеся ^{238}U для производства плутония, теперь могут быть использованы для трансмутации ДПД.

Традиционно выход изотопов ДПД измеряется количеством ядер, образующихся при одном делении. Следовательно, количест-

во нейтронов $\Delta N_{\text{тр}}$, требующееся для трансмутации, в расчете на одно деление должно быть, по крайней мере, не меньше количества ядер ДПД, образующихся в этом делении, т.е. $\Delta N_{\text{тр}} \geq Y_i$.

Но при захвате нейтронов изотоп ДПД может переходить в другие изотопы и продукты трансмутации, которые тоже будут поглощать нейтроны. Непрерывная химическая очистка от продуктов трансмутации позволяет снизить потребности в нейтронах. Тогда минимальное количество нейтронов, необходимое для трансмутации ДПД, равно его выходу, умноженному на количество изотопных переходов до ближайшего короткоживущего изотопа. После распада последнего образуется изотоп другого химического элемента, удаляемого непрерывной очисткой. Из цепочки трансмутации ^{93}Zr видно, что захват нейтрона в ^{93}Zr превращает его в стабильный ^{94}Zr , еще один захват нейтрона превращает ^{94}Zr в короткоживущий изотоп ^{95}Zr , быстро распадающийся в стабильный изотоп ^{95}Mo . Из этого следует, что минимальный расход нейтронов равен двум выходам ^{93}Zr . Что касается второго примера, то минимальное количество нейтронов, необходимое для трансмутации ^{99}Tc , равно его выходу, поскольку всего один захват нейтрона в ^{99}Tc сразу переводит его в короткоживущий изотоп ^{100}Tc , быстро распадающийся в стабильный изотоп ^{100}Ru .

Второе условие нейтронной трансмутации связано с ее эффективностью. Как было показано ранее, одной из главных целей трансмутации является выход на равновесный режим, когда в ЯЭС прекращается накопление ДПД. Время выхода на равновесный режим T_{eq} определяется обратной величиной скорости трансмутации ($\sigma_i \cdot \Phi$), т.е. зависит *только* от параметров нейтронного поля трансмутатора: от его спектра, определяющего значение сечения трансмутации, и плотности потока нейтронов. Если нейтронное поле трансмутатора таково, что время достижения равновесной трансмутации составляет сотни или тысячи лет, то такую трансмутацию нельзя назвать эффективной. Она только снижает темп накопления ДПД в период выхода на равновесие (сотни или тысячи лет), а не прекращает этот процесс.

Не следует также забывать, что время достижения равновесной трансмутации соответствует времени накопления равновесного количества ДПД в ЯЭС. Из этого следует, что время достижения

равновесной трансмутации должно быть равно времени функционирования ЯЭС плюс некоторое время на разработку и реализацию проектов нейтронных трансмутаторов. Поэтому трансмутация может быть признана эффективной, если время выхода на равновесный режим не превышает 60–70 лет с учетом функционирования мировой ядерной энергетики около 40 лет.

Итак, технология трансмутации ДПД может быть признана эффективной только в том случае, если она достаточно богата нейтронами, а параметры нейтронного поля в трансмутаторах таковы, что равновесный режим достигим в обозримом будущем.

2.4. Потребление нейтронов при изотопной трансмутации ДПД

Рассмотрим потенциальные возможности использования современных технологий производства нейтронов (ядерные реакторы, электроядерные и термоядерные установки) для нейтронной трансмутации ДПД.

В число ДПД входят семь радионуклидов: ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{126}Sn , ^{129}I и ^{135}Cs . Предполагая непрерывную химическую очистку изотопов ДПД от продуктов их нейтронной трансмутации (т.е. от изотопов других элементов), цепочки изотопных переходов для этих радионуклидов можно записать в следующем укороченном виде:

- 1) $^{79}\text{Se} (n, \gamma) \rightarrow ^{80}\text{Se} (n, \gamma) \rightarrow ^{81}\text{Se} (\beta, 18.5') \rightarrow ^{81}\text{Br}$;
- 2) $^{93}\text{Zr} (n, \gamma) \rightarrow ^{94}\text{Zr} (n, \gamma) \rightarrow ^{95}\text{Zr} (\beta, 64 \text{ сут.}) \rightarrow ^{95}\text{Nb} (\beta, 35 \text{ сут.}) \rightarrow ^{95}\text{Mo}$;
- 3) $^{99}\text{Tc} (n, \gamma) \rightarrow ^{100}\text{Tc} (\beta, 16'') \rightarrow ^{100}\text{Ru}$;
- 4) $^{107}\text{Pd} (n, \gamma) \rightarrow ^{108}\text{Pd} (n, \gamma) \rightarrow ^{109}\text{Pd} (\beta, 13.5 \text{ ч}) \rightarrow ^{109}\text{Ag}$;
- 5) $^{126}\text{Sn} (n, \gamma) \rightarrow ^{127}\text{Sn} (\beta, 2.1 \text{ ч}) \rightarrow ^{127}\text{Sb} (\beta, 3.8 \text{ сут.}) \rightarrow ^{127}\text{Te} (\beta, 9.4 \text{ ч}) \rightarrow ^{127}\text{I}$;
- 6) $^{129}\text{I} (n, \gamma) \rightarrow ^{130}\text{I} (\beta, 12.3 \text{ ч}) \rightarrow ^{130}\text{Xe}$;
- 7) $^{135}\text{Cs} (n, \gamma) \rightarrow ^{136}\text{Cs} (\beta, 13 \text{ сут.}) \rightarrow ^{136}\text{Ba}$.

Конечные изотопы цепочек являются стабильными изотопами других элементов и могут быть сравнительно легко отделены химическими методами.

В табл. 2.1 приведены выходы указанных ранее радионуклидов в энергетических легководных реакторах на урановом оксидном топливе (UOX) и на смешанном уран-плутониевом оксидном топливе (MOX), а также минимальные расходы нейтронов на трансмутацию (все в расчете на одно деление в ядерном реакторе).

Таблица 2.1

Выход ДПД и минимальный расход нейтронов на трансмутацию

Изотоп	$T_{1/2}$, г.	Выход, яд./дел.		Расход нейтронов, нейтр./дел.	
		UOX	MOX	UOX	MOX
⁷⁹ Se	$6.5 \cdot 10^4$	0.00040	0.00034	0.0008	0.00068
⁹³ Zr	$1.5 \cdot 10^6$	0.0334	0.0225	0.0668	0.0450
⁹⁹ Tc	$2.1 \cdot 10^5$	0.051	0.049	0.051	0.049
¹⁰⁷ Pd	$6.5 \cdot 10^6$	0.012	0.031	0.024	0.062
¹²⁶ Sn	10^5	0.0009	0.0016	0.0009	0.0016
¹²⁹ I	$1.6 \cdot 10^7$	0.0087	0.011	0.0087	0.011
¹³⁵ Cs	$2.3 \cdot 10^6$	0.019	0.038	0.019	0.038
Всего	–	0.125	0.153	0.171	0.207

Видно, что для трансмутации ДПД требуется выделить как минимум 0.17–0.21 нейтрона из нейтронов, образующихся в топливе при одном делении. А каковы возможности современных ядерных технологий (ядерные реакторы, электро- и термоядерные установки) по производству нейтронов для трансмутации ДПД?

В табл. 2.2 приведены данные по нейтронному балансу для типичных энергетических реакторов (легководный тепловой реактор (ТР) типа ВВЭР-1000 и быстрый реактор (БР) с натриевым теплоносителем типа БН-600; оба на MOX-топливе).

Баланс нейтронных реакций в ядерных реакторах

Нейтронные реакции	ТР	БР
Производство нейтронов деления	2.90	2.90
Поглощение в (n, f) -реакциях	1.00	1.00
Поглощение в (n, γ) -реакциях ^{235}U и изотопов плутония	0.90	0.30
Поглощение в (n, γ) -реакции воспроизводящего изотопа ^{238}U	0.62	1.35
Поглощение в (n, γ) -реакциях других материалов реактора	0.37	0.24
Утечка нейтронов	0.01	0.01

Видно, что доля нейтронов, поглощаемых воспроизводящим изотопом ^{238}U , в БР существенно выше, чем в ТР. Даже если БР будет работать в режиме самообеспечения топливом, т.е. если один нейтрон из полного количества нейтронов деления будет поглощаться в ^{238}U и превращать его в ^{239}Pu , то и в этом случае примерно 0.35 нейтрона может быть использовано для трансмутации ДПД. Нейтронный баланс ТР показывает, что здесь режим самообеспечения топливом в принципе не достижим. В ТР нейтронов не хватает не только на трансмутацию ДПД, но и на собственные нужды по восполнению выгорающего топлива.

Однако существуют и другие технологии производства нейтронов, которые можно использовать для трансмутации. Это электроядерные (ЭЛЯУ) и термоядерные (ТЯУ) установки.

Принцип генерации нейтронов в ЭЛЯУ основан на бомбардировке тяжелой мишени (свинец или висмут) пучком ускоренных протонов. При этом в мишени инициируются сложные каскады ядерных реакций, сопровождающихся выделением большого количества нейтронов (30–50 и более нейтронов в расчете на один протон). Для оценки потенциала ЭЛЯУ по производству нейтронов будем считать, что энергия, необходимая для ускорения протонов, получается на ядерном реакторе АЭС. Зная энергию, выделяющуюся при одном делении, и коэффициенты преобразования этой энергии в энергию ускоренных протонов, можно оценить количе-

ство нейтронов, генерируемых в облучаемой мишени, в расчете на одно деление в реакторе. Итак, при одном делении в реакторе выделяется тепловая энергия E_f , которая с КПД АЭС ($\eta_{\text{АЭС}}$) превращается в электрическую, затем передается ЭЛЯУ и с КПД ускорителя ($\eta_{\text{уск}}$) превращается в энергию ускоренных протонов. Если необходимо ускорить протоны до энергии E_p , то их количество N_p равно:

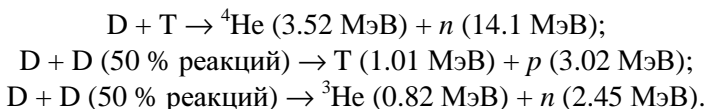
$$N_p = \frac{E_f \cdot \eta_{\text{АЭС}} \cdot \eta_{\text{уск}}}{E_p} \quad (\text{протонов на деление}).$$

Обозначим через $C_{n/p}$ количество нейтронов, генерируемых в мишени одним протоном. Тогда количество нейтронов, пригодных для трансмутации ДПД в ЭЛЯУ, в расчете на одно деление в ядерном реакторе можно записать в следующем виде:

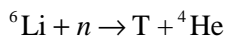
$$\Delta N_{\text{ТР}} = N_p \cdot C_{n/p} = \frac{E_f \cdot \eta_{\text{АЭС}} \cdot \eta_{\text{уск}} \cdot C_{n/p}}{E_p} \quad (\text{нейтронов на деление}).$$

Теперь оценим это количество нейтронов, используя известные величины энергии деления ($E_f = 200$ МэВ), КПД АЭС и протонных ускорителей ($\eta_{\text{АЭС}} \approx 34\%$, $\eta_{\text{уск}} \approx 50\%$). Что касается $C_{n/p}$, т.е. количества нейтронов, образуемых одним ускоренным протоном, то имеются экспериментальные данные, согласно которым в больших свинцовых мишенях, бомбардируемых протонами с энергией $E_p = 1600$ мэВ, высвобождается примерно 55 нейтр. в расчете на один протон. В таких предположениях оказывается, что $\Delta N_{\text{ТР}} \approx 1$ нейтр./дел. Это существенно больше, чем в БР. Однако БР производит энергию, а ЭЛЯУ ее потребляет.

В ТЯУ нейтроны образуются в реакциях синтеза изотопов водорода (дейтерия и трития):



В равнокомпонентной дейтерий-тритиевой плазме образуется один нейтрон с энергией 14.1 МэВ в расчете на одну (D, T)-реакцию. Такие нейтроны, обладающие энергией выше порога (n, xn)-реакций тяжелых элементов, могут быть размножены в этих реакциях. Например, слой свинца, расположенный сразу за первой стенкой плазменной камеры, способен размножить высокоэнергетичные нейтроны (D, T)-реакции с коэффициентом ~ 1.5 . Однако для самообеспечения ТЯУ тритием необходимо потратить один нейтрон на его воспроизводство (если с запасом, то 1.05 нейтр., учитывая радиоактивный распад трития и его потери при переработке). Тритий может быть воспроизведен в литийсодержащих зонах бланкета ТЯУ через реакцию:



Таким образом, в дейтерий-тритиевой плазме можно получить примерно 0.45 нейтр. в расчете на одну (D, T)-реакцию.

В чисто дейтериевой плазме образуется в среднем 0.5 нейтр. с энергией 2.45 МэВ и 0.5 нейтр. с энергией 14.1 МэВ в расчете на одну (D, D)-реакцию (этот тритий, образующийся в одной из (D, D)-реакций, вступает в реакцию с дейтерием и генерирует высокоэнергетичный нейтрон). Такой нейтрон может быть размножен, например, свинцом с коэффициентом ~ 1.5 , а нейтроны с энергией 2.45 МэВ не размножаются свинцом, а только частично поглощаются в нем. Поэтому в дейтериевой плазме можно получить примерно 1.1 нейтр. в расчете на одну (D, D)-реакцию.

Полная энергия $E_{\text{ТЯУ}}$, выделяющаяся в ТЯУ с учетом размножения и поглощения нейтронов в бланкете, примерно одинакова для обоих типов плазмы и составляет около 21 МэВ в расчете на одну термоядерную реакцию, т.е. примерно в 10 раз меньше, чем в одной реакции деления. Если учесть разницу в энергиях, выделяющихся в одной термоядерной реакции и в одной реакции деления, то оказывается, что в термоядерных реакциях, энергетически эквивалентных одному делению, может быть произведено примерно 4.3 нейтр. в (D, T)-плазме и 10.5 нейтр. в (D, D)-плазме. Таким образом, ТЯУ оказываются более богатыми источниками нейтронов

для трансмутации ДПД, чем БР и ЭЛЯУ. Для сравнения – 0.35 нейтр. на деление в БР и 1 нейтр. на деление в ЭЛЯУ против 4–10 нейтр. на деление в ТЯУ.

Зная возможности потенциальных трансмутаторов ДПД (БР, ЭЛЯУ и ТЯУ) по генерации нейтронов, можно оценить количество и мощности этих трансмутаторов, необходимых для обезвреживания ДПД всей ЯЭС. Будем считать, что основу ЯЭС составляют легководные ТР на МОХ-топливе. Как установлено ранее, обезвреживание всех ДПД, производимых такими реакторами, требует, как минимум, 0.21 нейтр. в расчете на одно деление. Мощность ЯЭС определяется скоростью реакции деления в ТР. Те же самые ТР являются и производителями ДПД, которые должны быть трансмутированы в БР, ЭЛЯУ и ТЯУ.

Рассмотрим три варианта компоновки ЯЭС, включающей ТР в качестве основных производителей электроэнергии и ядерные установки – трансмутаторы ДПД (т.е. БР, ЭЛЯУ или ТЯУ):

1. Предположим, что ЯЭС состоит из АЭС с ТР (их мощность, или скорость делений в них, обозначим как $N_{ТР}$ и АЭС с БР-трансмутаторами ДПД (их мощность, или скорость делений в них, обозначим как $N_{БР}$). БР-трансмутаторы должны обезвредить ДПД собственного производства плюс ДПД от некоторого количества ТР. Уравнение нейтронного баланса имеет вид

$$0.35 \cdot N_{БР} = 0.21 \cdot (N_{БР} + N_{ТР});$$

или

$$\epsilon_{БР} = \frac{N_{БР}}{N_{БР} + N_{ТР}} = \frac{0.21}{0.35} = 0.6.$$

Следовательно, в такой ЯЭС 60 % мощностей должны производиться на БР и 40 % – на ТР, т.е. быстрых реакторов должно быть в полтора раза больше, чем тепловых.

2. ЯЭС состоит из АЭС с ТР и ЭЛЯУ-трансмутаторов, энергию для которых производят ТР. Мощность, или скорость делений в ТР, обслуживающих ЭЛЯУ, обозначим как $N_{ЭЛЯУ}$. ЭЛЯУ должны обезвредить изотопы ДПД от обслуживающих ТР плюс ДПД от некоторого количества ТР, не связанных с ЭЛЯУ, т.е.

$$1.0 \cdot N_{\text{ЭЛЯУ}} = 0.21 \cdot (N_{\text{ЭЛЯУ}} + N_{\text{ТР}}).$$

Отсюда легко получить, что доля мощности ТР, идущая на питание ускорителей ЭЛЯУ, равна:

$$\epsilon_{\text{ЭЛЯУ}} = \frac{N_{\text{ЭЛЯУ}}}{N_{\text{ЭЛЯУ}} + N_{\text{ТР}}} = 0.21,$$

т.е. 21 % мощности энергосистемы пойдет на обслуживание ЭЛЯУ и 79 % – на производство коммерческой энергии. При одинаковой мощности ядерных энергоблоков одна ЭЛЯУ-трансмутатор способна обезвредить ДПД от обслуживающего энергоблока и еще от четырех коммерческих энергоблоков.

3. ЯЭС состоит из АЭС с ТР и ТЯУ-трансмутаторов с (D, T)-или (D, D)-плазмой. Пусть $N_{\text{ТЯУ}}$ – скорость термоядерных реакций в ТЯУ. Уравнение баланса нейтронов в системе ТР-ТЯУ может быть записано в виде

$$0.45 \cdot N_{\text{ТЯУ}} = 0.21 \cdot N_{\text{ТР}} \quad \text{для ТЯУ с (D, T)-плазмой;}$$

$$1.10 \cdot N_{\text{ТЯУ}} = 0.21 \cdot N_{\text{ТР}} \quad \text{для ТЯУ с (D, D)-плазмой.}$$

Отсюда легко рассчитать, что отношение $N_{\text{ТР}} / N_{\text{ТЯУ}}$ равно примерно двум для (D, T)-плазмы и пяти для (D, D)-плазмы. Доля мощностей ТЯУ-трансмутаторов в энергосистеме $\epsilon_{\text{ТЯУ}}$ может быть определена следующим образом:

$$\epsilon_{\text{ТЯУ}} = \frac{N_{\text{ТЯУ}} \cdot E_{\text{ТЯУ}}}{N_{\text{ТЯУ}} \cdot E_{\text{ТЯУ}} + N_{\text{ТР}} \cdot E_f} = \frac{1}{1 + \frac{N_{\text{ТР}}}{N_{\text{ТЯУ}}} \cdot \frac{E_f}{E_{\text{ТЯУ}}}}.$$

Используя только что рассчитанные отношения скоростей реакций $N_{\text{ТР}} / N_{\text{ТЯУ}}$ и значения энергий, выделяющихся в реакциях деления ($E_f = 200$ МэВ) и термоядерных реакциях ($E_{\text{ТЯУ}} \approx 21$ МэВ), можно показать, что доля мощностей ТЯУ-трансмутаторов в ЯЭС

составляет примерно 5 % для ТЯУ на (D, T)-плазме и 2 % для ТЯУ на (D, D)-плазме.

2.5. Эффективность изотопной трансмутации ДПД

Ранее уже предлагалось использовать время достижения равновесного режима в качестве критерия оценки эффективности:

$$T_{eq} = \frac{1}{\sigma_i \cdot \phi} \leq 60 - 70 \text{ лет.}$$

В этом случае эффективность трансмутации определяется энергетическим спектром нейтронов, от которого зависит величина сечения трансмутации σ_i , и плотностью потока нейтронов ϕ . Состав зоны трансмутации и мощность нейтронного источника являются ключевыми факторами повышения эффективности трансмутации.

Остановимся на спектральной зависимости микросечений радиационного захвата нейтронов у основных ДПД. По расчетным оценкам, именно эта реакция наиболее подходит для осуществления нейтронной трансмутации.

Итак, если посмотреть на характер энергетической зависимости микросечений (n, γ)-реакции изотопов цезия (она типична и для других изотопов ДПД), то можно выделить три энергетических диапазона (рис. 2.1):

- 1) от 0.01 эВ до примерно 1 эВ – уменьшение сечений;
- 2) от 1 эВ до примерно 10 кэВ – область резонансов;
- 3) более 10 кэВ – продолжение уменьшения сечений.

Таким образом, наилучшие условия для трансмутации обеспечивают термализованные или резонансные спектры. Область высоких энергий мало пригодна для нейтронной трансмутации.

В табл. 2.3 приведены микросечения (n, γ)-реакции из библиотеки JEF-2.2 для основных изотопов ДПД в характерных энергетических областях (тепловые нейтроны, резонансная область, быстрые нейтроны), иллюстрирующие это утверждение.

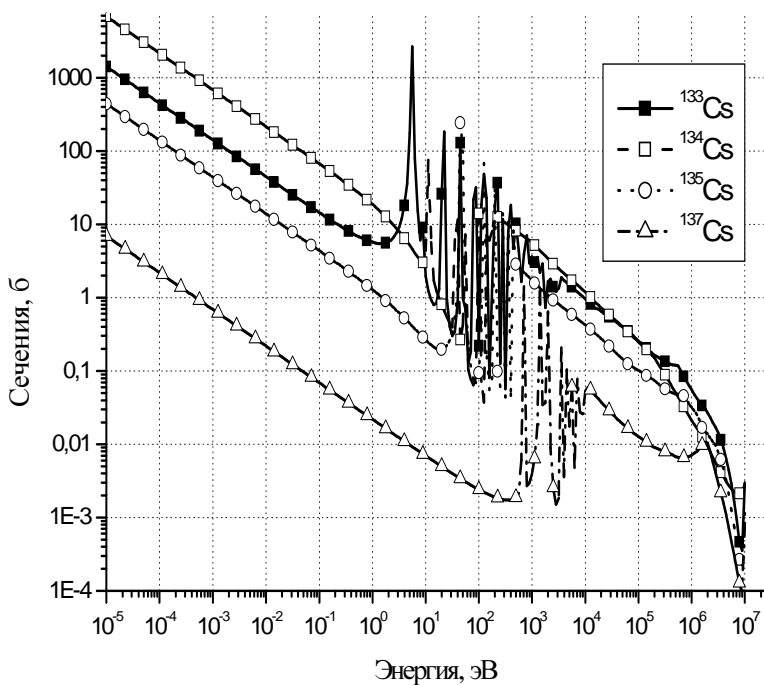


Рис. 2.1. Энергетические зависимости микросечений радиационного захвата нейтронов изотопами цезия

Из этого следует, что для обеспечения эффективной трансмутации ДПД в бланкетах БР, ЭЛЯУ и ТЯУ должны быть созданы области со сравнительно мягким нейтронным спектром. Будет ли это хорошо термализованный или резонансный спектр, зависит от специфики трансмутируемого изотопа ДПД.

Микросечения захвата нейтронов в ДПД

ДПД	Сечение захвата нейтронов, б		
	$E_n = 1$ эВ	Резонансный интеграл	$E_n = 200$ кэВ
⁷⁹ Se	7.95	1.00	0.102
⁹³ Zr	0.28	33.01	0.026
⁹⁹ Tc	4.30	304.2	0.20
¹⁰⁷ Pd	0.31	104.8	0.51
¹²⁶ Sn	0.05	0.16	0.005
¹²⁹ I	4.30	30.28	0.14
¹³⁵ Cs	1.29	61.02	0.074

Отметим, что возможности создания зон с мягким нейтронным спектром в БР жестко ограничены соображениями их эксплуатационной безопасности:

- 1) всплески тепловыделения на границе с зоной трансмутации, содержащей замедлители нейтронов для смягчения спектра;
- 2) возможное проникновение замедлителя нейтронов из зоны трансмутации в активную зону с резким всплеском реактивности.

Бланкеты ЭЛЯУ и ТЯУ в значительной степени более свободны от этих ограничений и предоставляют более широкие возможности по созданию зон со смягченным спектром нейтронов.

Другая составляющая эффективности трансмутации – плотность потока нейтронов (ППН). По расчетным оценкам, ППН, достижимая в зонах трансмутации, составляет $\sim 10^{14}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ для ТР и $\sim 10^{15}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ для бланкетов БР. ППН в бланкете ЭЛЯУ определяется интенсивностью нейтронного источника $Q = I_p / C_{n/p}$, где I_p – ток в пучке ускоренных протонов. В бланкете ТЯУ ППН ограничивается допустимой нейтронной нагрузкой на первую стенку. Наиболее продвинутые проекты ЭЛЯУ рассматривают токи в пучке протонов не более 10 мА, а нейтронная нагрузка на первую стенку составляет 1 МВт/м² в международном проекте демонстрационной ТЯУ ITER. В этих условиях величины ППН сильно зависят от состава зоны трансмутации. По некоторым оценкам, они мо-

гут составлять $\sim 5 \cdot 10^{14}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$, т.е. некое промежуточное значение между ТР и бланкетом БР. Но если в ядерных реакторах трудно повышать ППН из-за ограниченных возможностей теплоотвода, то в бланкетах ЭЛЯУ и ТЯУ, не содержащих делящиеся материалы, можно в перспективе, при увеличении тока в пучке протонов или нагрузки на первую стенку, повысить ППН примерно на порядок.

В табл. 2.4 приведены характерные времена выхода на равновесную трансмутацию изотопов ДПД в ТР и БР (сечения трансмутации взяты из табл. 2.3).

Таблица 2.4

Время выхода на равновесную трансмутацию в ТР и БР

Изотоп	Время до равновесного режима, г.		Эффективность трансмутации
	ТР, 10^{14} нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$	БР, 10^{15} нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$	
^{79}Se	40	310	+
^{93}Zr	1130	1230	-
^{99}Tc	73	160	+
^{107}Pd	1020	62	+
^{126}Sn	6300	6300	-
^{129}I	73	230	+
^{135}Cs	250	430	+ / -

Как видно из этих данных, у радионуклидов ^{79}Se , ^{99}Tc , ^{107}Pd и ^{129}I скорости трансмутации в ядерных реакторах таковы, что время до выхода на равновесный режим удовлетворяет или почти удовлетворяет критерию эффективности. При этом трансмутация изотопов ^{79}Se , ^{99}Tc и ^{129}I приемлема по скорости только в ТР, а трансмутация ^{107}Pd – только в БР. Но ТР не подходят с точки зрения нейтронного баланса. Поэтому изотопы ^{79}Se , ^{99}Tc , ^{129}I и ^{107}Pd могут быть эффективно трансмутированы лишь в бланкете БР с хорошо термализованным или резонансным спектром нейтронов, но со всеми вытекающими из этого негативными последствиями (всплеск тепловыделения на границе с зоной трансмутации,

всплеск реактивности при возможном проникновении замедлителя в активную зону).

Подведем некоторые промежуточные итоги.

1. Рассматривалась нейтронная трансмутация изотопов ДПД (^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs), т.е. предполагалось, что сначала производится химическое разделение РАО с выделением элементов – продуктов деления, а затем и их изотопное разделение.

2. Предполагалось, что трансмутация ДПД осуществляется в непрерывном режиме, т.е. с непрерывным удалением продуктов трансмутации и загрузкой вместо них трансмутируемого ДПД.

3. В таких условиях изотопная трансмутация ДПД, образовавшихся в одной реакции деления, потребует 0.17–0.21 нейтр. из полного числа нейтронов, произведенных в этом делении. БР, ЭЛЯУ и ТЯУ имеют достаточно хороший нейтронный баланс, чтобы удовлетворить нужды трансмутации.

4. С точки зрения скорости трансмутации она может быть эффективной лишь в тепловом или резонансном спектре нейтронов.

5. Только ^{79}Se , ^{99}Tc , ^{107}Pd и ^{129}I могут выйти на равновесный режим в обозримом будущем, причем ^{79}Se , ^{99}Tc и ^{129}I нужно трансмутировать в смягченном нейтронном спектре blankets БР, ЭЛЯУ или ТЯУ, а для ^{107}Pd смягчение спектра необязательно.

6. ЭЛЯУ и ТЯУ предоставляют более широкие возможности по формированию структуры зоны трансмутации, оптимальной по спектру нейтронов и по амплитуде ППН, чем БР.

2.6. Элементарная трансмутация ДПД

Оставаясь в рамках предположения о непрерывной трансмутации, рассмотрим более сложную, но и более близкую к реальности задачу об обезвреживании ДПД в составе химических элементов, а не в виде выделенных изотопов. Эта задача ближе к реальности, потому что технологии изотопного разделения радиоактивных материалов более сложны, более радиационно опасны для людей и окружающей среды и в меньшей степени доведены до уровня промышленного освоения, чем технологии химического разделения РАО. Будем называть эту задачу «элементарной» трансмутацией ДПД в противоположность уже рассмотренной «изотопной» транс-

мутации. Отметим только, что осколочный технеций на 100 % состоит из изотопа ^{99}Tc , и поэтому изотопная трансмутация радионуклида ^{99}Tc полностью эквивалентна элементной трансмутации технеция.

Когда рассматривалась изотопная трансмутация, все изотопы ПД классифицировались следующим образом. Основную массу ПД (85 %) составляют стабильные изотопы. Если бы технология изотопного разделения радиоактивных материалов (а именно такими являются ПД, выделенные после переработки ОЯТ) была достаточно проста, дешева и безопасна, то 85 % ПД можно было бы отделить и направить для повторного неограниченного использования в любые отрасли промышленности. Остальные 15 % ПД – это радиоактивные изотопы, которые, в свою очередь, могут быть разделены на три группы: короткоживущие (КрПД, $T_{1/2} \leq 1$ г.), среднеживущие (СПД, $1 \text{ г.} < T_{1/2} \leq 87$ лет (^{151}Sm)) и долгоживущие (ДПД, $T_{1/2} \geq 6.5 \cdot 10^4$ лет (^{79}Se)). По массе КрПД составляют около 1 %, СПД – 6 % и ДПД – 8 %. КрПД и СПД могут быть захоронены в геологических формациях и выдержаны до почти полного распада под надежным контролем. ДПД необходимо трансмутировать, поскольку их периоды полураспада слишком велики для надежного прогнозируемого контроля. Итак, только 8 % ПД придется трансмутировать, если технология изотопного разделения радиоактивных материалов достаточно развита.

Реальная ситуация сегодняшнего дня говорит об обратном. Технология изотопного разделения РАО сложна, дорога и опасна. Сейчас более осуществимо лишь элементное разделение ПД. Если провести элементную классификацию ПД, то получаются следующие результаты. Примерно 51 % занимают стабильные элементы, т.е. элементы, содержащие только стабильные изотопы. Еще примерно 25 % – это элементы, содержащие ДПД. Оставшиеся 24 % – элементы, содержащие одновременно разные типа ПД (стабильные изотопы, КрПД и СПД, но не ДПД). Следовательно, при элементном разделении примерно 51 % ПД могут быть возвращены для неограниченного использования, 24 % – захоронены в геологических формациях, а 25 % – нужно трансмутировать, т.е. в 3 раза больше, чем при изотопном разделении ПД.

2.7. Условия осуществления элементной трансмутации ДПД

Ясно, что и для элементной трансмутации ДПД необходимо соблюдение указанных ранее условий: достаточное количество нейтронов и достаточно быстрый выход на равновесный режим.

Изотопный состав осколочных элементов существенно отличается от естественного изотопного состава этих элементов. Например, природный цезий состоит на 100 % из стабильного изотопа ^{133}Cs , а в осколочном цезии, извлеченном из отработанного УОХ-топлива легководного энергетического реактора (выгорание – 33 ГВт·сут./т, выдержка – 150 сут.), содержится примерно 41 % ^{133}Cs , 14 % ^{135}Cs , 44 % ^{137}Cs и небольшое количество (~ 0.3 %) ^{134}Cs . Период полураспада последнего невелик (чуть больше двух лет), и при обычной выдержке отработанного топлива энергетических реакторов (5–10 лет) изотоп ^{134}Cs практически отсутствует в осколочном цезии.

Вообще говоря, за исключением моноизотопного технеция, в элементных ДПД основному долгоживущему радионуклиду всегда сопутствуют стабильные изотопы этого элемента, которые играют роль паразитных поглотителей нейтронов, что нежелательно. Но они к тому же могут играть роль и источников подпитки основного радионуклида через (n, γ)-реакции, что крайне нежелательно, поскольку в начальный период трансмутации придется расходовать нейтроны не на уменьшение количества ядер основного радионуклида, а на их увеличение за счет превращения ядер стабильных предшественников через (n, γ)-реакции.

Рассмотрим этот эффект на примере трансмутации осколочного цезия. В табл. 2.5 приведены выходы изотопов осколочного цезия в расчете на одно деление в легководном ТР на УОХ- и МОХ-топливе, а также изотопные составы цезия.

Трансмутация осколочного цезия идет в соответствии со следующими цепочками изотопных переходов:

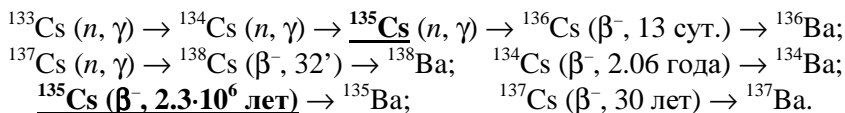
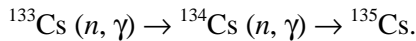


Таблица 2.5

Выходы изотопов и изотопный состав осколочного цезия

Нуклид	Выход, яд./дел.		Изотопный состав, %	
	UOX	MOX	UOX	MOX
^{133}Cs	0.055	0.054	41.5	35.8
^{135}Cs	0.019	0.038	14.6	25.4
^{137}Cs	0.058	0.058	43.9	38.8
Сумма	0.132	0.150	100	100

В осколочном цезии основной долгоживущий радионуклид ^{135}Cs сопровождается стабильным ^{133}Cs и среднеживущим ^{137}Cs . Из них ^{137}Cs является только паразитным поглотителем нейтронов, хотя и довольно слабым (малые сечения радиационного захвата). А вот ^{133}Cs является не только сильным поглотителем нейтронов, но и источником подпитки ^{135}Cs через цепочку



Отметим также, что доля ^{133}Cs в изотопном составе осколочного цезия существенно выше доли ^{135}Cs . Все это усложняет определение количества нейтронов, необходимого для трансмутации осколочного цезия, и времени выхода на равновесный режим.

2.7.1. Два подхода к оценке потребления нейтронов при элементной трансмутации ДПД

Возможны два равноценных подхода к определению расхода нейтронов на трансмутацию элементного ДПД.

Первый из них основан на анализе вероятности того, что осколочный изотоп пройдет через цепочку нейтронных захватов и превратится, наконец, в стабильный изотоп другого элемента, непрерывно удаляемого из трансмутатора.

Простейший пример: долгоживущий изотоп 1 с выходом Y_1 после захвата нейтрона превращается в короткоживущий изотоп 2 с выходом Y_2 и после распада последнего переходит в стабильный изотоп другого элемента, который непрерывно удаляется из трансмутатора. Расход нейтронов составит:

$$\Delta N_{\text{ТР}} = Y_1 \cdot \varepsilon_1 + Y_1 \cdot \varepsilon_1 \cdot \varepsilon_2 + Y_2 \cdot \varepsilon_2,$$

где ε_i – вероятность изотопу i захватить нейтрон в конкуренции с радиоактивным распадом, т.е.

$$\varepsilon_i = \frac{\sigma_i \cdot \Phi}{\sigma_i \cdot \Phi + \lambda_i}, \quad \text{где } \lambda_i = \frac{\ln 2}{T_{1/2,i}}.$$

Поскольку изотоп 1 – долгоживущий, а изотоп 2 – короткоживущий, то $\varepsilon_1 \approx 1$, а $\varepsilon_2 \approx 0$, т.е. $\Delta N \approx Y_1$.

Если между долгоживущим изотопом 1 и короткоживущим изотопом 3 находится еще один долгоживущий (или стабильный) изотоп 2, то, соблюдая ту же логику, можно записать:

$$\begin{aligned} \Delta N_{\text{ТР}} = & Y_1 \cdot \varepsilon_1 + Y_1 \cdot \varepsilon_1 \cdot \varepsilon_2 + Y_1 \cdot \varepsilon_2 \cdot \varepsilon_3 + \\ & + Y_2 \cdot \varepsilon_2 + Y_2 \cdot \varepsilon_2 \cdot \varepsilon_3 + Y_3 \cdot \varepsilon_3; \end{aligned}$$

а поскольку $\varepsilon_1 \approx 1$, $\varepsilon_2 \approx 1$, $\varepsilon_3 \approx 0$, то $\Delta N_{\text{ТР}} \approx 2 \cdot Y_1 + Y_2$.

Применяя этот подход к оценке расхода нейтронов на трансмутацию осколочного цезия, можно записать:

$$\begin{aligned} \Delta N_{\text{ТР}} = & Y_{133} \cdot \varepsilon_{133} + Y_{133} \cdot \varepsilon_{133} \cdot \varepsilon_{134} + Y_{133} \cdot \varepsilon_{133} \cdot \varepsilon_{134} + \\ & + Y_{133} \cdot \varepsilon_{133} \cdot \varepsilon_{134} \cdot \varepsilon_{135} + Y_{133} \cdot \varepsilon_{133} \cdot \varepsilon_{134} \cdot \varepsilon_{135} \cdot \varepsilon_{136} + \\ & + Y_{134} \cdot \varepsilon_{134} + Y_{134} \cdot \varepsilon_{134} \cdot \varepsilon_{135} + Y_{134} \cdot \varepsilon_{134} \cdot \varepsilon_{135} \cdot \varepsilon_{136} + \\ & + Y_{135} \cdot \varepsilon_{135} + Y_{135} \cdot \varepsilon_{135} \cdot \varepsilon_{136} + \\ & + Y_{136} \cdot \varepsilon_{136} + Y_{137} \cdot \varepsilon_{137} + Y_{137} \cdot \varepsilon_{137} \cdot \varepsilon_{138}. \end{aligned}$$

Это длинное выражение можно существенно сократить, поскольку изотопов ^{134}Cs и ^{136}Cs в осколочном цезии практически нет

($Y_{134} = Y_{136} = 0$), а из данных по скорости распада изотопов цезия следует, что

$$\varepsilon_{133} = 1, \quad \varepsilon_{135} \approx 1, \quad \varepsilon_{136} \approx 0, \quad \varepsilon_{137} \approx 1, \quad \varepsilon_{138} \approx 0.$$

Поэтому

$$\Delta N_{\text{ТР}} \approx Y_{133} + 2 \cdot Y_{133} \cdot \varepsilon_{134} + Y_{135} + Y_{137}.$$

Описанный подход может быть применен и для других, более сложных цепочек изотопных переходов.

Однако существует сравнительно более простой и более математически формализованный подход к оценке расхода нейтронов на трансмутацию элементного ДПД.

При делении образовалось некоторое количество элемента ДПД, характеризующееся вектором \vec{Y} (компоненты – выходы изотопов этого элемента в расчете на одно деление). Предположим, что это количество элемента ДПД помещено в нейтронное поле трансмутатора для сжигания. Изменение количества ядер ДПД в процессе трансмутации описывается уравнением:

$$\frac{d\vec{G}(t)}{dt} = \hat{A} \cdot \vec{G}; \quad \vec{G}(0) = \vec{Y}, \quad (2.5)$$

где $\vec{G}(t)$ – вектор, компонентами которого являются количества ядер изотопов ДПД; \vec{Y} – вектор выходов ДПД, яд./дел.; \hat{A} – матрица изотопных переходов, инициируемых нейтронными реакциями и радиоактивным распадом.

Решение уравнения (2.5) может быть записано в виде

$$G(t) = \exp(\hat{A}t) \cdot \vec{Y}, \quad \text{яд./дел.}$$

Скорость реакций захвата нейтронов изотопами ДПД можно определить как:

$$N_{c,i}(t) = \sigma_{c,i} \cdot \phi \cdot G_i(t),$$

захватов в секунду в расчете на одно дел.,

где i – номер изотопа. Полная скорость захвата нейтронов всеми изотопами ДПД находится как сумма:

$$N_c(t) = \Sigma \sigma_{c,i} \cdot \phi \cdot G_i(t) = (\vec{\sigma} \cdot \phi, \vec{G}).$$

В каждом захвате теряется один нейтрон. Следовательно, число нейтронов, необходимое для полного уничтожения ДПД, равно полной скорости захватов, проинтегрированной по времени от нуля до бесконечности, т.е.

$$\Delta N_{\text{ТР}} = \int_0^{\infty} N_c(t) \cdot dt = (\vec{\sigma} \cdot \phi, \int_0^{\infty} \exp(\hat{A} \cdot t) \cdot dt \cdot \vec{Y}), \text{ нейтр. на дел.}$$

Интеграл можно взять аналитически:

$$\int_0^{\infty} \exp(\hat{A} \cdot t) \cdot dt = -\hat{A}^{-1}.$$

Тогда

$$\Delta N_{\text{ТР}} = -(\vec{\sigma} \cdot \phi, \hat{A}^{-1} \cdot \vec{Y}) = (\vec{\sigma} \cdot \phi, \vec{G}_{eq}) \text{ нейтр. на дел.,}$$

где компонентами вектора $\vec{\sigma}$ являются микросечения радиационного захвата нейтронов $\sigma_{c,i}$.

Можно показать, что оба подхода (в терминах вероятности дойти до ближайшего КрПД и превратиться в стабильный изотоп другого элемента или в терминах интегральной скорости захвата нейтронов трансмутируемыми изотопами) дают одинаковый результат. Второй подход более удобен для анализа сложных цепочек изотопных переходов, а первый – для более простых и коротких цепочек.

Если предположить, что в состав трансмутируемого элемента входят делящиеся изотопы (например, изотопы нептуния, америция или кюрия), то баланс потребления и производства нейтронов может даже поменять знак. Действительно, делящиеся изотопы будут поглощать нейтроны в (n, γ) -реакциях со скоростью:

$$N_{c,i}(t) = \sigma_{c,i} \cdot \Phi \cdot G_i(t), \text{ захватов в секунду в расчете на одно дел.}$$

Реакция деления тоже поглощает нейтрон, но и производит новые нейтроны, количество которых ν больше единицы. Тогда скорость потребления нейтронов реакциями деления можно записать так:

$$N_{f,i}(t) = (\sigma_{f,i} \cdot \Phi - \nu_i \cdot \sigma_{c,i} \cdot \Phi) \cdot G_i(t).$$

После интегрирования получим ту же формулу для расхода нейтронов на трансмутацию, но компоненты вектора $\vec{\sigma}$ будут иметь следующий вид:

$$(\vec{\sigma})_i = \sigma_{c,i} + \sigma_{f,i} \cdot (1 - \nu_i).$$

2.8. Потребление нейтронов при элементной трансмутации ДПД

Оценим расход нейтронов на элементную трансмутацию ДПД, который определяется выходами изотопов ДПД при делении и спецификой цепочки изотопных переходов при трансмутации, а не спектром и плотностью потока нейтронов в трансмутаторе.

В табл. 2.6 и 2.7 приведены данные по выходам изотопов ДПД в расчете на одно деление в энергетическом легководном реакторе на УОХ- и МОХ-топливе с учетом выдержки после извлечения из реактора. Эти выходы в дальнейшем будут использоваться для оценки расхода нейтронов на элементную трансмутацию ДПД. Отметим, что ^{90}Sr распадается в стабильный ^{90}Zr , поэтому в случае хранения необходимо выделить Sr из смеси ДПД, чтобы при трансму-

тации ^{93}Zr без изотопного разделения не пришлось расходовать 5 нейтр. на трансмутацию ^{90}Zr .

Таблица 2.6

Выходы изотопов ДПД в легководном ТР

Нуклид	Выход изотопа, яд./дел.	
	UOX-топливо	MOX-топливо
^{77}Se	6.69E-5	4.94E-5
^{78}Se	2.12E-4	2.01E-4
^{79}Se	4.01E-4	3.37E-4
^{80}Se	1.11E-3	8.03E-4
^{82}Se	2.61E-3	1.71E-3
^{90}Zr	1.60E-3	6.67E-4
^{91}Zr	4.06E-2	2.08E-2
^{92}Zr	4.61E-2	2.72E-2
^{93}Zr	3.34E-2	2.25E-2
^{94}Zr	5.36E-2	3.89E-2
^{96}Zr	5.46E-2	4.51E-2
^{99}Tc	5.09E-2	4.91E-2
^{105}Pd	2.19E-2	4.47E-2
^{106}Pd	1.08E-2	2.61E-2
^{107}Pd	1.19E-2	3.11E-2
^{108}Pd	7.59E-3	2.09E-2
^{110}Pd	2.24E-3	6.20E-3
^{115}Sn	9.40E-6	1.65E-5
^{117}Sn	2.38E-4	4.11E-4
^{118}Sn	1.93E-4	3.00E-4
^{119}Sn	2.02E-4	3.09E-4
^{120}Sn	1.97E-4	2.96E-4
^{122}Sn	2.51E-4	3.76E-4
^{124}Sn	4.12E-4	6.12E-4
^{126}Sn	9.15E-4	1.58E-3
^{127}I	1.94E-3	3.13E-3
^{129}I	8.68E-3	1.10E-2
^{133}Cs	5.49E-2	5.39E-2
^{135}Cs	1.93E-2	3.83E-2
^{137}Cs	5.82E-2	5.84E-2

Образование ДПД в легководном ТР

ДПД	Выход, яд./дел.		Накопление, кг/ГВт(э) год	
	UOX	MOX	UOX	MOX
⁷⁹ Se	0.0004	0.0003	0.17	0.14
Весь Se	0.0044	0.0031	1.90	1.30
⁹³ Zr	0.0344	0.0225	16.56	11.16
Весь Zr	0.2299	0.1552	114.0	77.0
⁹⁹ Tc	0.0509	0.0491	26.9	25.9
¹⁰⁷ Pd	0.0119	0.0311	6.78	17.74
Весь Pd	0.0544	0.1290	31.0	73.6
¹²⁶ Sn	0.0009	0.0016	0.61	1.05
Весь Sn	0.0024	0.0039	1.60	2.60
¹²⁹ I	0.0087	0.0110	5.97	7.57
Весь I	0.0106	0.0141	7.30	9.70
¹³⁵ Cs	0.0193	0.0383	13.89	27.57
Весь Cs	0.1324	0.1506	95.3	108.4
Все изотопы	0.1255	0.1539	70.88	91.13
Все элементы	0.4850	0.5050	278.0	298.5

Как уже говорилось, из семи ДПД только осколочный технеций на 100 % состоит из одного долгоживущего радионуклида ⁹⁹Tc, и для него нет никакой разницы между изотопной и элементной трансмутацией. Используя выходы изотопа ⁹⁹Tc, приведенные в табл. 2.6, можно показать, что:

$$\Delta N_{\text{ТР}} (^{99}\text{Tc}, \text{UOX}) = 0.051 \text{ нейтр./дел.};$$

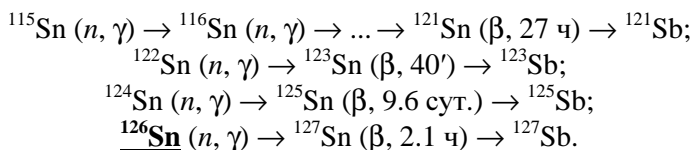
$$\Delta N_{\text{ТР}} (^{99}\text{Tc}, \text{MOX}) = 0.049 \text{ нейтр./дел.}$$

Остальные шесть ДПД, кроме основного долгоживущего радионуклида, содержат еще несколько сопутствующих изотопов. Эти изотопы поглощают нейтроны, которые могли бы пойти на трансмутация основного радионуклида, тем самым ухудшая нейтронный баланс процесса. В некоторых цепочках сопутствующие изотопы, захватывая нейтроны, превращаются в основной радионуклид, и тем самым не только ухудшают нейтронный баланс, но и увеличи-

вают количество трансмутируемого радионуклида вместо его сжигания.

В цепочках изотопных переходов, реализующихся при элементной трансмутации осколочного олова и осколочного йода, сопутствующие изотопы играют роль только паразитных поглотителей нейтронов.

Осколочное олово состоит из восьми изотопов, включая основной долгоживущий радионуклид ^{126}Sn . При нейтронной трансмутации элементного олова цепочка изотопных переходов выглядит следующим образом:



Видно, что основной долгоживущий радионуклид ^{126}Sn не связан нейтронными реакциями с семью более легкими изотопами олова, которые потенциально могли бы его подпитывать. Однако быстрые β -распады ^{121}Sn , ^{123}Sn и ^{125}Sn «разрывают» нейтронные связи. Скорость (n, γ) -реакций изотопов олова может конкурировать со скоростью их β -распадов лишь при плотностях потока нейтронов, недостижимых в современных ядерных установках.

В соответствии с цепочкой изотопных переходов расход нейтронов на трансмутацию осколочного олова можно определить по следующей формуле:

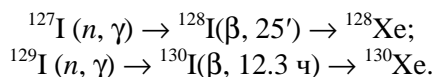
$$\begin{aligned} \Delta N_{\text{ТР}} \approx & 6 \cdot Y_{115} + 4 \cdot Y_{117} + 3 \cdot Y_{118} + 2 \cdot Y_{119} + \\ & + Y_{120} + Y_{122} + Y_{124} + Y_{126}. \end{aligned}$$

Используя данные по выходам изотопов олова из табл. 2.6, можно оценить расход нейтронов на трансмутацию элементного осколочного олова, производимого легководным энергетическим ТР на урановом и МОХ-топливе, соответственно. Расходы нейтронов в расчете на одно деление в реакторе оказываются следующими:

$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{Sn, UOX}) = 0.0038 \text{ нейтр./дел.};$$

$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{Sn, MOX}) = 0.0061 \text{ нейтр./дел.}$$

Аналогичная, но более простая ситуация имеет место при элементной трансмутации *осколочного йода*. Осколочный йод состоит только из двух изотопов: стабильного ^{127}I и долгоживущего ^{129}I . Цепочка изотопных переходов при элементной трансмутации йода включает реакции:



Быстрый β -распад промежуточного изотопа ^{128}I разрывает нейтронную связь между двумя изотопами йода. В результате не происходит подпитки основного радионуклида ^{129}I за счет перехода в него более легкого ^{127}I через реакции захвата нейтронов.

Соответственно, минимальный расход нейтронов на трансмутацию осколочного йода можно определить по формуле:

$$\Delta N_{\text{ТР}} \approx Y_{127} + Y_{129}.$$

Используя данные по выходам изотопов йода из табл. 2.6, можно оценить расход нейтронов на трансмутацию элементного осколочного йода, производимого легководным энергетическим ТР на урановом и МОХ-топливе, соответственно. Расходы нейтронов в расчете на одно деление в реакторе оказываются следующими:

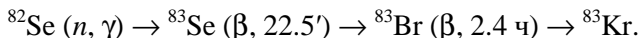
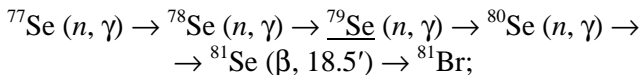
$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{I, UOX}) = 0.011 \text{ нейтр./дел.};$$

$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{I, MOX}) = 0.014 \text{ нейтр./дел.}$$

Для оставшихся четырех ДПД (^{79}Se , ^{93}Zr , ^{107}Pd и ^{135}Cs) складывается принципиально иная ситуация. Здесь сопутствующие изотопы играют роль не только паразитных поглотителей нейтронов, но и роль источников подпитки основного долгоживущего радионуклида.

Осколочный селен состоит из пяти изотопов, включая основной долгоживущий радионуклид ^{79}Se . Цепочка изотопных переходов

при элементной трансмутации селена включает следующие реакции:



Видно, что изотопы ${}^{80}\text{Se}$ и ${}^{82}\text{Se}$ играют роль только паразитных поглотителей нейтронов, в то время как более легкие изотопы ${}^{77}\text{Se}$ и ${}^{78}\text{Se}$ не только поглощают нейтроны, но и в результате этих поглощений превращаются в трансмутируемый радионуклид ${}^{79}\text{Se}$. Только после существенного уменьшения количества изотопов-предшественников начнется эффективное сжигание основного долгоживущего радионуклида ${}^{79}\text{Se}$.

В соответствии с цепочкой изотопных переходов расход нейтронов на трансмутацию осколочного селена можно определить по формуле:

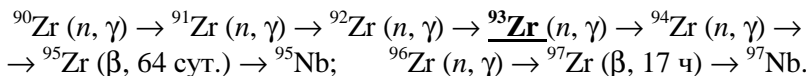
$$\Delta N_{\text{ТР}} \approx 4 \cdot Y_{77} + 3 \cdot Y_{78} + 2 \cdot Y_{79} + Y_{80} + Y_{82}.$$

Используя данные по выходам изотопов селена из табл. 2.6, можно оценить расход нейтронов на трансмутацию элементного осколочного селена, производимого легководным энергетическим ТР на урановом и MOX-топливе, соответственно. Расходы нейтронов в расчете на одно деление в реакторе оказываются следующими:

$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{Se, UOX}) = 0.0054 \text{ нейтр./дел.};$$

$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{Se, MOX}) = 0.0040 \text{ нейтр./дел.}$$

Осколочный цирконий состоит из шести изотопов, включая основной долгоживущий радионуклид ${}^{93}\text{Zr}$. Цепочка изотопных переходов при элементной трансмутации циркония включает следующие реакции:



Видно, что изотопы ^{94}Zr и ^{96}Zr играют роль только паразитных поглотителей нейтронов, в то время как более легкие изотопы ^{90}Zr , ^{91}Zr и ^{92}Zr не только поглощают нейтроны, но и в результате этих поглощений превращаются в трансмутируемый радионуклид ^{93}Zr . Только после существенного уменьшения количества изотопов-предшественников начнется эффективное сжигание основного долгоживущего радионуклида ^{93}Zr .

В соответствии с цепочкой изотопных переходов расход нейтронов на трансмутацию осколочного циркония можно определить по следующей формуле:

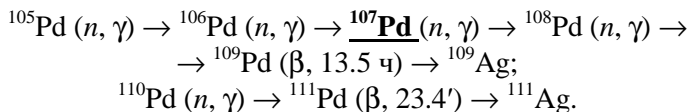
$$\Delta N_{\text{ТР}} \approx 5 \cdot Y_{90} + 4 \cdot Y_{91} + 3 \cdot Y_{92} + 2 \cdot Y_{93} + Y_{94} + Y_{96}.$$

Используя данные по выходам изотопов циркония из табл. 2.6, можно оценить расход нейтронов на трансмутацию элементного осколочного циркония, производимого легководным энергетическим ТР на урановом и МОХ-топливе, соответственно. Расходы нейтронов в расчете на одно деление в реакторе оказываются следующими:

$$\Delta N_{\text{ТР}}(\text{Zr, UOX}) = 0.484 \text{ нейтр./дел.};$$

$$\Delta N_{\text{ТР}}(\text{Zr, MOX}) = 0.297 \text{ нейтр./дел.}$$

Осколочный палладий состоит из пяти изотопов, включая основной долгоживущий радионуклид ^{107}Pd . Цепочка изотопных переходов при элементной трансмутации палладия включает следующие реакции:



Видно, что изотопы ^{108}Pd и ^{110}Pd играют роль только паразитных поглотителей нейтронов, в то время как более легкие изотопы ^{105}Pd и ^{106}Pd не только поглощают нейтроны, но и в результате этих поглощений превращаются в трансмутируемый радионуклид ^{107}Pd . Только после существенного уменьшения количества изотопов-

предшественников может начаться эффективное сжигание основного радионуклида ^{107}Pd .

В соответствии с цепочкой изотопных переходов расход нейтронов на трансмутацию осколочного палладия можно определить по формуле:

$$\Delta N_{\text{ТР}} \approx 4 \cdot Y_{105} + 3 \cdot Y_{106} + 2 \cdot Y_{107} + Y_{108} + Y_{110}.$$

Используя данные по выходам изотопов палладия из табл. 2.6, можно оценить расход нейтронов на трансмутацию элементного осколочного палладия, производимого легководным энергетическим ТР на урановом и МОХ-топливе, соответственно. Расходы нейтронов в расчете на одно деление в реакторе оказываются следующими:

$$\Delta N_{\text{ТР}}(\text{Pd, UOX}) = 0.153 \text{ нейтр./дел.};$$

$$\Delta N_{\text{ТР}}(\text{Pd, MOX}) = 0.346 \text{ нейтр./дел.}$$

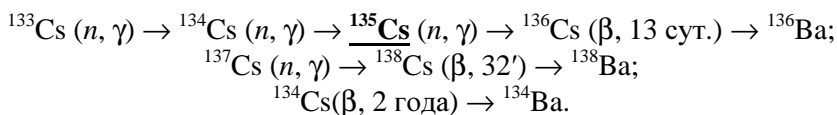
Трансмутация *осколочного цезия* была рассмотрена ранее. Специфическое отличие цепочки изотопных переходов цезия определяется среднеживущим радионуклидом ^{134}Cs с периодом полураспада 2.06 года. Сечения радиационного захвата нейтронов ^{134}Cs в тепловой области таковы, что скорость захвата нейтронов сопоставима со скоростью радиоактивного распада ^{134}Cs при реально достижимых уровнях ППН. Это означает, что при трансмутации элементного осколочного цезия расход нейтронов будет существенно зависеть от спектра и ППН трансмутатора через вероятность ε_{134} реакции захвата нейтрона ^{134}Cs в конкуренции с его радиоактивным распадом:

$$\varepsilon_{134} = \frac{\sigma_{134} \cdot \Phi}{\sigma_{134} \cdot \Phi + \lambda_{134}}.$$

Этого не было во всех рассмотренных ранее цепочках элементной трансмутации ДПД. Там присутствовали либо стабильные изотопы, для которых $\varepsilon = 1$, либо радионуклиды с такими короткими периодами полураспада, что при реально достижимых потоках

нейтронов ϵ ; близки к нулю. Любопытно, что самого «возмутителя спокойствия» ^{134}Cs в осколочном цезии практически нет, но он возникает в цепочке изотопных переходов в результате захвата нейтронов стабильным изотопом ^{133}Cs .

Итак, трансмутация осколочного цезия идет в соответствии с цепочкой изотопных переходов, включающей следующие реакции:



Видно, что лишь один изотоп ^{137}Cs играет роль только паразитного поглотителя нейтронов и, к счастью, довольно слабого поглотителя из-за малых сечений захвата даже в тепловой точке. В то же время более легкий изотоп ^{133}Cs не только эффективно поглощает нейтроны, но и в результате этих поглощений превращается, через ^{134}Cs , в основной долгоживущий радионуклид ^{135}Cs . Только после существенного уменьшения количества изотопа-предшественника ^{133}Cs может начаться эффективное сжигание основного радионуклида ^{135}Cs .

В соответствии с цепочкой изотопных переходов расход нейтронов на трансмутацию осколочного цезия можно определить по формуле:

$$\Delta N_{\text{ТР}} \approx Y_{133} + 2 \cdot Y_{133} \cdot \epsilon_{134} + Y_{135} + Y_{137}.$$

Используя данные по выходам изотопов цезия из табл. 2.6, можно оценить расход нейтронов на трансмутацию элементного осколочного цезия, производимого легководным энергетическим ТР на урановом и МОХ-топливе, соответственно. Поскольку расход нейтронов существенно зависит от скорости (n, γ) -реакции ^{134}Cs , имеет смысл рассмотреть два крайних случая:

- 1) скорость (n, γ) -реакции ^{134}Cs так мала, что $\epsilon_{134} \approx 0$ (минимум);
- 2) скорость (n, γ) -реакции ^{134}Cs так велика, что $\epsilon_{134} \approx 1$ (максимум).

В этих предположениях расходы нейтронов в расчете на одно деление в реакторе оказываются следующими:

$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{Cs, UOX})_{\text{min}} = 0.074 \text{ нейтр./дел.};$$

$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{Cs, UOX})_{\text{max}} = 0.242 \text{ нейтр./дел.};$$

$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{Cs, MOX})_{\text{min}} = 0.092 \text{ нейтр./дел.};$$

$$\Delta N_{\text{ТР}} (\text{Cs, MOX})_{\text{max}} = 0.258 \text{ нейтр./дел.}$$

В дальнейшем, при анализе возможности трансмутации элементного осколочного цезия будем использовать максимальные оценки расхода нейтронов.

В табл. 2.8 собраны данные по расходу нейтронов на элементную трансмутацию ДПД, аналогичные собранным в табл. 2.1 для изотопной трансмутации тех же ДПД.

Таблица 2.8

Расход нейтронов на элементную трансмутацию ДПД

Радионуклид	Расход нейтронов, нейтр./дел.	
	UOX-топливо	MOX-топливо
⁷⁹ Se	0.0054	0.004
⁹³ Zr	0.484	0.297
⁹⁹ Tc	0.051	0.049
¹⁰⁷ Pd	0.153	0.346
¹²⁶ Sn	0.0038	0.0061
¹²⁹ I	0.011	0.014
¹³⁵ Cs	0.242	0.258
Всего:	0.950	0.974

Итак, элементная трансмутация ДПД требует 0.95–0.97 нейтрона в расчете на одно деление в реакторе АЭС. Это выходит за пределы возможностей БР (~ 0.35 нейтрона на деление), с трудом укладывается в возможности ЭЛЯУ (~ 1 нейтрон на деление в обслуживающей АЭС), но делает систему ТР + ЭЛЯУ экономически бессмысленной, поскольку почти вся энергия АЭС расходуется на производство нейтронов для трансмутации. Но элементная трансмутация ДПД вполне осуществима в ТЯУ (4–10 нейтронов в термоядерных реакциях, энергетически эквивалентных одному делению). Поэтому с достаточной степенью уверенности можно гово-

ритель об элементной трансмутации полного набора основных ДПД только в бланкетах ТЯУ.

Отметим одно важное обстоятельство: 0.95–0.97 нейтрона на деление требуется для трансмутации всех ДПД. Поэтому в принципе представляется возможной некая система трансмутаторов, включающая БР, ЭЛЯУ и ТЯУ. Каждый тип трансмутаторов будет обезвреживать те ДПД, для которых он наиболее подходит. Например, технеций, йод и селен могут быть трансмутированы в бланкетах БР со смягченным спектром, поскольку они не требуют большого расхода нейтронов и имеют приемлемое время выхода на равновесный режим при вполне достижимых величинах ППН. Аналогично могут быть выявлены наиболее приемлемые типы трансмутаторов и для остальных ДПД. Оптимальный состав системы трансмутаторов может быть найден на основе оценки трансмутационного потенциала, технических и экономических показателей каждого типа установок.

Повторим оценку структуры ЯЭС, состоящей из АЭС на ТР, основных производителей электроэнергии и ДПД, и специализированных трансмутаторов типа ЭЛЯУ или ТЯУ.

1. ЯЭС состоит из ТР- и ЭЛЯУ-трансмутаторов ДПД

Электроядерные установки способны дать примерно 1 нейтрон в расчете на одно деление в ТР, обслуживающем ЭЛЯУ. Уравнение нейтронного баланса в такой системе можно записать так:

$$1.0 \cdot N_{\text{ЭЛЯУ}} = (0.95 \div 0.97) \cdot N_{\text{ЭЛЯУ}} + (0.95 \div 0.97) \cdot N_{\text{ТР}}.$$

Тогда доля АЭС, обслуживающих ЭЛЯУ, составит:

$$\epsilon_{\text{ЭЛЯУ}} = \frac{N_{\text{ЭЛЯУ}}}{N_{\text{ЭЛЯУ}} + N_{\text{ТР}}} = 0.95 \div 0.97,$$

т.е. лишь 3–5 % мощности ЯЭС будут коммерчески использованы, а остальные 95–97 % пойдут на питание ускорителей ЭЛЯУ, т.е. на трансмутацию ДПД, производимых всей ЯЭС. Вряд ли такая структура ЯЭС может быть признана экономически разумной.

2. ЯЭС состоит из ТР- и ТЯУ-трансмутаторов ДПД

Как уже оценено, ТЯУ способны генерировать следующее количество нейтронов в расчете на одну термоядерную реакцию: 0.45 нейтр. на одну (D, T)-реакцию и 1.10 нейтрона на одну (D, D)-реакцию. Обозначим скорость термоядерных реакций как $N_{\text{ТЯУ}}$.

Тогда

$$(0.95 \div 0.97) \cdot N_{\text{ТР}} = (0.45 \div 1.10) \cdot N_{\text{ТЯУ}},$$

или

$$N_{\text{ТР}} / N_{\text{ТЯУ}} = (0.46 \div 0.47) \quad \text{для (D, T)-реакции;}$$

$$N_{\text{ТР}} / N_{\text{ТЯУ}} = (1.13 \div 1.16) \quad \text{для (D, D)-реакции.}$$

Долю ТЯУ в мощности ЯЭС можно определить как:

$$\epsilon_{\text{ТЯУ}} = \frac{N_{\text{ТЯУ}} \cdot E_{\text{ТЯУ}}}{N_{\text{ТЯУ}} \cdot E_{\text{ТЯУ}} + N_{\text{ТР}} \cdot E_{\text{ТР}}} = \frac{1}{1 + \frac{N_{\text{ТР}}}{N_{\text{ТЯУ}}} \cdot \frac{E_{\text{ТР}}}{E_{\text{ТЯУ}}}}.$$

Поскольку $E_{\text{ТР}} / E_{\text{ТЯУ}} \approx 10$, то:

$$\epsilon_{\text{ТЯУ}} \approx 18 \% \quad \text{для ТЯУ на (D, T)-реакции;}$$

$$\epsilon_{\text{ТЯУ}} \approx 8 \% \quad \text{для ТЯУ на (D, D)-реакции.}$$

Видно, что в такой системе основная доля энергии будет производиться в ядерных реакторах.

2.9. Эффективность элементной трансмутации ДПД

Теперь обсудим второе условие трансмутации – ее эффективность. Эффективность изотопной трансмутации ДПД оценивалась в терминах эффективного времени жизни $T_{\text{эф}}$ основного долгоживущего радионуклида в нейтронном поле трансмутатора, или, что то же самое, времени накопления равновесного количества этого радионуклида ядерной энергосистемой. Было показано, что при начале трансмутации в момент $T_{\text{эф},i}$ она сразу же выходит на равно-

весный режим, т.е. в системе прекращается накопление трансмутируемого ДПД.

Элементарная трансмутация ДПД существенно отличается от изотопной в выходе на равновесный режим. Уравнение, описывающее нейтронную трансмутацию элементного ДПД, может быть представлено в следующем матрично-векторном виде:

$$\frac{d\vec{G}(t)}{dt} = \vec{Y} \cdot N_f + \hat{A} \cdot \vec{G}; \quad \vec{G}(\Delta t_0) = \vec{Y} \cdot N_f \cdot \Delta t_0, \quad (2.6)$$

где \vec{G} – вектор, компонентами которого являются количества ядер изотопов ДПД; \vec{Y} – вектор выходов изотопов ДПД, яд./дел.; N_f – скорость реакций деления или, с точностью до множителя, мощность ЯЭС; \hat{A} – матрица изотопных переходов, инициируемых нейтронными реакциями и радиоактивным распадом; $\vec{G}(\Delta t_0)$ – вектор исходного количества изотопов ДПД, накопленного ЯЭС к моменту времени Δt_0 , т.е. к моменту начала трансмутации.

Уравнение (2.6) можно переписать в следующем виде:

$$\frac{d\vec{G}(t)}{dt} = \hat{A} \cdot (\vec{G} + \hat{A}^{-1} \cdot \vec{Y} \cdot N_f);$$

или

$$\frac{d(\vec{G} - \vec{G}_{eq})}{dt} = \hat{A} \cdot (\vec{G} - \vec{G}_{eq}),$$

где

$$\vec{G}_{eq} = -\hat{A}^{-1} \cdot \vec{Y} \cdot N_f.$$

Решение этого уравнения отличается от решения уравнения для изотопной трансмутации ДПД лишь матрично-векторной формой:

$$\vec{G}(t) = \vec{G}_{eq} + \exp(\hat{A} \cdot (t - \Delta t_0)) \cdot (\vec{G}(\Delta t_0) - \vec{G}_{eq}). \quad (2.7)$$

Изотопный состав элементного ДПД, накопленного ЯЭС к началу трансмутации, определяется вектором \vec{Y} . Равновесный изотопный состав трансмутируемого ДПД определяется не только вектором выходов \vec{Y} , но и нейтронным полем трансмутатора, поскольку $\vec{G}_{eq} = -\hat{A}^{-1} \cdot \vec{Y} \cdot N_f$. Поэтому в случае элементной трансмутации вариант мгновенного выхода на равновесный режим при $\vec{G}(\Delta t_0) = \vec{G}_{eq}$ неосуществим. Этот вариант возможен при изотопной трансмутации, поскольку там необходимо только накопление достаточного большого (равновесного) количества изотопа. Здесь же дело не столько в количестве элемента ДПД, сколько в его изотопном составе. Поэтому условие $\vec{G}(\Delta t_0) = \vec{G}_{eq}$ для всех компонентов вектора практически невыполнимо, и в общем случае выход на равновесный режим элементной трансмутации должен быть асимптотическим. Однако если основной изотоп ДПД не связан нейтронными реакциями с более легкими изотопами (как в случае технеция, олова и йода), то его выход на равновесный режим будет таким же, как и при изотопной трансмутации.

Итак, при элементной трансмутации основной долгоживущий радионуклид находится в смеси с более легкими и более тяжелыми изотопами своего элемента. Тяжелые изотопы играют роль только паразитных поглотителей нейтронов и никак не влияют на приближение основного ДПД к режиму равновесной трансмутации. Более легкие изотопы способны увеличивать количество основного ДПД через реакции захвата нейтронов и поэтому могут существенно влиять на процесс выхода в равновесный режим.

Рассмотрим элементную трансмутацию ДПД, состоящего из трех изотопов. Последний из них является основным долгоживущим радионуклидом и самым тяжелым изотопом, т.е. его количество может увеличиваться за счет захвата нейтронов двумя более легкими изотопами того же элемента:

$$\frac{dG_1}{dt} = Y_1 \cdot N_f - \sigma_1 \cdot \phi \cdot G_1;$$

$$\frac{dG_2}{dt} = Y_2 \cdot N_f + \sigma_1 \cdot \phi \cdot G_1 - \sigma_2 \cdot \phi \cdot G_2;$$

$$\frac{dG_3}{dt} = Y_3 \cdot N_f + \sigma_2 \cdot \Phi \cdot G_2 - \sigma_3 \cdot \Phi \cdot G_3,$$

где G_i – количество ядер изотопа i с начальным значением $G_{i,0} = Y_i \cdot N_f \cdot \Delta t_0$.

Равновесное количество изотопа 1 и время его накопления ядерной энергосистемой можно записать в следующем виде:

$$G_{1,eq} = \frac{Y_1 \cdot N_f}{\sigma_1 \cdot \Phi}; \quad \Delta t_{1,eq} = \frac{1}{\sigma_1 \cdot \Phi}.$$

То же самое для изотопов 2 и 3 может быть записано в виде:

$$G_{2,eq} = \frac{(Y_1 + Y_2) \cdot N_f}{\sigma_2 \cdot \Phi}; \quad \Delta t_{2,eq} = \frac{Y_1 + Y_2}{Y_2} \cdot \frac{1}{\sigma_2 \cdot \Phi};$$

$$G_{3,eq} = \frac{(Y_1 + Y_2 + Y_3) \cdot N_f}{\sigma_3 \cdot \Phi}; \quad \Delta t_{3,eq} = \frac{Y_1 + Y_2 + Y_3}{Y_3} \cdot \frac{1}{\sigma_3 \cdot \Phi}.$$

Время накопления равновесного количества основного радионуклида $\Delta t_{3,eq}$ превышает его эффективное время жизни в нейтронном поле $T_{эф} = 1 / (\sigma_3 \cdot \Phi)$, поскольку $Y_1 + Y_2 + Y_3 > Y_3$.

Временная зависимость количества основного радионуклида в этой цепочке может быть записана в виде:

$$G_3(t) - G_{3,eq} = (G_{3,0} - G_{3,eq}) \cdot f_3(t) + (G_{2,0} - G_{2,eq}) \cdot f_2(t) + (G_{1,0} - G_{1,eq}) \cdot f_1(t), \quad (2.8)$$

где $f_2(t)$ – функции выгорания, положительные значения которых находятся в пределах интервала $[0, 1]$.

$$f_3(t) = \exp(-\lambda_3 \cdot t);$$

$$f_2(t) = \lambda_2 \cdot \left[\frac{\exp(-\lambda_2 \cdot t)}{\lambda_3 - \lambda_2} + \frac{\exp(-\lambda_3 \cdot t)}{\lambda_2 - \lambda_3} \right];$$

$$f_1(t) = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \left[\frac{\exp(-\lambda_1 \cdot t)}{(\lambda_3 - \lambda_1) \cdot (\lambda_2 - \lambda_1)} + \frac{\exp(-\lambda_2 \cdot t)}{(\lambda_1 - \lambda_2) \cdot (\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{\exp(-\lambda_3 \cdot t)}{(\lambda_1 - \lambda_3) \cdot (\lambda_2 - \lambda_3)} \right],$$

где $\lambda_i = \sigma_i \cdot \Phi$.

Поскольку $G_{i,0} = Y_i \cdot N_f \cdot \Delta t_0$; $G_{i,eq} = Y_i \cdot N_f \cdot \Delta t_{i,eq}$, уравнение (2.8) можно переписать в следующем виде:

$$G_3(t) - G_{3,eq} = Y_3 \cdot N_f \cdot (\Delta t_0 - \Delta t_{3,eq}) \cdot f_3(t) + Y_2 \cdot N_f \cdot (\Delta t_0 - \Delta t_{2,eq}) \cdot f_2(t) + Y_1 \cdot N_f \cdot (\Delta t_0 - \Delta t_{1,eq}) \cdot f_1(t). \quad (2.9)$$

Из общих соображений представляется целесообразным, чтобы трансмутация началась в такой момент времени Δt_0 , чтобы затем в переходном режиме количество основного радионуклида $G_3(t)$ никогда не превышала равновесное значение, т.е. чтобы $G_3(t) - G_{3,eq} \leq 0$ при $t \geq \Delta t_0$.

Это условие предлагается использовать в качестве критерия эффективности (или целесообразности начала) элементной трансмутации ДПД. Если это условие выхода снизу на равновесный режим не выполняется, то в работе трансмутатора обязательно будет интервал, когда нейтроны расходуются на получение сверх равновесного количества основного радионуклида и на возвращение его к равновесному уровню, что нежелательно.

Из уравнения (2.9) видно, что условие выхода на равновесный режим снизу выполняется, по меньшей мере, в двух случаях.

1. Тривиальное решение: $\Delta t_0 = 0$.

2. Время начала трансмутации Δt_0 равно минимальному значению из времен накопления равновесных количеств $\Delta t_{i,eq}$ среди всех изотопов цепочки, т.е. $\Delta t_0 = \min\{\Delta t_{i,eq}\}$.

Однако варианты, при которых $\Delta t_0 \geq \min\{\Delta t_{i,eq}\}$, тоже не исключают возможности выхода снизу на равновесный режим. Возникает задача найти такое время начала трансмутации, после которого количество основного радионуклида никогда не превысит равновесное значение.

Отметим еще одну интересную возможность переписать временную зависимость количества основного радионуклида в несколько ином виде. Для начала запишем ее сокращенно:

$$G_3(t) - G_{3,eq} = N_f \cdot \sum_{i=1}^3 Y_i \cdot (\Delta t_0 - \Delta t_{i,eq}) \cdot f_i(t),$$

где функции $f_i(t)$ – линейные комбинации экспонент.

Если же в уравнении (2.9) собрать члены при экспонентах, то оно примет следующий вид:

$$G_3(t) - G_{3,eq} = N_f \cdot \sum_{i=1}^3 A_i \cdot (\Delta t_0 - T_{эф,i}) \cdot e^{-\lambda_i \cdot t}, \quad (2.10)$$

где $T_{эф,i} = 1/\lambda_i$ – эффективное время жизни i -го изотопа в нейтронном поле трансмутатора; A_i – коэффициенты, знаки которых определяются разностями скоростей реакций трансмутации $(\lambda_1 - \lambda_2)$, $(\lambda_1 - \lambda_3)$ и $(\lambda_2 - \lambda_3)$.

$$A_1 = \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot Y_1}{(\lambda_2 - \lambda_1) \cdot (\lambda_3 - \lambda_1)};$$

$$A_2 = \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot Y_1}{(\lambda_1 - \lambda_2) \cdot (\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{\lambda_2 \cdot Y_2}{\lambda_3 - \lambda_2};$$

$$A_3 = \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot Y_1}{(\lambda_1 - \lambda_3) \cdot (\lambda_2 - \lambda_3)} + \frac{\lambda_2 \cdot Y_2}{\lambda_2 - \lambda_3} + Y_3.$$

Из уравнения (2.10) следует, что при определенном соотношении между выходами Y_i и скоростями реакций λ_i , начало трансмутации в момент времени $\Delta t_0 = T_{эф,i}$ может оказаться наилучшим в

смысле невозможности превышения в дальнейшем равновесного количества основного радионуклида.

Итак, попробуем оценить эффективность элементной трансмутации семи ДПД (^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs), используя в качестве критерия время начала трансмутации, после которого количество ядер основного долгоживущего радионуклида никогда не превысит равновесное значение. Как и в случае изотопной трансмутации, будем считать эффективной только такую элементную трансмутацию, которую целесообразно начинать уже в обозримом будущем, т.е. $\Delta t_0 \leq 60\text{--}70$ лет с учетом того, что ЯЭС уже функционирует примерно 40 лет, накоплено уже соответствующее количество ДПД, и оставшиеся 20–30 лет будут использованы на доведение количества ДПД до нужного уровня, на выбор типа, проектирование и строительство трансмутаторов.

В расчетных оценках оптимального времени начала элементной трансмутации указанных семи ДПД будем исходить из следующих предположений о нейтронном поле трансмутатора и о выходах изотопов ДПД:

1) при трансмутации ДПД в установке с мягким спектром (МС) микросечения реакций берутся из японской библиотеки оцененных ядерных данных JENDL-3.2 при энергии 1 эВ, а ППН принимается равной 10^{14} нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$;

2) при трансмутации ДПД в установке с жестким спектром (ЖС) микросечения реакций берутся из японской библиотеки оцененных ядерных данных JENDL-3.2 при энергии 200 кэВ, а ППН принимается равной 10^{15} нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$;

3) рассматриваются два варианта по выходам изотопов ДПД: первый вариант соответствует накоплению ДПД в урановом оксидном (UOX) топливе, а второй – в смешанном уран-плутониевом оксидном (MOX) топливе.

Оказывается, что для трех ДПД (^{99}Tc , ^{126}Sn и ^{129}I) элементная трансмутация практически не отличается от изотопной по условиям выхода на равновесный режим. Проще всего дело обстоит с ^{99}Tc , поскольку он является единственным изотопом технеция, входящим в состав ПД. Поэтому ни по расходу нейтронов ($\Delta N_{\text{ТР}}(^{99}\text{Tc}) = Y_{99}$), ни по оптимальному моменту начала трансмута-

ции $\Delta t_0 = T_{\text{эф}}(^{99}\text{Tc})$ элементная трансмутация ^{99}Tc не отличается от изотопной.

Чуть сложнее обстоит дело с изотопами ^{126}Sn и ^{129}I . Долгоживущий изотоп ^{126}Sn – не единственный изотоп олова в составе ПД. ПД содержат также семь более легких изотопов олова (^{115}Sn , ^{117}Sn , ^{118}Sn , ^{119}Sn , ^{120}Sn , ^{122}Sn , ^{124}Sn) и не содержат его более тяжелых изотопов. При элементной трансмутации осколочного олова его легкие изотопы ($A < 126$) играют роль паразитных поглотителей нейтронов, увеличивая то минимальное количество нейтронов, без которого трансмутация в принципе невозможна. К счастью, эти легкие изотопы олова не способны превратиться в ^{126}Sn в результате захвата нейтронов и каким-либо образом повлиять на процесс его выхода в режим равновесной трансмутации, поскольку период полураспада изотопа ^{125}Sn , ближайшего нейтронного предшественника ^{126}Sn , слишком мал ($T_{1/2}(^{125}\text{Sn}) = 9.6$ сут.). Чтобы канал подпитки ^{126}Sn через $^{125}\text{Sn}(n, \gamma)$ -реакцию мог успешно конкурировать с β -распадом ^{125}Sn , необходимо поднять ППН до величин, недостижимых в современных стационарных ядерных установках: порядка $10^{19} - 10^{20}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$.

Аналогичная ситуация складывается при элементной трансмутации ^{129}I . В состав ПД входят два изотопа йода: стабильный ^{127}I и долгоживущий ^{129}I . При элементной трансмутации осколочного йода легкий изотоп ^{127}I играет роль паразитного поглотителя нейтронов, увеличивая, хоть и незначительно, необходимое количество нейтронов, но практически не влияет на поведение ^{129}I в процессе выхода на равновесный режим. Это объясняется крайне быстрым β -распадом промежуточного изотопа ^{128}I , его период полураспада $T_{1/2}(^{128}\text{I})$ составляет всего 25 мин.

Итак, из семи ДПД для трех изотопов (^{99}Tc , ^{126}Sn и ^{129}I) элементная трансмутация отличается от изотопной только расходом нейтронов, но не характером выхода на равновесный режим. Для этих изотопов оптимальный момент начала трансмутации Δt_0 совпадает с эффективным временем жизни в нейтронном поле трансмутатора $T_{\text{эф}}$ или, что то же самое, со временем накопления равновесного количества ДПД. После такого начала трансмутации количество основного ДПД остается точно на равновесном уровне.

Результаты расчетных оценок оптимального момента начала трансмутации оставшихся четырех ДПД (^{79}Se , ^{93}Zr , ^{107}Pd и ^{135}Cs) приведены ниже.

Элементарная трансмутация ^{79}Se
 $^{77}\text{Se}(n, \gamma)^{78}\text{Se}(n, \gamma)^{79}\text{Se}$

В табл. 2.9 и 2.10 приведены выходы и микросечения, а также полученные на их основе времена накопления равновесного количества изотопов селена для уранового и уран-плутониевого топлива.

Таблица 2.9

Выходы и микросечения изотопов селена из JENDL-3.2

Изотоп	Y(UOX)	Y(MOX)	σ_c (1 эВ)	σ_c (200 кэВ)
^{77}Se	6.69(-5)	4.94(-5)	6.324	0.151
^{78}Se	2.12(-4)	2.01(-4)	6.84(-2)	3.96(-2)
^{79}Se	4.01(-4)	3.37(-4)	7.952	0.102

Таблица 2.10

Время накопления равновесного количества, годы

Изотоп	UOX-МС	MOX-МС	UOX-ЖС	MOX-ЖС
^{77}Se	50	50	210	210
^{78}Se	6110	5780	1055	1000
^{79}Se	68	70	528	543

Во всех четырех вариантах элементарная трансмутация ^{79}Se может быть начата в момент накопления равновесного количества изотопа ^{79}Se . После начала трансмутации количество ^{79}Se уменьшается, проходит через минимум и возвращается к равновесному уровню снизу (рис. 2.2).

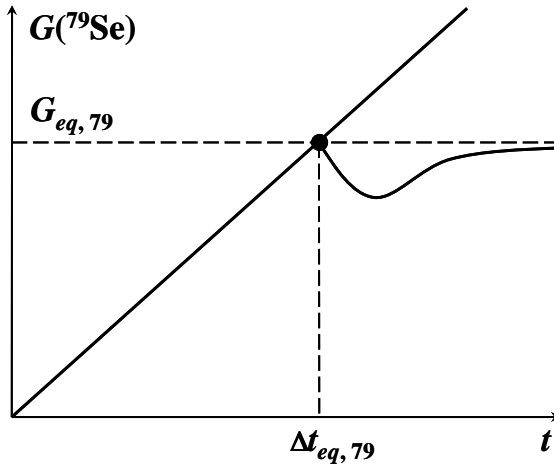
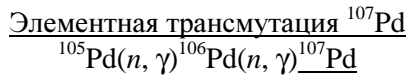


Рис. 2.2. Выход на равновесную элементную трансмутацию ^{79}Se



В табл. 2.11 и 2.12 приведены выходы и микросечения, а также полученные на их основе времена накопления равновесного количества изотопов палладия для уранового и уран-плутониевого топлива.

Таблица 2.11

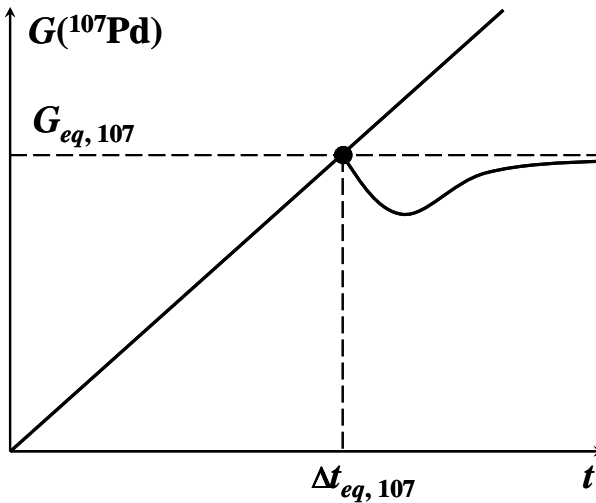
Выходы и микросечения изотопов палладия из JENDL-3.2

Изотоп	Y(UOX)	Y(MOX)	σ_c (1 эВ)	σ_c (200 кэВ)
^{105}Pd	2.19(-2)	4.47(-2)	2.983	0.489
^{106}Pd	1.08(-2)	2.61(-2)	4.74(-2)	0.126
^{107}Pd	1.19(-2)	3.11(-2)	0.346	0.522

Время накопления равновесного количества, годы

Изотоп	УОХ-МС	МОХ-МС	УОХ-ЖС	МОХ-ЖС
^{105}Pd	106	106	65	65
^{106}Pd	2.03(+4)	1.82(+4)	763	683
^{107}Pd	3440	3010	228	199

Во всех четырех вариантах элементная трансмутация ^{107}Pd может быть начата в момент накопления равновесного количества изотопа ^{107}Pd . После начала трансмутации количество ^{107}Pd уменьшается, проходит через минимум и возвращается к равновесному уровню снизу (рис. 2.3).

Рис. 2.3. Выход на равновесную элементную трансмутацию ^{107}Pd

Элементная трансмутация ^{135}Cs
 $^{133}\text{Cs}(n, \gamma) \text{ } ^{134}\text{Cs}(n, \gamma) \text{ } ^{135}\text{Cs}$
 $^{134}\text{Cs}(\beta^-, T_{1/2} = 2.06 \text{ года}) \text{ } ^{134}\text{Ba}$

В табл. 2.13 и 2.14 приведены выходы и микросечения, а также полученные на их основе времена накопления равновесного количества изотопов цезия для уранового и уран-плутониевого топлива.

Таблица 2.13

Выходы и микросечения изотопов цезия из JENDL-3.2

Изотоп	Y(UOX)	Y(MOX)	σ_c (1 эВ)	σ_c (200 кэВ)
^{133}Cs	5.49(-2)	5.39(-2)	5.678	0.160
^{134}Cs	0	0	19.44	0.312
^{135}Cs	1.93(-2)	3.83(-2)	1.351	6.99(-2)

Таблица 2.14

Время накопления равновесного количества, годы

Изотоп	UOX-МС	МОХ-МС	UOX-ЖС	МОХ-ЖС
^{133}Cs	56	56	198	198
^{134}Cs	∞	∞	∞	∞
^{135}Cs	338	286	491	472
$T_{эф}(^{135}\text{Cs})$	235	235	454	454

Во всех четырех вариантах элементная трансмутация ^{135}Cs не может быть начата в момент накопления равновесного количества изотопа ^{135}Cs , потому что после такого начала количество ^{135}Cs увеличивается, проходит через максимум и затем возвращается к равновесному уровню сверху.

Но во всех четырех вариантах элементная трансмутация ^{135}Cs может быть начата в момент, равный эффективному времени жизни ^{135}Cs в нейтронном поле трансмутатора, т.е. несколько ранее момента накопления равновесного количества. В этом случае количество ^{135}Cs хоть и увеличивается, но асимптотически приближается к равновесному уровню снизу (рис. 2.4).

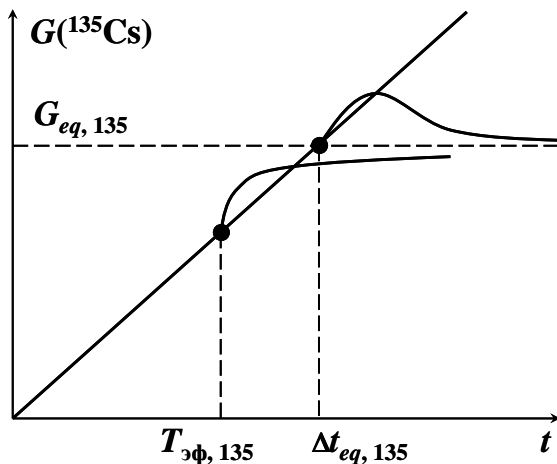


Рис. 2.4. Выход на равновесную элементную трансмутацию ^{135}Cs

$$\frac{\text{Элементная трансмутация } ^{93}\text{Zr}}{^{90}\text{Zr}(n, \gamma) \ ^{91}\text{Zr}(n, \gamma) \ ^{92}\text{Zr}(n, \gamma) \ ^{93}\text{Zr}}$$

В табл. 2.15 и 2.16 приведены выходы и микросечения, а также полученные на их основе времена накопления равновесного количества изотопов циркония для уранового и уран-плутониевого топлива.

Таблица 2.15

Выходы и микросечения изотопов циркония из JENDL-3.2

Изотоп	$Y(\text{UOX})$	$Y(\text{MOX})$	$\sigma_c(1 \text{ эВ})$	$\sigma_c(200 \text{ кэВ})$
^{90}Zr	1.60(-3)	6.67(-4)	1.77(-3)	7.09(-3)
^{91}Zr	4.06(-2)	2.08(-2)	0.198	1.82(-2)
^{92}Zr	4.61(-2)	2.72(-2)	3.64(-2)	2.70(-2)
^{93}Zr	3.34(-2)	2.25(-2)	0.343	2.81(-2)

Время накопления равновесного количества, годы

Изотоп	УОХ-МС	МОХ-МС	УОХ-ЖС	МОХ-ЖС
^{90}Zr	1.79(+5)	1.79(+5)	4480	4480
^{91}Zr	1670	1650	1810	1800
^{92}Zr	1.67(+4)	1.56(+4)	2250	2100
^{93}Zr	3370	2930	4120	3570

В двух вариантах мягкого спектра нейтронов элементная трансмутация ^{93}Zr может быть начата в момент накопления равновесного количества изотопа ^{93}Zr . После начала трансмутации количество ^{93}Zr уменьшается, проходит через минимум и возвращается к равновесному уровню снизу (рис. 2.5).

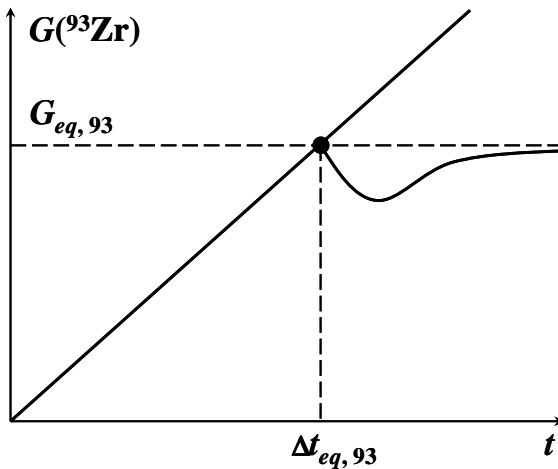


Рис. 2.5. Выход на равновесную элементную трансмутацию ^{93}Zr в мягком спектре

В двух вариантах жесткого спектра элементная трансмутация ^{93}Zr не может быть начата в момент накопления равновесного количества изотопа ^{93}Zr . После такого начала количество ^{93}Zr увеличивается, проходит через максимум и затем возвращается к равновесному уровню сверху. В этих вариантах элементная трансмута-

ция может быть начата только существенно раньше, например в момент накопления равновесного количества изотопа ^{91}Zr (минимальное время накопления равновесного количества среди изотопов циркония). Только после такого начала количество ^{93}Zr увеличится, а затем будет асимптотически приближаться к равновесному уровню снизу (рис. 2.6).

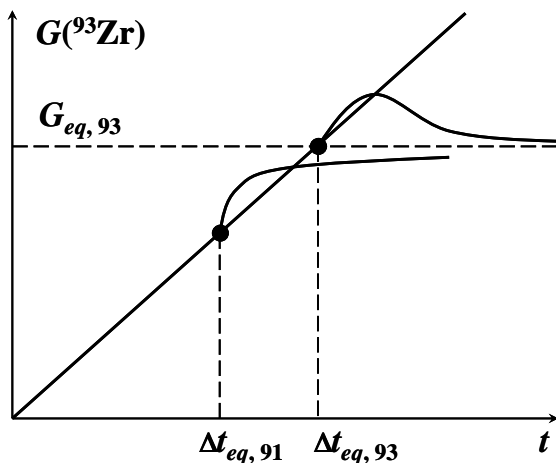


Рис. 2.6. Выход на равновесную элементную трансмутацию ^{93}Zr в жестком спектре

В табл. 2.17 собраны приведенные выше расчетные оценки оптимального момента начала элементной трансмутации ДПД.

Из этих данных можно сделать следующие выводы.

1. Для трех ДПД (^{79}Se , ^{99}Tc и ^{129}I) элементная трансмутация представляется эффективной (или целесообразной), поскольку оптимальный момент ее начала находится в обозримом будущем. Желательно осуществлять трансмутацию этих ДПД в смягченном нейтронном спектре.

2. Для двух ДПД (^{107}Pd и ^{135}Cs) элементную трансмутацию можно считать условно эффективной, так как время ее начала может быть сокращено до приемлемого уровня за счет не очень большого (в 3–4 раза) повышения ППН: до $3 \cdot 10^{15}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ в жестком

спектре для ^{107}Pd и до $4 \cdot 10^{14}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ в мягком спектре для ^{135}Cs .

Таблица 2.17

**Предельное время начала трансмутации (годы)
без превышения равновесного уровня**

Изотоп	УОХ-МС	МОХ-МС	УОХ-ЖС	МОХ-ЖС
$\Delta t_{eq}(^{79}\text{Se})$	68	70	528	543
$\Delta t_{eq}(^{93}\text{Zr})$ в МС	3370	2930	–	–
$\Delta t_{eq}(^{91}\text{Zr})$ в ЖС	–	–	1810	1800
$T_{эф}(^{99}\text{Tc})$	73	73	160	160
$\Delta t_{eq}(^{107}\text{Pd})$	3440	3010	228	199
$T_{эф}(^{126}\text{Sn})$	6300	6300	6300	6300
$T_{эф}(^{129}\text{I})$	73	73	230	230
$T_{эф}(^{135}\text{Cs})$	235	235	454	454

3. Для двух ДПД (^{93}Zr и ^{126}Sn) элементную трансмутацию следует оценить как неэффективную, поскольку время до ее начала может быть сокращено до приемлемого уровня лишь за счет очень большого повышения плотности потока нейтронов: в 30 раз в жестком спектре для ^{93}Zr и в 100 раз в любом спектре для ^{126}Sn .

Параметры, характеризующие возможность и эффективность элементной трансмутации ДПД, приведенные в табл. 2.7 и 2.8, позволяют сделать следующие выводы.

По расходу нейтронов.

1. Нет проблем с обезвреживанием ^{79}Se , ^{99}Tc , ^{126}Sn и ^{129}I в любом трансмутаторе (БР, ЭЛЯУ, ТЯУ). Суммарная потребность в нейтронах для элементной трансмутации этих ДПД составляет ~ 0.07 нейтр./дел., что достижимо даже в БР. При этом доля мощности БР-трансмутаторов в ЯЭС не будет чрезмерно высокой ($\sim 20\%$).

2. Суммарная потребность в нейтронах для элементной трансмутации оставшихся изотопов ^{93}Zr , ^{107}Pd и ^{135}Cs составляет ~ 0.88 – 0.90 нейтр./дел., что недостижимо в БР. Для ^{93}Zr возможность элементной трансмутации в БР открывается лишь при переходе на МОХ-топливо, а для ^{107}Pd такой переход лишь усложняет ситуацию. Для всех этих ДПД доля БР-трансмутаторов в ЯЭС оказыва-

ется неприемлемо высокой. Подходящими трансмутаторами остаются ЭЛЯУ и ТЯУ с явным преимуществом у ТЯУ.

По эффективности трансмутации.

1. Для изотопов ^{79}Se , ^{99}Tc и ^{129}I элементная трансмутация представляется эффективной, поскольку оптимальный момент ее начала находится в обозримом будущем.

2. Для изотопов ^{107}Pd и ^{135}Cs элементную трансмутацию можно считать условно эффективной, так как время ее начала может быть сокращено до приемлемого уровня за счет не очень большого (в 3–4 раза) повышения ППН.

3. Для изотопов ^{93}Zr и ^{126}Sn элементную трансмутацию следует оценить как неэффективную, поскольку время до ее начала может быть сокращено до приемлемого уровня лишь за счет очень большого (до 100 раз) повышения ППН. Повышение ППН существенно более реалистично в ЭЛЯУ и ТЯУ по сравнению с БР, что связано с ограничениями на надежность и безопасность эксплуатации этих установок.

Общие выводы

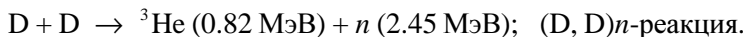
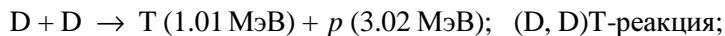
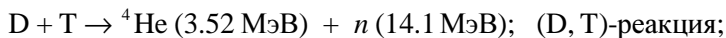
1. Наилучшие условия для элементной трансмутации ДПД способны предоставить бланкетные зоны ЭЛЯУ и ТЯУ со смягченным или резонансным спектром нейтронов.

2. Бланкеты БР со смягченным нейтронным спектром обладают очень ограниченными возможностями по элементной трансмутации ДПД. Это определяется относительно бедным нейтронным балансом и проблемами безопасности эксплуатации БР с зонами, содержащими замедляющие материалы.

2.10. Элементная трансмутация ДПД в ТЯУ

Ранее уже рассматривался потенциал ТЯУ по генерации нейтронов для трансмутации. Было показано, что ТЯУ являются наиболее богатыми источниками нейтронов (4–10 нейтронов в термоядерных реакциях, энергетически эквивалентных одному делению). Что касается спектра термоядерных нейтронов, то он может состоять только из двух энергетических групп: жесткие нейтроны с энергией 14.1 МэВ, образующиеся в (D, T)-реакции, и относительно мягкие нейтроны с энергией 2.45 МэВ, образующиеся в (D, D)-реакции. Рассмотрим этот вопрос более подробно.

В дейтерий-тритиевой плазме основную роль играет первая из следующих трех термоядерных реакций:



Жесткие 14-МэВ нейтроны образуются только в (D, T)-реакции, а сравнительно мягкие 2.45-МэВ нейтроны – только в (D, D)-реакции. Но в одной из двух (D, D)-реакций образуется тритий, который может тут же вступить в реакцию с дейтерием и произвести жесткие 14-МэВ нейтроны. Это значит, что даже в чисто дейтериевой плазме, без трития в исходном составе, все равно будут генерироваться жесткие 14-МэВ нейтроны. С другой стороны, и в равнокомпонентной (D, T)-плазме будут происходить (D, D)-реакции с производством относительно мягких нейтронов. Скорости термоядерных реакций в зависимости от температуры θ и содержания изотопов водорода описываются эмпирическими формулами следующего вида:

$$R_{D,T} = S_{D,T}(\theta) \cdot n_D \cdot n_T \text{ реакций}/(\text{см}^3 \cdot \text{с});$$

$$R_{(D,D)T} = S_{(D,D)T}(\theta) \cdot n_D \cdot n_D / 2 \text{ реакций}/(\text{см}^3 \cdot \text{с});$$

$$R_{(D,D)n} = S_{(D,D)n}(\theta) \cdot n_D \cdot n_D / 2 \text{ реакций}/(\text{см}^3 \cdot \text{с}),$$

где n_D – концентрация дейтерия в плазме, см^{-3} ; n_T – концентрация трития в плазме, см^{-3} ; S – удельные скорости термоядерных реакций, $\text{см}^3/\text{с}$.

Экспериментально показано, что отношения удельных скоростей термоядерных реакций S в расчете на пару ионов таковы, что

$$S_{(D,D)T} / S_{(D,D)n} \approx 1, \quad a \quad S_{D,T} / S_{(D,D)n} \approx 150$$

в широком диапазоне температур. Это значит, что две (D, D)-реакции осуществляются с почти одинаковой удельной скоростью,

причем каждая из них меньше удельной скорости (D, T)-реакции примерно на 2 порядка.

Зная скорости термоядерных реакций, а следовательно, скорости генерации термоядерных нейтронов, можно оценить спектр нейтронов, испускаемых плазмой с различным относительным содержанием дейтерия и трития. Действительно, скорость генерации жестких нейтронов N_{14} и скорость генерации мягких нейтронов $N_{2.45}$ могут быть записаны в следующем виде:

$$N_{14} = R_{D,T} = S_{D,T}(\theta) \cdot n_D \cdot n_T;$$

$$N_{2.45} = R_{(D,D)n} = 0.5 \cdot S_{(D,D)n}(\theta) \cdot n_D \cdot n_D.$$

Тогда долю жесткой компоненты

$$\chi_{14} = \frac{N_{14}}{N_{14} + N_{2.45}} = \frac{1}{1 + 0.5 \cdot \frac{S_{(D,D)n}}{S_{D,T}} \cdot \frac{n_D}{n_T}}$$

можно оценить, как функцию отношения скоростей реакций и состава плазмы n_T/n_D . Нетрудно показать, что при $n_T/n_D = 1$, т.е. в равнокомпонентной (D, T)-плазме, доля жестких 14-МэВ нейтронов превалирует ($\chi_{14} \approx 0.997$), в то время как доля мягких 2.45-МэВ нейтронов пренебрежимо мала ($\chi_{2.45} \approx 0.003$).

В дейтериевой плазме действует канал образования трития в (D, D)T-реакции и канал его сжигания в (D, T)-реакции. Равновесное содержание трития в дейтериевой плазме может быть найдено из уравнения баланса скоростей этих двух каналов, т.е.

$$S_{D,T} \cdot n_D \cdot n_{T,eq} = 0.5 \cdot S_{(D,D)T} \cdot n_D \cdot n_D;$$

$$\frac{n_D}{n_{T,eq}} = 2 \cdot \frac{S_{D,T}}{S_{(D,D)T}}.$$

В этом случае доля жестких нейтронов оказывается равной.

$$\chi_{14} = \frac{1}{1 + 0.5 \cdot \frac{S_{(D,D)n}}{S_{D,T}} \cdot \frac{n_D}{n_{T,eq}}} = \frac{1}{1 + \frac{S_{(D,D)n}}{S_{(D,D)T}}} \approx 0.5.$$

Сравнительно более мягкий спектр нейтронов дейтериевой плазмы предпочтителен для трансмутации ДПД по двум причинам.

Первая из них связана с характером энергетической зависимости микросечений захвата нейтронов у основных ДПД. Как уже показывалось, микросечения захвата повышаются по мере смещения спектра нейтронов в резонансную или тепловую область.

Вторая причина связана с величиной тока нейтронов из плазмы в бланкет ТЯУ. Равнокомпонентная (D, T)-плазма является источником в основном жестких нейтронов с энергией 14 МэВ. Они приводят к радиационным повреждениям в первой стенке плазменной камеры, наиболее напряженного и незаменимого элемента ТЯУ. Эти повреждения выражаются в смещениях атомов в кристаллической решетке. Многие проекты ТЯУ предполагают использование в первой стенке нержавеющей сталей, состоящих в основном из железа, хрома, никеля и молибдена. Сечения набора повреждающей дозы этими элементами велики в области высоких энергий и малы в области низких энергий. Более мягкий спектр нейтронов, испускаемых дейтериевой плазмой, обеспечивает меньшую скорость набора повреждающей дозы по сравнению с (D, T)-плазмой. Если связывать ток нейтронов из плазмы с величиной повреждающей дозы, то при равных повреждающих дозах дейтериевая плазма позволяет заметно увеличить ток нейтронов из плазмы, а следовательно, и повысить ППН в бланкете.

Однако зажигание термоядерных реакций в дейтериевой плазме требует ее разогрева до температур, существенно более высоких, чем в (D, T)-плазме. Рассмотрим условия зажигания термоядерных реакций в дейтерий-тритиевой плазме разного состава, т.е. разного соотношения между концентрациями дейтерия и трития.

Для возникновения самоподдерживающейся термоядерной реакции в дейтерий-тритиевой плазме необходимо соблюдение теплового баланса, т.е. скорость тепловыделения в плазме должна быть равна скорости ее охлаждения:

$$Q(\text{разогрев}) = Q(\text{охлаждение}).$$

Что касается скорости разогрева плазмы, то ее можно рассчитать, зная скорости термоядерных реакций R и энергии продуктов реакции, оставляющих свою энергию в плазме. Это ядра гелия, трития и протоны. Нейтроны уходят из плазмы без энергетических потерь, поскольку они незаряженные частицы. Скорость разогрева плазмы можно записать в следующем виде:

$$\begin{aligned} Q(\text{разогрев}) &= \\ &= R_{D,T} \cdot E_{\text{He4}} + R_{(D,D)T} \cdot (E_T + E_P) + R_{(D,D)n} \cdot E_{\text{He3}} = \\ &= S_{D,T} \cdot n_D \cdot n_T \cdot E_{\text{He4}} + 0.5 \cdot S_{(D,D)T} \cdot n_D^2 \cdot (E_T + E_P) + \\ &\quad + 0.5 \cdot S_{(D,D)n} \cdot n_D^2 \cdot E_{\text{He3}}. \end{aligned}$$

Поскольку $S_{(D,D)T} \approx S_{(D,D)n}$, то

$$\begin{aligned} Q(\text{разогрев}) &= \\ &= S_{D,T} \cdot n_D \cdot n_T \cdot E_{\text{He4}} + 0.5 \cdot S_{(D,D)T} \cdot n_D^2 \cdot (E_T + E_P + E_{\text{He3}}), \end{aligned}$$

где $E_{\text{He4}} = 3.52$ МэВ, $E_T = 1.01$ МэВ, $E_P = 3.02$ МэВ, $E_{\text{He3}} = 0.82$ МэВ.

Существуют эмпирические формулы, описывающие температурные зависимости удельных скоростей термоядерных реакций. Общий вид этих формул может быть записан как:

$$S(\theta) = a \cdot \frac{\exp\left(-\frac{b}{\theta^{1/3}}\right)}{\theta^{2/3}},$$

где θ – температура плазмы; a, b – константы, разные для (D, T)- и (D, D)-реакций.

Теперь рассмотрим процессы, ведущие к охлаждению плазмы. Основное влияние на охлаждение плазмы оказывают два процесса.

1. *Тормозное излучение электронов* в кулоновском поле ионизированных атомов дейтерия и трития.

Формула для расчета теплоотода тормозным излучением может быть записана в следующем виде:

$$Q_{\text{торм}}(\theta) = a_{\text{торм}} \cdot \theta^{1/2} \cdot (n_D + n_T)^2 \cdot (1 + \epsilon_{\text{прим}} \cdot Z_{\text{прим}}^2),$$

где $\epsilon_{\text{прим}}$ – доля примеси; $Z_{\text{прим}}$ – заряд ядра примеси.

2. *Рекомбинационное излучение электронов*, захватываемых ионами примесей.

Электроны, при их захвате примесями, попадают на возбужденные уровни соответствующих ядер. Затем это возбуждение снимается переходами на другие электронные уровни и сопровождается рекомбинационным излучением.

Формула для расчета теплоотода рекомбинационным излучением может быть записана в следующем виде:

$$Q_{\text{рекомб}}(\theta) = a_{\text{рекомб}} \cdot \theta^{-1/2} \cdot (n_D + n_T)^2 \cdot \epsilon_{\text{прим}} \cdot Z_{\text{прим}}^4;$$

где $\epsilon_{\text{прим}}$ – доля примеси; $Z_{\text{прим}}$ – заряд ядра примеси.

Графически условие зажигания термоядерной реакции в плазме, т.е. условие баланса скоростей разогрева и охлаждения плазмы, означает пересечение двух этих зависимостей

$$Q_{\text{разогрев}}(\theta) = Q_{\text{охлаждение}}(\theta),$$

показанное на рис. 2.7.

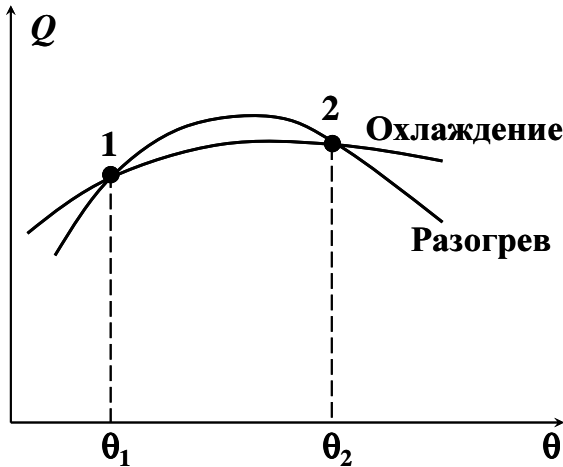


Рис. 2.7. Условие зажигания термоядерной реакции

Точка 1 на этом рисунке соответствует температуре инициирования термоядерной реакции θ_{ign} , а точка 2 – температуре стабильного поддержания реакции. Отличие этих точек определяется разными температурными коэффициентами. Любое отклонение от точки 1 уводит плазму от θ_{ign} (повышение температуры приводит к усилению разогрева и наоборот, т.е. положительный температурный эффект). В то же время любое отклонение от точки 2 возвращает плазму в исходное состояние (повышение температуры приводит к ослаблению разогрева и наоборот, т.е. отрицательный температурный эффект).

Математически условие зажигания термоядерной реакции:

$$S_{D,T}(\theta_{ign}) \cdot n_D \cdot n_T \cdot E_{He4} + 0.5 \cdot S_{(D,D)T}(\theta_{ign}) \cdot n_D^2 \cdot (E_T + E_P + E_{He3}) = (n_D + n_T)^2 \cdot [a_{горм} \cdot \theta_{ign}^{1/2} \cdot (1 + \epsilon_{прим} \cdot Z_{прим}^2) + a_{рекомб} \cdot \theta_{ign}^{-1/2} \cdot \epsilon_{прим} \cdot Z_{прим}^4].$$

Разделив левую и правую часть уравнения на n_D^2 , получим:

$$S_{D,T}(\theta_{ign}) \cdot \frac{n_T}{n_D} \cdot E_{He4} + 0.5 \cdot S_{(D,D)T}(\theta_{ign}) \cdot (E_T + E_P + E_{He3}) =$$

$$= \left(1 + \frac{n_T}{n_D} \right)^2 \cdot \left[a_{\text{торм}} \cdot \theta_{ign}^{1/2} \cdot (1 + \epsilon_{\text{прим}} \cdot Z_{\text{прим}}^2) + a_{\text{рекомб}} \cdot \theta_{ign}^{-1/2} \cdot \epsilon_{\text{прим}} \cdot Z_{\text{прим}}^4 \right].$$

Такая запись означает, что при фиксированном составе плазмы (т.е. при известном n_T/n_D) можно, решив это уравнение, найти температуру зажигания термоядерной реакции.

Вспомним, что удельная скорость (D, T)-реакции $S_{D,T}$ примерно на два порядка выше удельной скорости (D, D)T-реакции, а энергии, выделяющиеся в плазме при этих реакциях, вполне сопоставимы, так как

$$E_{He4} = 3.52 \text{ МэВ}; \quad E_T + E_P + E_{He3} = 4.85 \text{ МэВ}.$$

Следовательно, в равнокомпонентной дейтерий-тритиевой плазме (т.е. при $n_T/n_D = 1$) основную роль в разогреве плазмы играет (D, T)-реакция. В этом случае температура зажигания (D, T)-плазмы оказывается равной 4–5 кэВ (1 эВ = 11600 К). В случае же чисто дейтериевой плазмы ($n_T/n_D = 0$) скорость ее разогрева резко падает, и температура зажигания (D, D)-плазмы оказывается 40–50 кэВ, т.е. на порядок выше, чем для (D, T)-плазмы.

Зависимость температуры зажигания термоядерной реакции θ_{ign} в (D, T)-плазме от ее состава n_T/n_D показана на рис. 2.8 и имеет следующие особенности. Минимальное значение θ_{ign} (4–5 кэВ) соответствует равнокомпонентной (D, T)-плазме ($n_T/n_D = 1$). По мере снижения содержания трития и приближения к чисто дейтериевой плазме вклад в разогрев плазмы от (D, T)-реакции постепенно уменьшается и при $n_T/n_D = 0.01$ становится сопоставимым с вкладом от (D, D)-реакции. В этой точке температура зажигания термоядерной реакции составляет 10–15 кэВ. Затем основная роль в разогреве плазмы переходит к (D, D)-реакциям. В интервале содержания трития n_T/n_D от 0.01 до нуля происходит основное повышение температуры зажигания от 10–15 до 40–50 кэВ.

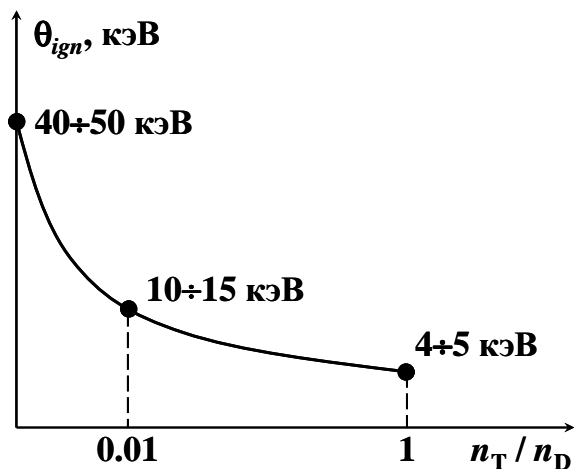


Рис. 2.8. Зависимость температуры зажигания (D, T)-реакции от состава (D, T)-плазмы

Итак, можно сделать некоторые промежуточные выводы.

1. Только уменьшив содержание трития в (D, T)-плазме на два порядка, можно выйти на примерно равное тепловыделение в плазме от (D, T)- и (D, D)-реакций.

2. Умеренное снижение содержания трития в (D, T)-плазме не приводит к сильному росту температуры зажигания термоядерных реакций. Наиболее резкое увеличение температуры зажигания наступает при содержании трития ниже 1 %.

3. (D, T)-плазма с уменьшенным содержанием трития может оказаться перспективной для трансмутации ДПД, поскольку она:

а) создает более мягкий спектр термоядерных нейтронов;

б) обеспечивает меньшую скорость набора повреждающей дозы в первой стенке и, как следствие, возможность получения более высоких ППН в бланкете ТЯУ за счет увеличенной интенсивности источника термоядерных нейтронов;

в) ослабляет требования к воспроизводству трития в бланкете ТЯУ; как следствие, литийсодержащие зоны воспроизводства трития могут быть частично заменены зонами трансмутации ДПД.

Единственным, но важным преимуществом жестких нейтронов с энергией 14 МэВ является их способность размножаться в

(n, xn)-реакциях тяжелых элементов, например свинца. К счастью, таких нейтронов даже в чисто дейтериевой плазме не менее 50 %.

Подводя итоги, можно сформулировать некоторые общие положения по структуре blankets ТЯУ для трансмутации ДПД:

1) предпочтительно использование (D, T)-плазмы с пониженным содержанием трития в качестве нейтронного источника;

2) композиция blankets должна включать:

а) зоны размножения жестких термоядерных нейтронов в (n, xn)-реакциях тяжелых элементов, например свинца;

б) зоны замедления для смягчения спектра нейтронов;

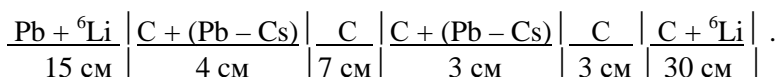
в) зоны воспроизводства трития в ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ -реакции, т.е. литий-содержащие зоны (только в случае (D, T)-плазмы);

г) наконец, зоны трансмутации, содержащие ДПД и, возможно, замедлитель для дополнительного смягчения спектра.

В качестве примеров рассмотрим варианты blankets ТЯУ, предназначенных для элементной трансмутации осколочного цезия и осколочного палладия.

2.10.1. Элементная трансмутация цезия

Рассматривалась следующая структура blankets ТЯУ:



Первая зона, содержащая 99 % свинца и 1 % ${}^6\text{Li}$, предназначена для размножения нейтронов в (n, xn)-реакциях свинца и для воспроизводства трития в ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ -реакции. Одновременно литий поглощает нейтроны, мигрирующие из глубины blankets в сторону первой стенки, и, тем самым, снижает скорость набора повреждающей дозы в ней.

В центральной части blankets расположены две зоны трансмутации цезия, разделенные слоем графита. Эти зоны содержат 50 % графита и 50 % свинцово-цезиевого сплава. Последняя зона blankets, состоящая на 90 % из графита и на 10 % из ${}^6\text{Li}$, предназначена для воспроизводства трития и для возвращения нейтронов утечки в

бланкет. Приведенная схема соответствует равнокомпонентной (D, T)-плазме.

При переходе на уменьшенное содержание трития в плазме (условное обозначение (DDT)-плазма) содержание лития в бланкете пропорционально уменьшалось, а содержание цезия увеличивалось. Как следствие, повышалась доля нейтронов, поглощенных цезием.

В табл. 2.18 приведены результаты расчетных оценок параметров трансмутации элементного цезия в такой ТЯУ.

Таблица 2.18

Параметры ТЯУ для трансмутации элементного цезия

Параметр	Тип плазмы		
	D, T	DDT	D, D
n_T/n_D	1.0	0.01	0
θ_{ign} , кэВ	4.5	13.0	50.0
Поглощение нейтронов в первой стенке, %	10	10	10
Поглощение нейтронов литием, %	70	50	30
Поглощение нейтронов цезием, %	20	40	60
$T_{эф}({}^{135}\text{Cs})$, годы	48	40	35

2.10.2. Элементная трансмутация палладия

Рассматривалась структура бланкета ТЯУ, аналогичная описанной ранее для трансмутации цезия. Основные отличия заключаются в замене графитового замедлителя бериллием; палладий использован в металлическом виде, теплоноситель – жидкий свинец. В табл. 2.19 приведены результаты расчетных оценок трансмутации элементного палладия в такой ТЯУ.

Таблица 2.19

Параметры ТЯУ для трансмутации элементного палладия

Параметр	Тип плазмы		
	D, T	DDT	D, D
n_T/n_D	1.0	0.01	0
θ_{ign} , кэВ	4.5	13.0	50.0
Поглощение нейтронов в первой стенке, %	9	9	9
Поглощение нейтронов литием, %	61	43	35
Поглощение нейтронов палладием, %	30	48	56
$T_{эф}(^{107}\text{Pd})$, годы	43	48	44

Видно, что в обоих случаях, т.е. при трансмутации элементного цезия и элементного палладия, переход на плазму с пониженным содержанием трития приводит к благоприятным последствиям.

Во-первых, в нужную сторону изменяется баланс нейтронов, т.е. возрастает доля нейтронов, поглощаемых трансмутируемым ДПД, за счет снижения доли нейтронов, поглощаемых литием.

Во-вторых, нейтронное поле в зонах трансмутации остается таким, что эффективное время жизни ДПД не превышает 50 лет.

В-третьих, существенное снижение содержания трития в плазме (примерно в 100 раз) приводит лишь к 3-кратному повышению температуры зажигания термоядерных реакций.

В принципе, аналогичные результаты могут быть получены и для элементной трансмутации осколочного циркония.

Если вернуться к табл. 2.8, в которой приведены количества нейтронов, требующиеся для элементной трансмутации ДПД, то видно, что рассмотренные выше ДПД (цезий, палладий и цирконий) дают основной вклад в общую потребность в нейтронах: 0.88 нейтрона на деление из 0.95 в случае UOX-топлива и 0.90 из 0.97 нейтрона на деление в случае MOX-топлива. Элементная трансмутация остальных ДПД (селен, технеций, олово и йод) требует лишь 0.07 нейтрона на деление. Это вполне под силу бланкетам БР и ЭЛЯУ.

2.11. Элементная трансмутация ДПД в ЭЛЯУ

Как уже говорилось, такие осколочные элементы, как селен, технеций и йод, могут быть трансмутированы в бланкете БР со смягченным нейтронным спектром. Их трансмутация не требует большого расхода нейтронов, а микросечения захвата нейтронов основных радионуклидов ^{79}Se , ^{99}Tc и ^{129}I достаточно велики, чтобы обеспечить выход на равновесный режим в обозримом будущем при вполне достижимых ППН.

Остается проблема элементной трансмутации осколочного олова. Рассмотрим возможность трансмутации осколочного олова в бланкете ЭЛЯУ. Микросечение захвата тепловых нейтронов ($E_n = 0.025$ эВ) изотопом ^{126}Sn составляет ~ 0.3 б. Чтобы эффективное время жизни ^{126}Sn в нейтронном поле было ~ 50 лет, плотность потока тепловых нейтронов ϕ должна составлять примерно $2 \cdot 10^{15}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$. Такие плотности потока могут быть достигнуты в бланкете ЭЛЯУ при соблюдении определенных условий.

Например, для получения высокой ППН необходимо, чтобы общее поглощение в бланкете и утечка нейтронов из него были малы. В то же время для эффективного использования нейтронов необходимо, чтобы доминирующим поглощением нейтронов было их поглощение в трансмутируемом ДПД, т.е. конструкционные материалы, теплоноситель и замедлитель должны состоять из элементов с низким сечением захвата нейтронов. То же самое относится и к материалам, входящим в состав мишени. Добиться этого совсем непросто, особенно при малых сечениях захвата нейтронов трансмутируемыми ДПД.

Структура высокопоточного бланкета ЭЛЯУ для трансмутации осколочного олова может выглядеть следующим образом. Мишень и бланкет ЭЛЯУ размещены в стальном бассейне, заполненном свинцом. В центре комплекса расположена свинцовая мишень, отделенная трубной конструкцией от бланкета для организации интенсивного теплоотвода от мишени.

Свинец обогащен изотопом ^{208}Pb . Как известно, ядро ^{208}Pb является дважды магическим с замкнутыми нейтронными и протонными оболочками, что обуславливает рекордно низкое сечение захвата тепловых нейтронов (~ 0.5 мб). Для сравнения, у природного

свинца – 170 мб. В качестве замедлителя выбран графит, поскольку его сечение захвата тепловых нейтронов мало (~ 3.5 мб). Таким образом, выбор ^{208}Pb в качестве теплоносителя и графита в качестве замедлителя позволяет сформировать в зоне трансмутации поток тепловых нейтронов с высокой плотностью.

Нейтроны, генерируемые в мишени, сначала замедляются в реакциях неупругого рассеяния в буферном слое свинца. Затем тепловой спектр формируется за счет замедления нейтронов графитом в зоне трансмутации. За зоной трансмутации размещается графитовый отражатель. Нейтроны, прошедшие через отражатель и имеющие пониженную ППН, могут утилизироваться во второй зоне трансмутации, где облучаются ДПД со значимым сечением захвата, например технеций или йод. Это позволяет использовать нейтроны утечки, и снизить их поток на корпус бассейна ЭЛЯУ.

Оценки показали, что при токе пучка протонов $I_p = 200$ мА и энергии $E_p = 1.5$ ГэВ плотность потока тепловых нейтронов в таком blanket составляет примерно $5 \cdot 10^{15}$ нейтр./($\text{см}^2 \cdot \text{с}$). Сечение захвата ^{126}Sn , усредненное по спектру нейтронов, составило около 0.1 б, а эффективное время жизни ^{126}Sn в нейтронном поле – 65 лет. При этом в трансмутируемом олове поглощается около 50 % нейтронов, попадающих в blanket.

Если же вместо ^{208}Pb использовать природный свинец, то плотность потока тепловых нейтронов в зоне трансмутации снижается в 3 раза, поскольку сечение захвата тепловых нейтронов природным свинцом существенно больше, чем у ^{208}Pb (170 мб против 0.5 мб). Эффективное время жизни ^{126}Sn в нейтронном поле возрастает до 240 лет. Одновременно снижается доля нейтронов, поглощаемых оловом, в нем поглощается лишь 17 % нейтронов, генерируемых в мишени.

Контрольные вопросы

1. Назовите основные условия осуществимости и эффективности нейтронной трансмутации ДПД.
2. Чем отличается элементная трансмутация ДПД от изотопной?
3. Как рассчитать расход нейтронов при изотопной и элементной трансмутации ДПД?
4. Опишите процесс выхода на режим равновесной изотопной трансмутации ДПД.
5. Каковы особенности выхода на режим равновесной элементной трансмутации ДПД?
6. Сравните ядерные реакторы, электроядерные и термоядерные установки по их возможностям трансмутировать ДПД.

Глава 3 НЕЙТРОННАЯ ТРАНСМУТАЦИЯ МЛАДШИХ АКТИНИДОВ

3.1. Введение

Наряду с основными актинидами (Th, U и Pu), содержащимися в ядерном топливе, в процессе облучения в нем накапливаются так называемые «младшие» актиниды (МА): ^{237}Np и трансплутониевые элементы (Am, Cm, Bk, Cf и т.д.). На рис. 3.1 приведена схема образования МА в топливе ядерных реакторов.

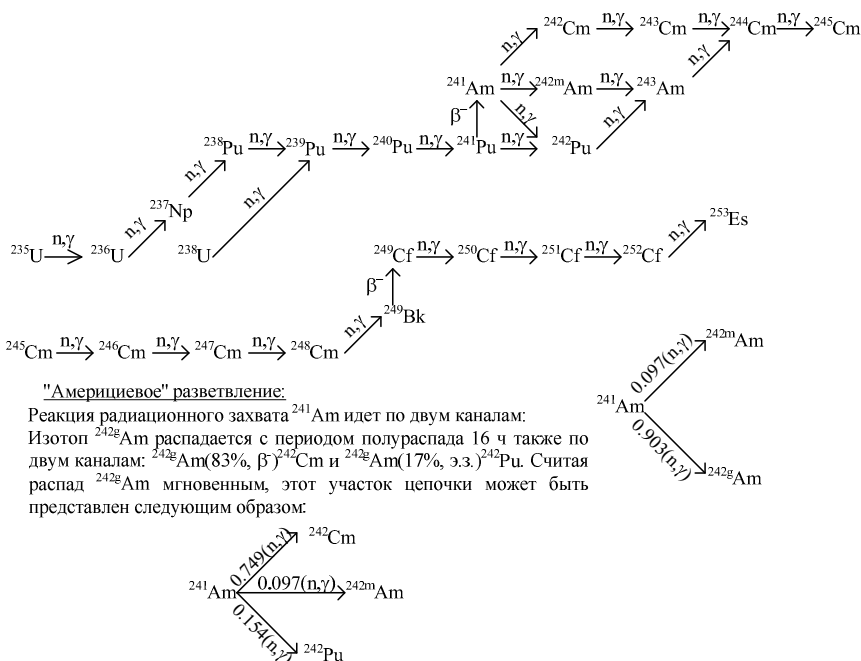
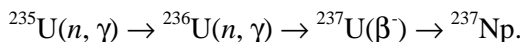


Рис. 3.1. Схема образования младших актинидов

Основным каналом накопления ^{237}Np в реакторе является цепочка реакций:



Остальные МА накапливаются в ядерном топливе в результате последовательных захватов нейтронов изотопами плутония.

Химические свойства МА близки к свойствам редкоземельных элементов ПД. При химической переработке ОЯТ не было стимула выделять МА в виде отдельной фракции, подобно плутонию. Поэтому, с самого начала работы первых ядерных реакторов, при переработке ОЯТ, МА оставались в основной массе ПД, составляя РАО высокой удельной активности.

Однако МА являются токсичными нуклидами с длительными периодами полураспада, интенсивной генерацией нейтронов спонтанного деления и тепловыделения. Они во многом определяют уровень остаточного тепловыделения при длительном хранении ОЯТ. Если ОЯТ будут захоронены без переработки, то после тысячи лет выдержки МА будут определять тепловую нагрузку могильника. Поэтому предпочтительным является выделение МА из ОЯТ и их утилизация в ядерных установках.

В табл. 3.1 и 3.2 приведены нейтронно-физические свойства МА и скорости их накопления в энергетических легководных реакторах.

Таблица 3.1

Некоторые физические характеристики МА

МА	$T_{1/2}(\alpha)$, годы	Сечения радиационного захвата нейтронов, б			Сечения деления, б		
		0.025 эВ	I_γ	спектр деления	0.025 эВ	I_f	спектр деления
^{237}Np	$2.1 \cdot 10^6$	181	658	0.2	0.02	0.21	1.29
^{241}Am	432	615	1444	0.32	3.18	9.77	1.32
$^{242\text{m}}\text{Am}$	152	1650	230	—	6950	1800	—
^{243}Am	7380	76	1811	0.25	0.05	1.19	1.10
^{242}Cm	0.44	16.5	115	0.03	5.0	4.5	1.65
^{243}Cm	28.5	113	284	0.02	432	1771	2.17
^{244}Cm	18.1	14.4	633	0.10	1.0	11.9	1.61
^{245}Cm	8500	349	123	0.05	2132	748	1.98

Таблица 3.2

Накопление МА в легководных реакторах, кг/ГВт(э)-год

Изотопы	УОХ-топливо	МОХ-топливо
^{237}Np	20.4	15.1
^{241}Am	1.3	6.0
^{243}Am	2.5	21.8
^{244}Cm	0.9	15.6
^{245}Cm	0.06	1.7
Всего	25.2	60.2

Из этих данных можно сделать следующие выводы.

1. МА состоят из трех фракций: нептуниевой, состоящей только из ^{237}Np ; америциевой, состоящей из ^{241}Am и ^{243}Am ; и кюриевой, состоящей из ^{244}Cm и ^{245}Cm . Содержание других трансплутониевых элементов в МА пренебрежимо мало.

2. Америциевая фракция содержит незначительное количество изотопа $^{242\text{m}}\text{Am}$ из-за большого сечения деления и захвата нейтронов в тепловой области. По аналогичной причине в кюриевой фракции практически нет ^{243}Cm и всех изотопов кюрия с $A > 245$, а ^{242}Cm отсутствует из-за быстрого α -распада ($T_{1/2} = 163$ сут.).

3. Все МА α -активны и могут делиться под действием нейтронов.

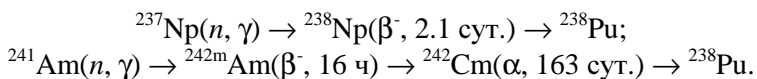
4. В цепочке образования и трансмутации МА, по мере увеличения A и Z , происходит постепенный переход от β -распадов к α -распадам и спонтанному делению. При α -распаде МА превращаются в более легкие изотопы нептуния и плутония, т.е. МА не уничтожаются, а лишь возвращаются на предшествовавшие звенья цепочки изотопных превращений (защикливание).

5. Реально МА могут уничтожаться только в реакции деления в нейтронном поле. Таким образом, обезвреживание МА может быть осуществлено в два этапа: а) сначала деление МА и превращение их в ПД; б) затем нейтронная трансмутация образовавшихся ПД.

6. Делительная трансмутация МА, в принципе, может быть реализована в ядерных установках с различным нейтронным спектром. В тепловом или резонансном спектре интенсивный захват нейтронов превращает МА в хорошо делящиеся изотопы (^{239}Pu , $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{245}Cm). В быстром спектре МА слабо поглощают нейтроны, но их сечения деления достаточно велики для эффективного уничтожения МА в бланкетах ЭЛЯУ и ТЯУ.

3.2. Потенциальная роль МА в защите плутония от распространения

При решении вопроса о целесообразности трансмутации МА нужно учитывать реальную возможность их использования для усиления режима нераспространения ядерных материалов. Дело в том, что при нейтронном облучении ^{237}Np и ^{241}Am происходит накопление изотопа ^{238}Pu через следующие реакции:



Этот изотоп плутония обладает рядом свойств, ценных для укрепления режима нераспространения ядерного оружия. Во-первых, ^{238}Pu – это интенсивный источник нейтронов спонтанного деления, примерно в 2.5 раза более интенсивный, чем ^{240}Pu . Повышенное содержание ^{238}Pu в плутонии приведет к возрастанию фона нейтро-

нов спонтанного деления и к преждевременному началу цепной реакции деления в ядерном взрывном устройстве (ЯВУ). Вторых, ^{238}Pu – это интенсивный источник тепла из-за сравнительно быстрого α -распада ($T_{1/2} = 87.7$ лет). Его удельное тепловыделение составляет 570 Вт/кг. Если плутоний содержит достаточно большое количество изотопа ^{238}Pu , то его тепловыделение затруднит обращение с ЯВУ, требуя непрерывного теплоотвода.

В табл. 3.3 приведены некоторые физические характеристики оружейного плутония (WGПу), реакторного плутония (RГПу) и, как пример, оружейного плутония, в который введено 30 % ^{238}Pu . Видно, что добавление 30 % ^{238}Pu к WGПу увеличивает нейтронный фон примерно в 14 раз, и он становится даже вдвое больше, чем в RГПу. Тепловыделение плутония при этом возрастает в 75 раз и становится в 13 раз больше, чем в RГПу.

Таблица 3.3

Генерация нейтронов спонтанного деления и тепла в плутонии

Категория плутония / изотоп плутония	WGПу	RГПу	WGПу + 30 % ^{238}Pu
	изотопный состав плутония, %		
^{238}Pu	0.01	1.6	30.0
^{239}Pu	93.82	58.0	65.62
^{240}Pu	5.8	22.4	4.12
^{241}Pu	0.35	12.0	0.25
^{242}Pu	0.02	6.0	0.01
Генерация нейтронов спонтанного деления, 10^5 нейтр./(кг·с)	0.6	3.75	8.2
Тепловыделение, Вт/кг	2.28	13.1	172

И, наконец, в-третьих, ^{238}Pu – это изотоп плутония и не может быть выделен из его состава простыми химическими процедурами. Удаление изотопа ^{238}Pu из состава плутония возможно лишь при использовании сложных и дорогостоящих технологий изотопного разделения. Причем исходный материал для такой операции будет радиоактивным, а различие в массах разделяемых изотопов ^{238}Pu и ^{239}Pu составляет лишь 1 а.е.м., т.е. в 3 раза меньше, чем при изо-

топном разделении урана. Эти факторы могут сделать изотопное разделение денатурированного плутония (плутоний со специально введенной добавкой ^{238}Pu) неприемлемо сложным, а денатурированный плутоний непригодным для использования в ЯВУ. Если же денатурированный плутоний будет использоваться в окисной форме в составе МОХ-топлива, то (α, n) -реакция на кислороде повысит генерацию нейтронов еще в 6 раз.

Таким образом, плутоний с высоким содержанием ^{238}Pu может стать материалом, непригодным для создания ЯВУ. Недаром МАГАТЭ решило, что плутоний, содержащий более 80 % изотопа ^{238}Pu , исключен из системы международных гарантий по контролю за нераспространением ядерного оружия.

Вышеприведенные соображения относятся к ^{237}Np и ^{241}Am . Эти изотопы могут либо вводиться в состав МОХ-топлива с целью денатурации плутония в процессе работы реактора, либо облучаться в специализированной ядерной установке для накопления ^{238}Pu . Что касается ^{243}Am , то он будет использоваться в составе Ам-фракции вместе с ^{241}Am . Под действием нейтронного облучения ^{243}Am будет превращаться в изотопы кюрия. Доля кюриевой фракции в МА составляет 4 % при использовании УОХ-топлива и 29 % при использовании МОХ-топлива. Переход ^{243}Am в изотопы кюрия при облучении Ам-фракции в составе МОХ-топлива приведет к тому, что доля Cm-фракции в МА возрастет с 29 до 65 %.

Изотопы кюрия являются интенсивными источниками нейтронов спонтанного деления, а ^{244}Cm к тому же и интенсивный источник тепла (2800 Вт/кг). Содержание ^{244}Cm в свежем топливе на уровне 0.5–1 % поднимает его тепловыделение до 20–30 Вт/кг, что в настоящее время рассматривается как верхний предел внутреннего тепловыделения, при котором еще возможны транспортные операции с ОТВС легководных реакторов.

Таким образом, если использовать МА для защиты плутония от неконтролируемого распространения, то, видимо, потребуется отделять и трансмутировать только кюриевую фракцию.

3.3. Физические особенности трансмутации кюриевой фракции

Как уже отмечалось, из-за интенсивного тепловыделения ^{244}Cm кюриевая фракция может использоваться лишь в сильно разбавленном виде. Это значит, что при сжигании в ядерных реакторах только низкое содержание кюрия в топливе может быть приемлемо, а при длительном хранении необходима фрагментация материала для надежного теплоотвода. Нужно также учитывать, что хранящийся материал имеет высокий фон нейтронов спонтанного деления, а в результате α -распада ^{244}Cm в кюрии будет накапливаться гелий, объем которого при нормальных условиях в 1000 раз больше объема кюрия.

После долгой выдержки (более ста лет) ^{244}Cm распадется в ^{240}Pu . И здесь встанет проблема, что делать с накопившимся ^{240}Pu . Если его продолжать выдерживать, то до практически полного распада ($T_{1/2} = 6450$ лет) потребуется еще около ста тысяч лет. Для сжигания ^{240}Pu в ядерных реакторах придется его сначала извлекать из материала, где он образовался и где его концентрация низка.

Пока еще не выработано однозначной стратегии обезвреживания кюриевой фракции. Далее будет предложена концепция установки для эффективного ее сжигания. МА могут быть трансмутированы в бланкетах БР, ЭЛЯУ и ТЯУ. Наиболее промышленно освоенными, безусловно, являются БР. Однако безопасность этих реакторов существенно ухудшается при загрузке в них МА.

3.4. Запаздывающие нейтроны деления МА

Величина эффективной доли запаздывающих нейтронов деления очень важна для безопасности и управляемости ядерных реакторов. Доли запаздывающих нейтронов, образующихся при делении МА, невелики и менее изучены, чем для традиционно используемых делящихся материалов ^{235}U и ^{239}Pu . Данные по выходах запаздывающих нейтронов для основных делящихся и воспроизводящих изотопов представлены в табл. 3.4.

Таблица 3.4

Выходы запаздывающих нейтронов

Нуклид	Выход запаздывающих нейтронов (на один нейтрон деления)	
	деление тепловыми нейтронами	деление быстрыми нейтронами
^{232}Th	–	0.024
^{233}U	0.0038	0.0033
^{235}U	0.0065	0.0065
^{238}U	–	0.018
^{237}Np	–	0.0045
^{239}Pu	0.0026	0.0026
^{241}Am	–	0.0015
^{243}Am	–	0.0023
^{244}Cm	–	0.0012
^{245}Cm	0.0018	–

Видно, что выход запаздывающих нейтронов при делении МА заметно меньше, чем при делении ^{239}Pu (за исключением ^{237}Np). Известно, что спектр запаздывающих нейтронов мягче, чем спектр мгновенных нейтронов деления, и поэтому запаздывающие нейтроны оказывают меньшее влияние на развитие цепной реакции деления в зоне, содержащей МА. Иными словами, эффективная доля запаздывающих нейтронов в этом случае будет еще ниже. Ослабление этого недостатка может быть компенсировано добавлением в МА традиционных делящихся нуклидов с повышенной долей запаздывающих нейтронов, например ^{235}U . Однако скорость сжигания МА в таком реакторе заметно снизится.

3.5. Подкритические системы для сжигания МА

В качестве таких систем могут выступать ЭЛЯУ или ТЯУ, в blankets которых размещаются МА. Общим для этих систем является, во-первых, подкритический blanket, который ни при каких аварийных условиях не может достигать критичности, и, во-

вторых, наличие мощного источника нейтронов для поддержания цепной реакции деления.

Будем рассматривать ЭЛЯУ с подкритическим бланкетом, в котором размещены трансмутируемые МА. Бланкет окружает центральную мишень, бомбардируемую ускоренными протонами. Протоны инициируют в материале мишени сложные каскадные реакции, сопровождающиеся испусканием большого количества нейтронов (по экспериментальным данным, если энергия протонов $E_p = 1600$ МэВ, то каждый протон, бомбардирующий свинцовую мишень, способен произвести около 55 нейтр., т.е. $C_p = 55$). Нейтроны, генерируемые в мишени, облучают бланкет ЭЛЯУ и трансмутируют МА.

Подкритичность бланкета гарантирует его безопасность по отношению к любым реактивным авариям. В настоящее время считается, что бланкет с эффективным коэффициентом размножения нейтронов $K_{эф} \approx 0.95$ обладает достаточной степенью безопасности относительно таких аварий.

Возможности ЭЛЯУ по трансмутации делящихся материалов вообще и МА, в частности, можно приближенно оценить следующим образом. Если ускоритель протонов отключен, и в мишени ЭЛЯУ не генерируются нейтроны, то перенос нейтронов в бланкете может быть описан уравнением для условно-критического реактора:

$$\hat{L} \varphi = \frac{1}{K_{эф}} \hat{Q} \varphi, \quad (3.1)$$

где \hat{L} – оператор, описывающий перенос, поглощение и замедление нейтронов; \hat{Q} – оператор, описывающий генерацию нейтронов деления; $K_{эф}$ – эффективный коэффициент размножения нейтронов; φ – пространственное распределение плотности потока нейтронов (ППН) в ЭЛЯУ.

После интегрирования уравнения (3.1) по пространственной и энергетической переменной можно получить:

$$(\bar{\Sigma}_a + \omega^2 \cdot \bar{D}) = \frac{1}{K_{\text{эф}}} \cdot \bar{v} \cdot \bar{\Sigma}_f,$$

где все макроконстанты усреднены по энергиям нейтронов и по объему ЭЛЯУ.

Если ускоритель протонов включен, и пучок ускоренных протонов бомбардирует мишень, производя в ней электроядерные нейтроны, то уравнение переноса нейтронов изменится так:

$$\hat{L} \phi' = \hat{Q} \phi' + S, \quad (3.2)$$

где S – скорость генерации электроядерных нейтронов в мишени; ϕ' – ППН при включенном ускорителе протонов.

Если предположить, что рассматриваемый бланкет является слабо подкритическим ($K_{\text{эф}} = 0.95-0.97$), то роль внешнего источника в переносе нейтронов будет невелика, и форма пространственно-энергетического распределения ППН в бланкете слабо изменится. Соответственно, слабо изменятся и усредненные макроконстанты. В этом предположении после интегрирования уравнения (3.2) по пространственной и энергетической переменной можно получить:

$$\int (\bar{\Sigma}_a + \omega^2 \cdot \bar{D}) \cdot \phi' \cdot dV = \int \frac{\bar{v} \cdot \bar{\Sigma}_f}{K_{\text{эф}}} \cdot \phi' \cdot dV = \int \bar{v} \cdot \bar{\Sigma}_f \cdot \phi' \cdot dV + S \cdot V_{\text{пб}}.$$

Последнее уравнение можно переписать в следующем виде:

$$\bar{v} \cdot \left(\frac{1}{K_{\text{эф}}} - 1 \right) \cdot \int \bar{\Sigma}_f \cdot \phi' \cdot dV = S \cdot V_{\text{пб}}. \quad (3.3)$$

Предположим, что источник электроядерных нейтронов равномерно распределен по объему свинцовой мишени. Тогда

$$S \left[\frac{\text{нейтр.}}{\text{см}^3 \cdot \text{с}} \right] = \frac{I_p \left[\frac{\text{прот.}}{\text{с}} \right] \cdot C_{n/p} \left[\frac{\text{нейтр.}}{\text{прот.}} \right]}{V_{\text{Pb}} \left[\text{см}^3 \right]},$$

где I_p – ток в пучке протонов ($1 \text{ A} = 6.25 \cdot 10^{18}$ протонов в секунду); $C_{n/p}$ – количество электроядерных нейтронов, выбиваемых из мишени одним протоном; V_{Pb} – объем свинцовой мишени.

Тогда уравнение (3.3) можно переписать следующим образом:

$$I_p \cdot C_{n/p} = \left(\frac{1 - K_{\text{эф}}}{K_{\text{эф}}} \right) \cdot \bar{v} \cdot \int \Sigma_f \cdot \phi'(r) \cdot dV.$$

Интеграл в правой части этого уравнения – это скорость делений в бланкете ЭЛЯУ, или, другими словами, скорость сжигания ядер топлива в реакциях деления, или (что то же самое) темп накопления ядер ПД, т.е.

$$N_{\text{ПД}} \left[\frac{\text{яд.}}{\text{с}} \right] = \int \Sigma_f \cdot \phi'(r) \cdot dV,$$

или

$$N_{\text{ПД}} \left[\frac{\text{яд.}}{\text{с}} \right] = \frac{I_p \cdot C_{n/p}}{\bar{v} \cdot \frac{1 - K_{\text{эф}}}{K_{\text{эф}}}}.$$

Если оценивать темп накопления ядер ПД, т.е. темп сжигания ядер топлива, в расчете на единицу силы тока в пучке протонов (например, на один ампер), то

$$N_{\text{ПД}} \left[\frac{\text{яд./с}}{\text{А}} \right] = \frac{6.25 \cdot 10^{18} \cdot C_{n/p}}{\bar{v} \cdot \left[\frac{1 - K_{\text{эф}}}{K_{\text{эф}}} \right]}.$$

Темп накопления ядер ПД можно преобразовать в темп накопления массы ПД следующим образом:

$$P_{\text{ПД}} \left[\frac{\text{кг/год}}{A} \right] = N_{\text{ПД}} \left[\frac{\text{яд./с}}{A} \right] \cdot \frac{A_{\text{топл.}} [\text{а.е.м.}]}{6.023 \cdot 10^{23} \left[\frac{\text{яд.}}{\text{г} \times \text{моль}} \right]} \times \\ \times 3.15 \cdot 10^7 \left[\frac{\text{с}}{\text{год}} \right] \cdot 10^{-3} \left[\frac{\text{кг}}{\text{г}} \right] = 5.23 \cdot 10^{-20} \cdot N_{\text{ПД}} \left[\frac{\text{яд./с}}{A} \right] \cdot A_{\text{топл.}} [\text{а.е.м.}].$$

Итак, темп накопления ПД или, другими словами, темп сжигания МА-содержащего топлива в подкритическом бланкете ЭЛЯУ можно приближенно оценить по следующей формуле:

$$P_{\text{ПД}} \left[\frac{\text{кг/год}}{A} \right] = 5.23 \cdot 10^{-20} \cdot 6.25 \cdot 10^{18} \cdot \frac{C_{n/p} \cdot A_{\text{топл.}} [\text{а.е.м.}]}{\bar{v} \cdot \left(\frac{1 - K_{\text{эф}}}{K_{\text{эф}}} \right)} = \\ = 0.327 \cdot \frac{A_{\text{топл.}} \cdot C_{n/p}}{\bar{v} \cdot \frac{1 - K_{\text{эф}}}{K_{\text{эф}}}}.$$

Если рассматривать ЭЛЯУ с $K_{\text{эф}} = 0.97$, в которой свинцовая мишень облучается протонами с энергией 1600 МэВ, способными выбить из мишени до 55 нейтронов каждый, то

$$P_{\text{ПД}} \left[\frac{\text{кг/год}}{A} \right] = 580 \cdot \frac{A_{\text{топл.}} [\text{а.е.м.}]}{\bar{v}}. \quad (3.4)$$

Предположим, что нептуниевая и америциевая фракции МА используются для накопления ^{238}Pu , т.е. для укрепления режима нераспространения ядерного оружия путем денатурации плутония.

Остается сжечь в ЭЛЯУ только кюриевую фракцию. Как было показано ранее, кюрий накапливается в УОХ-топливе энергетических легководных реакторов с темпом примерно 1 кг См/ГВт(э) в год.

Воспользуемся формулой (3.4) для оценки возможности ЭЛЯУ по сжиганию См-содержащего топлива.

1. Если топливо – смесь (^{235}U , ^{238}U) с 1 % кюрия, то $A_{\text{топл.}} \approx 238$ а.е.м.; $\nu(^{235}\text{U}) = 2.4$. Тогда

$$P_{\text{ПД}} \approx 57500 \left[\frac{\text{кг топл./год}}{\text{А}} \right]; \quad P_{\text{См}} \approx 0.575 \left[\frac{\text{кг См/год}}{\text{мА}} \right].$$

Из этого следует, что кюрий, произведенный АЭС мощностью 1 ГВт(э), может сжечь одна ЭЛЯУ с током в пучке протонов $I_p = 1.7$ мА.

2. Если топливо – смесь (^{238}U , ^{239}Pu) с 1 % кюрия, то $A_{\text{топл.}} \approx 238$ а.е.м.; $\nu(^{239}\text{Pu}) = 2.9$. Тогда

$$P_{\text{ПД}} \approx 47600 \left[\frac{\text{кг топл./год}}{\text{А}} \right]; \quad P_{\text{См}} \approx 0.476 \left[\frac{\text{кг См/год}}{\text{мА}} \right].$$

Из этого следует, что кюрий, произведенный АЭС мощностью 1 ГВт(э), может сжечь одна ЭЛЯУ с током в пучке протонов. $I_p = 2.1$ мА.

3. Если топливо – смесь (^{232}Th , ^{233}U) с 1 % кюрия, то $A_{\text{топл.}} \approx 238$ а.е.м.; $\nu(^{233}\text{U}) = 2.5$. Тогда

$$P_{\text{ПД}} \approx 53800 \left[\frac{\text{кг топл./год}}{\text{А}} \right]; \quad P_{\text{См}} \approx 0.538 \left[\frac{\text{кг См/год}}{\text{мА}} \right].$$

Из этого следует, что кюрий, произведенный АЭС мощностью 1 ГВт(э), может сжечь одна ЭЛЯУ с током в пучке протонов $I_p = 1.9$ мА.

Известно, что ядерный реактор мощностью 1000 МВт(э) ежегодно сжигает примерно, с точностью до КПД АЭС, 1000 кг делящихся материалов, производя тем самым 1000 кг ПД. Следовательно, электрическая мощность ЭЛЯУ, производящей $P_{\text{ПД}}$ [кг/год], примерно равна этой же величине, т.е.

$$W_{\text{ЭЛЯУ}} \left[\text{МВт(э)} \right] \approx P_{\text{ПД}} \left[\frac{\text{кг}}{\text{год}} \right] = 0.327 \cdot \frac{C_{n/p} \cdot A_{\text{топл.}} \left[\text{а.е.м.} \right]}{\bar{v} \cdot \left(\frac{1 - K_{\text{эф}}}{K_{\text{эф}}} \right)} \cdot I_p \left[\text{А} \right].$$

Если некоторую часть этой мощности $\alpha \cdot W_{\text{ЭЛЯУ}}$ направить на питание протонного ускорителя с КПД $\eta_{\text{уск}}$, то из простого соотношения

$$\alpha \cdot W_{\text{ЭЛЯУ}} \cdot \eta_{\text{уск}} = I_p \cdot E_p,$$

можно рассчитать эту долю:

$$\alpha = \frac{I_p \cdot E_p}{W_{\text{ЭЛЯУ}} \cdot \eta_{\text{уск}}} = \frac{\bar{v} \cdot \left(\frac{1 - K_{\text{эф}}}{K_{\text{эф}}} \right) \cdot E_p}{0.327 \cdot C_{n/p} \cdot A_{\text{топл.}} \cdot \eta_{\text{уск}}}.$$

При $K_{\text{эф}} = 0.97$, $E_p = 1600$ МэВ, $C_{n/p} = 55$, и $\eta_{\text{уск}} = 0.5$ доля электрической мощности ЭЛЯУ, идущей на питание ускорителя протонов, можно представить в виде

$$\alpha = 5.52 \cdot \frac{\bar{v}}{A_{\text{топл.}}}.$$

Тогда:

1) если топливо – смесь (^{235}U , ^{238}U) с 1 % кюрия, то $A_{\text{топл.}} \approx 238$ а.е.м.; $\bar{\nu}(^{235}\text{U}) = 2.40$; и $\alpha = 5.6\%$;

2) если топливо – смесь (^{238}U , ^{239}Pu) с 1 % кюрия, то $A_{\text{топл.}} \approx 238$ а.е.м.; $\bar{\nu}(^{239}\text{Pu}) = 2.90$; и $\alpha = 6.7\%$;

3) если топливо – смесь (^{232}Th , ^{233}U) с 1 % кюрия, то $A_{\text{топл.}} \approx 232$ а.е.м.; $\bar{\nu}(^{233}\text{U}) = 2.50$; и $\alpha = 5.9\%$.

Интересно, что величина α (6–7 %) не зависит от тока в пучке протонов, а значит, и от темпа сжигания кюрия.

Таким образом, ЭЛЯУ со слабо подкритическим бланкетом ($K_{\text{эф}} = 0.97$) и током в пучке ускоренных протонов $I_p \approx 2$ мА способна превратить в ПД кюрией, нарабатываемый АЭС мощностью 1 ГВт(э). При этом ЭЛЯУ может работать в режиме энергетического самообеспечения, тратя на питание протонного ускорителя лишь 6–7 % своей мощности, а 93–94 % этой мощности отдавать на коммерческие нужды.

3.6. Пример концепции бланкета для сжигания кюриевой фракции

Из-за сильного тепловыделения ^{244}Cm затруднительно использовать Cm-содержащее топливо в концентрированном виде, т.е. необходима сильноразбавленная система. В качестве таковой можно рассматривать микротвэлы, разработанные для реакторов типа ВТГР. В них топливные микрочастицы диспергированы в графитовой матрице. Твэл представляет собой графитовый шар, в центре которого размещается графитовая матрица с диспергированными в ней микротвэлами.

Типичное соотношение между количеством ядер графита и ядер тяжелых нуклидов в шаровых твэлах ВТГР составляет 250–400, что соответствует содержанию тяжелых ядер 0.25–0.4 ат. %. Типичный диаметр шарового твэла – 6 см. Если такой твэл содержит 0.25 % ^{244}Cm , то его тепловыделение составит около 30 Вт. Такое тепловыделение не может быть препятствием для изготовления твэлов, особенно если учесть, что технология изготовления графитовых микротвэлов, по самой сути, предполагает выполнение операций

при высоких температурах. Бланкет представляет собой засыпку из тысяч таких микротвэлов.

Среди изотопов кюрия хорошо делящимся является изотоп ^{245}Cm , размножающие свойства которого превосходят таковые для ^{233}U , ^{235}U и ^{239}Pu . Соответствующие данные приведены в табл. 3.5 для тепловых нейтронов.

Таблица 3.5

Нейтронно-физические свойства основных делящихся нуклидов
($E_n = 0.025$ эВ)

Нуклид	^{233}U	^{235}U	^{239}Pu	^{245}Cm
$\sigma_c, \text{б}$	45	98	269	349
$\sigma_f, \text{б}$	529	583	748	2132
ν_f	2.48	2.41	2.87	3.82
β	0.0038	0.0065	0.0026	0.0018
$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$	0.085	0.168	0.360	0.164
$\nu_{\text{эф}} = \nu_f / (1 + \alpha)$	2.29	2.06	2.11	3.28

Доля запаздывающих нейтронов, образующихся при делении ^{245}Cm , в 1.5 раза меньше, чем у ^{239}Pu . Это значит, что создание реактора на кюриевом топливе может столкнуться с проблемами его безопасной эксплуатации. Физика ядерных реакторов на Cm-содержащем топливе пока почти не исследована.

Поэтому подкритический бланкет ЭЛЯУ может оказаться радикальным средством уничтожения кюриевой фракции в условиях, исключающих любые неблагоприятные реактивностные эффекты и любые реактивностные аварии.

Для надежного отвода тепла, выделяемого при радиоактивном распаде изотопа ^{244}Cm , бланкет ЭЛЯУ может представлять баковую конструкцию, заполненную, например, расплавленным свинцом. В центральной зоне свинец используется как материал мишени, бомбардируемой ускоренными протонами, в которой генерируются нейтроны. Сам бланкет, окружающий мишень, представляет собой засыпку графитовых твэлов с кюриевым топливом, погруженных в расплавленный свинец, который здесь играет роль теплоносителя.

3.7. Переработка РАО в процессе трансмутации

В реальных условиях процесс трансмутации РАО, вероятнее всего, не будет непрерывным. Скорее, он будет периодическим, включающим циклы облучения РАО в специализированных ядерных установках и циклы химической переработки облученных РАО с целью отделения продуктов трансмутации и добавления новой порции свежих РАО. При химической переработке облученных РАО неизбежны потери, т.е. часть РАО будет отделена вместе с продуктами трансмутации и образует «вторичные» отходы.

Получается, что процесс трансмутации РАО также не свободен от производства отходов. Возникает дилемма, что же лучше: захранивать РАО процесса переработки ОЯТ в геологических формациях без трансмутации или подвергнуть РАО трансмутации и захранивать вторичные отходы этого процесса. В первом случае полное количество РАО процесса переработки ОЯТ иммобилизуется в инертном материале (например, в стекле), затем стеклоблоки с РАО размещаются в стальных контейнерах и отправляются на окончательное захоронение. Во втором случае РАО будут облучаться нейтронами в ядерных установках. После каждого цикла облучения РАО будут химически перерабатываться. Из-за несовершенства технологии часть РАО уйдет из цикла вместе с продуктами трансмутации. В результате многоциклового трансмутации все исходные РАО будут уничтожены, но некоторое количество вторичных отходов придется снова вводить в состав стекол и захранивать в геологических формациях.

Возникает ряд вопросов. Например, насколько масса вторичных РАО меньше массы исходных РАО? Как уменьшение массы захраняемых РАО связано с параметрами трансмутационного процесса, в первую очередь с глубиной выжигания РАО за цикл облучения и с уровнем потерь РАО при переработке облученного материала? Попробуем ответить на эти вопросы.

Пусть F_1 – исходная масса первичных РАО; X – глубина выжигания РАО за один цикл нейтронного облучения; ε – доля потерь РАО при отделении продуктов трансмутации. В результате многоциклового режима облучения и переработки РАО накопится некоторая масса F_2 вторичных РАО.

Цикл 1.

Масса первичных РАО до облучения – F_1 .

Масса первичных РАО после облучения – $(1 - X) \cdot F_1$.

Масса первичных РАО после переработки – $(1 - \varepsilon) \cdot (1 - X) \cdot F_1$.

Масса вторичных РАО после цикла 1 – $\Delta F_2(1) = \varepsilon \cdot (1 - X) \cdot F_1$.

Цикл 2.

Масса первичных РАО до облучения – $(1 - \varepsilon) \cdot (1 - X) \cdot F_1$.

Масса первичных РАО после облучения – $(1 - \varepsilon) \cdot (1 - X)^2 \cdot F_1$.

Масса первичных РАО после переработки – $(1 - \varepsilon)^2 \cdot (1 - X)^2 \cdot F_1$.

Масса вторичных РАО после цикла 2 – $\Delta F_2(2) = \varepsilon \cdot (1 - \varepsilon) \cdot (1 - X)^2 \cdot F_1$.

Цикл N.

Масса первичных РАО до облучения – $(1 - \varepsilon)^{N-1} \cdot (1 - X)^{N-1} \cdot F_1$.

Масса первичных РАО после облучения – $(1 - \varepsilon)^{N-1} \cdot (1 - X)^N \cdot F_1$.

Масса первичных РАО после переработки – $(1 - \varepsilon)^N \cdot (1 - X)^N \cdot F_1$.

Масса вторичных РАО после цикла N –

$$\Delta F_2(N) = \varepsilon \cdot (1 - \varepsilon)^{N-1} \cdot (1 - X)^N \cdot F_1.$$

Полная масса вторичных РАО, накапливаемых в циклах облучения и переработки, равна сумме $\Delta F_2(i)$, где i – номер цикла.

Можно показать, что потери РАО по циклам трансмутации составляют геометрическую прогрессию с начальным членом

$$A_1 = \Delta F_2(1) = \varepsilon \cdot (1 - X) \cdot F_1,$$

и со знаменателем $q = (1 - \varepsilon) \cdot (1 - X)$. Сумма этой прогрессии, т.е. полная масса вторичных РАО составит:

$$F_2 = \frac{A_1}{1 - q} = \frac{\varepsilon \cdot (1 - X) \cdot F_1}{1 - (1 - \varepsilon) \cdot (1 - X)} = \frac{\varepsilon \cdot (1 - X)}{X + \varepsilon \cdot (1 - X)} \cdot F_1.$$

Тогда отношение массы вторичных РАО к массе первичных РАО можно записать в виде

$$A = \frac{F_2}{F_1} = \frac{\varepsilon \cdot (1 - X)}{X + \varepsilon \cdot (1 - X)}.$$

Предположим, что имеются две технологии химического отделения продуктов трансмутации: 1) грубая технология с большими потерями РАО (например, $\epsilon_1 = 10\%$); 2) тонкая технология с малыми потерями РАО (например, $\epsilon_2 = 1\%$). Зависимость фактора A , характеризующего уменьшение массы захораниваемых РАО в результате трансмутации, от глубины выжигания РАО за цикл облучения приведена в табл. 3.6.

Таблица 3.6

**Уменьшение количества РАО
в зависимости от глубины выжигания за цикл**

Глубина выжигания РАО за один цикл X	$A = F_2 / F_1$	
	грубая переработка ($\epsilon_1 = 10\%$)	тонкая переработка ($\epsilon_2 = 1\%$)
0.2	0.286	0.038
0.3	0.189	0.023
0.4	0.130	0.015
0.6	0.063	0.007
0.8	0.024	0.002

Видно, что снижение на порядок потерь РАО при химической переработке уменьшает полную массу РАО, подлежащих захоронению, примерно на ту же величину.

Можно оценить соотношение глубин выжигания РАО за цикл облучения, при котором грубая и тонкая технологии химической переработки дают одинаковые массы вторичных РАО для окончательного захоронения в геологических формациях. Нетрудно показать, что из условия

$$\frac{F_2}{F_1}(X_1, \epsilon_1) = \frac{F_2}{F_1}(X_2, \epsilon_2)$$

следует

$$\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} = \frac{X_1/(1-X_1)}{X_2/(1-X_2)}.$$

Используя это соотношение, можно видеть, что для получения одинаковой массы вторичных РАО технология грубой переработки требует более глубокого выжигания РАО по сравнению с технологией тонкой переработки. Так, прожигание исходных РАО на 30 % за цикл плюс тонкая переработка эквивалентно по массе вторичных РАО прожиганию исходных РАО на 80 % за цикл плюс грубая переработка.

3.8. Обращение с облученными конструкционными материалами

Здесь имеются в виду, в первую очередь, конструкционные материалы (КМ) энергетических ядерных реакторов. В настоящее время переработка ОЯТ начинается с отделения КМ, которые затем компактируют и захоранивают. Для крупномасштабной ядерной энергетики рассматривается возможность рецикла, т.е. повторного использования КМ. При этом, конечно, усложняются операции по переплавке активированных КМ и коррекции их элементного состава. Но будут достигаться две важные цели: во-первых, радионуклиды КМ будут удерживаться в топливном цикле ЯЭ, и, во-вторых, будет достигнута экономия в расходе КМ.

Активация КМ может быть снижена изменением их элементного состава за счет удаления легкоактивируемых элементов. Однако возможности такого подхода ограничены, поскольку изменение элементного состава может привести к ухудшению прочностных или нейтронно-физических свойств КМ. Например, в легководных реакторах цирконий является практически единственным широко используемым элементом КМ. Поэтому для некоторых КМ более перспективным или единственно возможным способом решения этой проблемы может оказаться изменение не их элементного, а их изотопного состава.

Рассмотрим влияние изменения изотопного состава циркония на его активацию. Долгоживущая активность облученного циркония

связана только с радионуклидом ^{93}Zr ($T_{1/2} = 1.5 \cdot 10^6$ лет), источником β -излучения, не сопровождающегося испусканием γ -квантов. Российские нормы радиационной безопасности допускают неограниченное применение твердых β -эмиттеров с удельной активностью не выше 2 мкКи/кг. А расчетные оценки показывают, что активность облученного циркония (3 года в реакторе плюс 5 лет выдержки) составляет ~ 480 мкКи/кг, т.е. более, чем в 200 раз выше допустимой нормы.

Радионуклид ^{93}Zr образуется в результате захвата нейтронов стабильными изотопами ^{90}Zr , ^{91}Zr и ^{92}Zr . Если же обогатить природный цирконий изотопом ^{90}Zr с соответствующим снижением содержания непосредственных предшественников ^{93}Zr (изотопов ^{91}Zr и ^{92}Zr), то накопление ^{93}Zr может быть существенно замедлено. Так, если природный цирконий, содержащий 51 % ^{90}Zr , сделать состоящим только из ^{90}Zr , то в этом предельном случае удельная активность облученного циркония составит лишь $8 \cdot 10^{-4}$ мкКи/кг, т.е. в 2500 раз ниже нормы. Это означает, что такой цирконий может многократно использоваться в качестве КМ легководных реакторов. Если же природный цирконий обогатить ^{90}Zr до 99 %, то после облучения его удельная активность будет в пределах допустимых норм, т.е. такой цирконий можно один раз использовать в цикле облучения ядерного топлива, а затем передать в неядерные отрасли промышленности для неограниченного применения.

Другой пример подхода к снижению активации КМ за счет изменения их изотопного состава рассмотрен при анализе активации ферритной нержавеющей стали марки НТ-9, использующейся в качестве КМ ТЯУ. Расчетные оценки показали, что долгоживущая активность стали на 99 % обусловлена радионуклидами ^{93}Mo ($T_{1/2} = 3.5 \cdot 10^3$ лет), ^{94}Nb ($T_{1/2} = 2.0 \cdot 10^4$ лет) и ^{99}Tc ($T_{1/2} = 2.1 \cdot 10^5$ лет), продуктами (n, γ)-, ($n, 2n$)- и (n, p)-реакций стабильных изотопов молибдена ^{92}Mo , ^{94}Mo , ^{98}Mo и ^{100}Mo . Доля этих изотопов в природном молибдене составляет 57 %. Нержавеющая сталь НТ-9 содержит лишь 1 % природного молибдена, но именно с ним связана основная часть ее активности. Было предложено изменить изотопный состав природного молибдена с помощью технологии плазменного обогащения, а именно, снизить содержание изотопов-предшественников радионуклидов: ^{92}Mo и ^{94}Mo в 25 раз, ^{98}Mo и

^{100}Mo в 15 раз. В результате содержание изотопов-предшественников снизилось с 57 % в природном молибдене до 7 % в обогащенном. Соответственно, примерно на порядок уменьшилась активность образующихся радионуклидов, а облученная сталь перешла в более низкую категорию РАО и стала пригодной для приповерхностного хранения.

Видимо, аналогичный подход может быть использован для снижения активации нержавеющей стали, являющихся КМ быстрых реакторов. Отметим, что в настоящее время исследования по рециклу КМ, по подбору их элементных и изотопных составов находятся на самом начальном этапе.

Контрольные вопросы

1. Назовите основные изотопы, входящие в состав МА, и расскажите о реакциях, ведущих к их накоплению.
2. В чем состоит основное отличие трансмутации МА от трансмутации ДПД?
3. Каким образом МА могут способствовать укреплению режима нераспространения ядерного оружия?
4. Сравните ядерные реакторы и электроядерные установки по их возможностям трансмутировать МА.

Список литературы

1. Апсэ В.А., Шмелев А.Н. Основы безопасного обращения с радиоактивными отходами. Учебное пособие. – М.: МИФИ, 2006.
 2. Шмелев А.Н., Апсэ В.А., Куликов Г.Г. Физические основы обезвреживания долгоживущих радиоактивных отходов. Потенциал инновационных технологий. Учебное пособие. – М.: МИФИ, 2008.
 3. Апсэ В.А., Шмелев А.Н. Ядерные технологии. Учебное пособие. – М.: НИЯУ МИФИ, 2013.
-

Редактор М.В.Макарова
Оригинал-макет изготовлен Г.Г.Куликовым

Подписано в печать 24.06.2019. Формат 60x84 1/16.
Уч.-изд.л. 7.0. Печ.л. 7.0. Тираж 100 экз.
Изд. № 035-1. Заказ №

Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ».
Типография НИЯУ МИФИ.
115409, Москва, Каширское ш., 31.