

ФЕДЕРАЛЬНОЕ АГЕНТСТВО ПО ОБРАЗОВАНИЮ

МОСКОВСКИЙ ИНЖЕНЕРНО-ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ  
(ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ)

**А.Н. Шмелев В.А. Апсэ Г.Г. Куликов**

**ФИЗИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ  
ОБЕЗВРЕЖИВАНИЯ ДОЛГОЖИВУЩИХ  
РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ.  
ПОТЕНЦИАЛ ИННОВАЦИОННЫХ  
ТЕХНОЛОГИЙ**

Рекомендовано УМО «Ядерные физика и технологии»  
в качестве учебного пособия  
для студентов высших учебных заведений

Москва 2008

УДК 621.039.73(075)

ББК 31.46я7

Ш 72

Шмелев А.Н., Алсэ В.А., Куликов Г.Г. **Физические основы обезвреживания долгоживущих радиоактивных отходов. Потенциал инновационных технологий: Учебное пособие.** М.: МИФИ, 2008. 120 с.

Рассмотрены физические процессы трансмутации долгоживущих продуктов деления в короткоживущие и стабильные нуклиды в нейтронных полях различных ядерных установок (ядерных реакторов, электроядерных установок и бланкетов термоядерных установок). Сформулированы общий подход и критерии, определяющие эффективность трансмутационного процесса. В приложении рассмотрены концепции перспективных ядерных технологических установок для обезвреживания наиболее опасных долгоживущих радионуклидов. Настоящее пособие предназначается для использования при изучении курса «Технология ядерных топливных циклов. Основы обращения с радиоактивными отходами», который читается в МИФИ при подготовке магистров по технической физике.

Пособие может быть полезно студентам старших курсов и аспирантам при изучении систем учета и контроля ядерных материалов.

Рецензент канд. физ.-мат. наук, доц. А.Б. Колдобский

Пособие подготовлено в рамках Инновационной образовательной программы.

ISBN 978-5-7262-1032-2 © *Московский инженерно-физический институт (государственный университет), 2008*

Редактор Н.Н. Антонова  
Компьютерная верстка Г.А. Бобровой

Подписано в печать 20.11.2008                      Формат 60x84    1/16  
Печ.л. 7,5    Уч.-изд.л. 7,5    Тираж 150 экз.    Изд. № 4/48  
Заказ № 2-2405

*Московский инженерно-физический институт  
(государственный университет).  
115409, Москва, Каширское шоссе, 31*

*Типография издательства «Тровант»  
г. Троицк Московской области*

## ОГЛАВЛЕНИЕ

Предисловие .....	5
Введение .....	7
1. Высокотоксичные радионуклиды – продукты цепной реакции деления .....	9
2. Описание процесса трансмутации долгоживущих продуктов деления в нейтронном поле .....	12
2.1. Облучение долгоживущих продуктов деления в нейтронном поле .....	12
2.2. Трансмутация продуктов деления с учетом их накопления в ядерных реакторах .....	14
2.3. Оценка времени выхода на равновесную трансмутацию под действием тепловых и быстрых нейтронов .....	19
2.4. Трансмутационный цикл. Оценка потерь радионуклидов при рециклировании .....	22
2.5. Расход нейтронов на трансмутацию радионуклидов – продуктов деления .....	26
2.6. Некоторые особенности трансмутации долгоживущих радионуклидов – продуктов деления без предварительного изотопного разделения .....	31
2.7. Об основных критериях для оценки эффективности обезвреживания долгоживущих радиоактивных отходов .....	40
3. Генерация нейтронов для обеспечения трансмутации долгоживущих продуктов деления .....	42
3.1. Критические системы (ядерные реакторы) .....	42
3.2. Системы с внешним источником нейтронов .....	45
3.2.1. Электроядерный метод генерации нейтронов .....	45
3.2.2. Управляемый термоядерный синтез как источник нейтронов для трансмутации .....	54
Заключение .....	71
Приложения .....	72
П1. Нейтронно-физические особенности обезвреживания долгоживущих радиоактивных продуктов деления .....	72
П1.1. Трансмутация $^{99}\text{Tc}$ .....	72
П1.2. Трансмутация $^{129}\text{I}$ .....	74

П.1.3. Трансмутация $^{135}\text{Cs}$ .....	76
П.1.4. Трансмутация $^{126}\text{Sn}$ .....	81
П.1.4.1. Концепция blankets ЭЛЯУ для трансмутации $^{126}\text{Sn}$ .....	85
П.1.4.2. Использование свинца, обогащенного изотопом $^{208}\text{Pb}$ .....	87
П.1.5. Трансмутация $^{79}\text{Se}$ .....	88
П.1.6. Трансмутация $^{93}\text{Zr}$ .....	91
П.1.7. Трансмутация $^{107}\text{Pd}$ .....	97
П.1.8. Обращение с осколочным стронцием (среднеживущий изотоп $^{90}\text{Sr}$ ).....	100
П.2. Выжигание младших актинидов.....	102
П.2.1. Потенциальная роль МА в повышении защищенности плутония в топливном цикле .....	103
П.2.2. Накопление МА в энергетических реакторах с урановым и MOX-топливом .....	106
П.2.3. Особенности ядерно-физических свойств МА, важные для их сжигания в ядерных установках .....	107
П.2.3.1. Сечения деления и захвата нейтронов нуклидами МА.....	108
П.2.3.2. О запаздывающих нейтронах, появляющихся при делении МА .....	109
П.2.4. О физике быстрого реактора-выжигателя МА.....	110
П.2.5. Подкритические системы для сжигания МА.....	112
П.3. Об уменьшении активации конструкционных материалов, применяемых в ЯЭУ.....	117
Список литературы .....	120

## ПРЕДИСЛОВИЕ

Обращение с радиоактивными отходами (РАО) ядерной энергетики – один из ключевых вопросов, определяющих приемлемость и масштабы развития этой отрасли энергопроизводства. Разработанные в настоящее время подходы и технологии обращения с РАО основаны, главным образом, на концепции пассивной защиты путем создания многочисленных барьеров на пути проникновения РАО в биосферу (иммобилизация в коррозионно-стойкие материалы, контейнеризация, окончательное захоронение в устойчивых геологических формациях). Главная проблема традиционных технологий состоит в обеспечении надежной и долговременной защиты (в течение не менее десятка тысяч лет) от попадания в окружающую среду долгоживущих радионуклидов, входящих в состав РАО.

В последние два десятилетия ведутся активные поиски физических решений по обезвреживанию долгоживущих РАО, основанные на их ядерной трансмутации, т.е. превращении в короткоживущие или стабильные нуклиды. Успешное решение этой проблемы в сочетании с традиционными технологиями позволило бы повысить надежность защиты биосферы от вредного воздействия РАО. В научных публикациях на эту тему обсуждаются различные варианты физических решений по осуществлению трансмутации долгоживущих РАО как в ядерных реакторах, так и в перспективных ядерных установках, не доведенных пока до уровня практической реализации (электроядерные и термоядерные установки). Исследования по физике трансмутации РАО позволят, по крайней мере, сформулировать концептуальные технические требования к таким установкам.

Данное учебное пособие, предназначенное для специалистов по безопасному обращению с ядерными материалами, представляет собой первую попытку обобщить результаты научных исследований, изложенные в многочисленных публикациях по нейтронной трансмутации наиболее опасных долгоживущих РАО, на доступном учебном уровне. В пособии содержится ряд конкретных примеров, демонстрирующих возможности трансмутации. Авторы пособия – известные специалисты, активно работающие в области физики реакторов, проблем ядерных топливных циклов и обращения с РАО.

Доктор физико-математических наук, профессор Юрова Л.Н.

## ВВЕДЕНИЕ

Одной из насущных проблем ядерной энергетики является проблема повышения безопасности послереакторного топливного цикла, где важное место занимает вопрос об обращении с радиоактивными отходами (РАО). Как известно, РАО появляются на различных стадиях производства: от добычи урана до переработки облученного топлива. Наибольшую сложность в обращении представляют РАО переработки облученного топлива. В них сосредоточена основная масса продуктов деления, характеризующихся высокой активностью, тепловыделением и длительным периодом спада активности. В настоящее время проблема надежной изоляции и обезвреживания РАО привлекает большое внимание. Причем следует заметить, что дискуссия по этой проблеме имеет одну специфическую особенность. Оппоненты ядерной энерготехнологии высказывают мнение о том, что эта проблема не решена, поскольку не создана и не продемонстрирована технология надежного захоронения РАО на сотни тысяч и миллионы лет. Понятно, что такая полномасштабная демонстрация не только в принципе затруднительна, но и просто невозможна, если принимать во внимание проявление таких маловероятных факторов, как изменение состояния земной коры или попадание крупного метеорита в могильник. Поэтому считается, что радикальным путем решения проблемы РАО является их обезвреживание, т.е. перевод в стабильные или короткоживущие нуклиды с последующей относительно недолгой выдержкой, а также частичное использование содержащихся в них ценных компонентов.

Кроме того, следует отметить, что существует различное толкование термина «радиоактивные отходы». При осуществлении так называемого открытого цикла облученное топливо предполагается (после определенной выдержки) подвергать захоронению. В этом случае под РАО понимают весь облученный материал, включая уран, накопившийся плутоний и так называемые «младшие актиниды» – МА (нептуний, америций, кюрий, берклий и т.д.). На самом деле уран с уменьшенным содержанием  $^{235}\text{U}$  и накопившиеся

трансурановые нуклиды могут быть повторно использованы (и уже используются) в качестве топлива в ядерных реакторах. Поэтому применение к облученному топливу термина «радиоактивные отходы», вообще говоря, нельзя признать корректным. Более правильным было бы отнести к РАО совокупность продуктов деления, выделенных при переработке облученного топлива, которые не предполагается использовать в народном хозяйстве.

Накопившиеся в топливе младшие актиниды в силу их специфических ядерно-физических и физико-химических свойств в настоящее время также относят к РАО, хотя они и могут подвергаться делению нейтронами. Таким образом, к категории «радиоактивные отходы» в настоящее время можно отнести радиоактивные продукты деления, младшие актиниды и малое количество урана и плутония в виде безвозвратных потерь процесса переработки облученного топлива.

Считается, что степень извлечения U и Pu из облученного топлива достигает 99,5%, т.е. около 0,5% все же остается в составе отходов. При использовании наиболее распространенного в настоящее время водного метода переработки на основе процесса PUREX в составе отходов остаются также америций, кюрий и часть нептуния. Это объясняется тем обстоятельством, что по своим химическим свойствам америций и кюрий близки к редкоземельным элементам (РЗЭ) продуктов деления, чья доля составляет около 22%. Близость химических свойств трансплутониевых элементов (Am, Cm, Bk, Cf) выражается в том, что устойчивые валентные состояния этих элементов совпадают с устойчивыми валентными состояниями РЗЭ. Поэтому для выделения трансплутониевых элементов требуется использование дополнительного процесса. Нептуний – элемент, который в процессе переработки проявляется в нескольких валентных состояниях, и здесь также требуются усилия по его полному выделению.

В настоящее время еще не сформировалось однозначного мнения о том, как обращаться с МА. Ясно, что поскольку они делятся, их можно сжигать либо в энергетических реакторах, либо в специальных ядерных установках. При этом следует учитывать и еще одно обстоятельство. Оно связано с проблемой защиты плутония

от неконтролируемого распространения. Дело в том, что при облучении  $^{237}\text{Np}$  и  $^{241}\text{Am}$  в качестве промежуточного продукта образуется изотоп  $^{238}\text{Pu}$  – интенсивный излучатель нейтронов спонтанного деления и источник тепла радиоактивного  $\alpha$ -распада. Присутствие этого изотопа в плутонии способствовало бы повышению его радиационного защитного барьера. Это может сделать предпочтительным использование МА в смеси с уран-плутониевым топливом ядерных реакторов для повышения защищенности топливного цикла.

Рециклирование (U-Pu)-топлива приводит (и это уже имеет место при работе европейских легководных реакторов) к накоплению трансурановых элементов ( $^{243}\text{Am}$ , изотопов кюрия, берклия, калифорния и т.д.). Эффективная их утилизация – это еще одна проблема обращения с МА, рассмотрение которой находится в самом начале.

Обеспокоенность по поводу проблемы безопасного обращения с РАО оказывает сдерживающее влияние на развитие ядерной энергетики. Поэтому в настоящее время проводятся исследования как всех аспектов надежного захоронения РАО, так и исследования по выявлению потенциала ядерной технологии по обезвреживанию (трансмутации) долгоживущих РАО. Причем в последнем случае в качестве сверхзадачи можно рассматривать трансмутацию не отдельных (одного-двух) наиболее опасных продуктов, а всех (или почти всех) долгоживущих радионуклидов с тем, чтобы вообще исключить из рассмотрения проблему «вечного» захоронения наиболее опасных долгоживущих радионуклидов.

В настоящем пособии рассмотрение ограничивается анализом физических процессов трансмутации долгоживущих РАО в нейтронных полях различного спектра и интенсивности, описанием различных источников нейтронов для нужд трансмутации, а также пути выжигания МА. Сформулированы общий подход и критерии, определяющие эффективность трансмутационного процесса. Анализируется потенциал инновационных технологий, таких, как технологии электроядерных и термоядерных установок для обезвреживания наиболее опасных долгоживущих радионуклидов.

# 1. ВЫСОКОТОКСИЧНЫЕ РАДИОНУКЛИДЫ – ПРОДУКТЫ ЦЕПНОЙ РЕАКЦИИ ДЕЛЕНИЯ

Среди РАО ядерных технологий наибольшую опасность представляют долгоживущие радионуклиды высокой удельной активности, которые получаются при переработке облученного топлива ядерных реакторов. Нужно также учитывать, что подобные высокоактивные отходы могут получаться при переработке облученного топлива электроядерных установок и термоядерных установок с подкритическим бланкетом, которые обычно называют гибридными термоядерными реакторами.

Продукты деления содержат большое количество различных по свойствам нуклидов, составляющих едва ли не половину таблицы Д.И. Менделеева. Массовые выходы продуктов деления зависят от энергии нейтрона, вызвавшего деление. На рис. 1.1 приведены распределения выходов продуктов деления в зависимости от массового числа при делении  $^{235}\text{U}$  тепловыми нейтронами и нейтронами с энергией 14,1 МэВ.

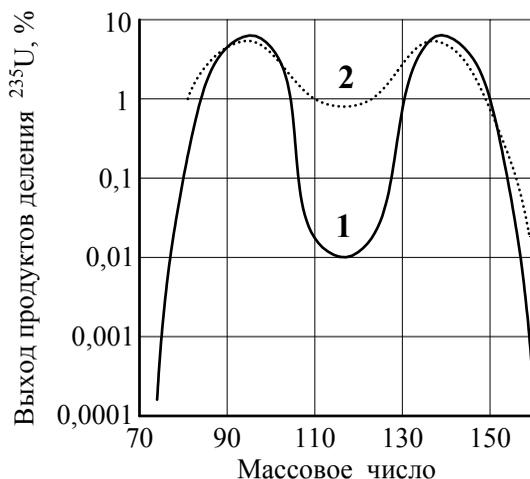


Рис. 1.1. Массовые распределения продуктов деления  $^{235}\text{U}$  нейтронами различных энергий: 1 – тепловые нейтроны; 2 – нейтроны с энергией 14,1 МэВ

Из рис. 1.1 видно, что различие в выходах весьма существенно для области средних массовых чисел (110÷130) и, в частности, для таких продуктов деления, как палладий и йод, которые оказывают влияние как на процесс переработки топлива, так и на биологическую опасность отходов.

В результате использования водных, а также неводных методов переработки облученного топлива в составе РАО оказывается основная масса продуктов деления, а также небольшая часть неизвлеченных тяжелых нуклидов (U, Pu и MA). В качестве примера в табл. 1.1 приведен состав элементов, которые содержатся в РАО после переработки облученного уранового топлива легководного реактора и извлечения урана и плутония (99,5%).

Таблица 1.1

**Нуклидный состав актинидов в отработавшем урановом топливе реактора ВВЭР-1000 после его 3-летней выдержки и отделения 99,5% U и Pu (нормирован на 1)**

Нуклид	Содержание	Нуклид	Содержание
<sup>238</sup> U	0,9809	<sup>241</sup> Am	0,503-2
<sup>237</sup> Np	1,095-2*	<sup>242m</sup> Am	1,325-5
<sup>238</sup> Pu	0,188-4	<sup>243</sup> Am	0,245-2
<sup>239</sup> Pu	0,649-3	<sup>242</sup> Cm	0,366-5
<sup>240</sup> Pu	0,249-3	<sup>243</sup> Cm	0,892-5
<sup>241</sup> Pu	0,137-3	<sup>244</sup> Cm	0,533-3
<sup>242</sup> Pu	0,645-3	<sup>245</sup> Cm	0,264-4

\*1,095-2 = 1,095·10<sup>-2</sup>

Опасность РАО связана с тем, что их активность хотя и спадает со временем, однако остается высокой в течение сотен тысяч и даже миллионов лет (рис. 1.2).

На такой большой срок трудно и, видимо, невозможно гарантировать высокую надежность сохранения целостности могильника с хранящимися в нем контейнерами радионуклидов, которые даже при их медленной миграции могут попасть в окружающую среду.

Из рис. 1.2 видно, что радиотоксичность облученного топлива в первые 300–600 лет определяется, в основном, среднеживущими продуктами деления, а в дальнейшем – трансурановыми элементами и долгоживущими продуктами деления. Среди долгоживущих продуктов деления наибольшую роль играют радионуклиды, приведенные в табл. 1.2.

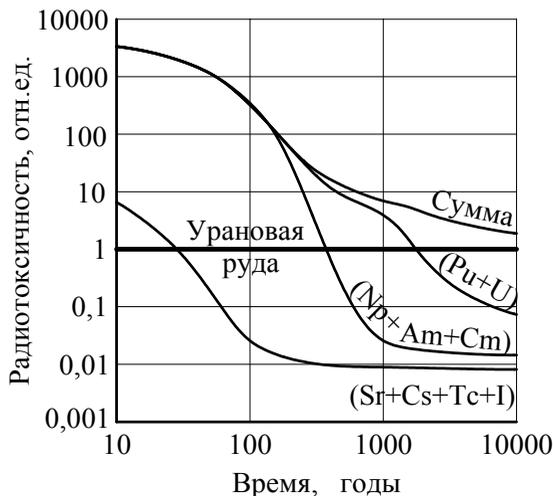


Рис. 1.2. Изменение радиотоксичности нуклидов при длительной выдержке

Таблица 1.2

**Долгоживущие радионуклиды – продукты деления (а также  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$ ), определяющие опасность радиоактивных отходов**

Нуклид	$T_{1/2}$ , год	Нуклид	$T_{1/2}$ , год	Нуклид	$T_{1/2}$ , год
$^{79}\text{Se}$	$6,5 \cdot 10^4$	$^{99}\text{Tc}$	$2,1 \cdot 10^5$	$^{129}\text{I}$	$6,5 \cdot 10^7$
$^{90}\text{Sr}$	29	$^{107}\text{Pd}$	$6,5 \cdot 10^6$	$^{135}\text{Cs}$	$2,3 \cdot 10^6$
$^{93}\text{Zr}$	$1,5 \cdot 10^6$	$^{126}\text{Sn}$	$1,0 \cdot 10^5$	$^{137}\text{Cs}$	30

Как уже отмечалось, предлагаются различные способы обращения с РАО: захоронение в глубокие геологические формации, удаление в космос, а также обезвреживание путем трансмутации.

В настоящее время в различных странах проводятся исследования по разработке технологии надежного захоронения отходов и поиски соответствующих мест для таких могильников. И хотя в этом направлении достигнут большой прогресс, все же у людей остается беспокойство относительно надежности такого решения проблемы на столь длительный срок. Поэтому достаточно быстрая трансмутация наиболее опасных долгоживущих радионуклидов из состава отходов в контролируемых условиях может рассматриваться как способ активного воздействия на радионуклиды с целью превращения их в короткоживущие или стабильные.

Применение трансмутации может сократить сроки хранения РАО с надежной изоляцией от окружающей среды, а также уменьшить потребность в могильниках для размещения РАО.

## **2. ОПИСАНИЕ ПРОЦЕССА ТРАНСМУТАЦИИ ДОЛГОЖИВУЩИХ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ В НЕЙТРОННОМ ПОЛЕ**

### **2.1. Облучение долгоживущих продуктов деления в нейтронном поле**

Изменение со временем количества нуклида  $G_i(t)$ , помещенного в нейтронное поле, описывается уравнением

$$\frac{dG_i(t)}{dt} = -[\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)] \cdot G_i(t) ,$$

где  $\lambda_i$  – постоянная распада нуклида;  $\Phi$  – плотность потока нейтронов;  $\sigma^i$  – микросечение взаимодействия нейтронов с ядрами нуклида, приводящее к превращению его в другой нуклид (например, в стабильный или короткоживущий).

Постоянная распада  $\lambda_i$  характеризует скорость естественного радиоактивного распада нуклида. Подобно этому, величина  $(\sigma^i \cdot \Phi)$  характеризует скорость трансмутации  $i$ -го ядра нуклида под действием нейтронов. Тогда обратные им величины будут, соответственно, средним временем жизни нуклида относительно естественного распада ( $1/\lambda_i$ ) и средним временем жизни нуклида относительно процесса трансмутации в нейтронном поле  $1/(\sigma^i \cdot \Phi)$ .

Решение этого уравнения носит экспоненциальный характер, если скорость трансмутации в нейтронном поле  $(\sigma^i \cdot \Phi)$  не зависит от времени:

$$G_i(t) = G_i(0) \cdot \exp\{-[\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)] \cdot t\},$$

где  $G_i(0)$  – количество радионуклида в начальный момент времени.

Изменение со временем количества радионуклида при различном уровне плотности потока нейтронов приведено на рис. 2.1.

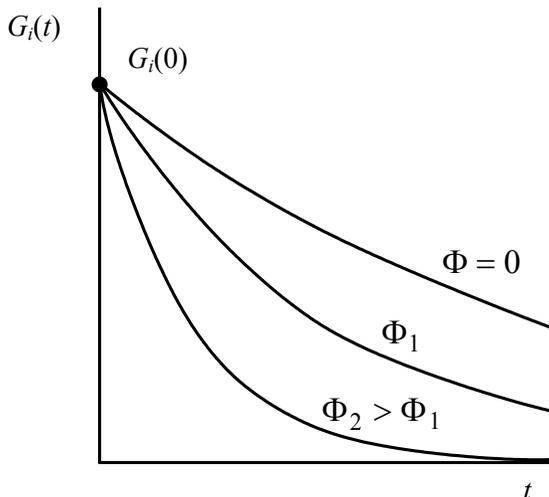


Рис. 2.1. Изменение со временем количества радионуклида при различном уровне плотности потока нейтронов

Из рисунка видно, что с увеличением плотности потока нейтронов  $\Phi$  скорость уменьшения количества нуклида возрастает. Темп этого спада характеризуется величиной

$$l_i \equiv \frac{1}{\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)},$$

которую можно назвать средним временем жизни радионуклида в нейтронном поле. Если  $\Phi = 0$ , то  $l_i = 1/\lambda_i$  – среднее время жизни радионуклида относительно естественного распада. Часто также используется понятие периода полураспада нуклида  $T_{1/2} = \ln(2)/\lambda$ . При  $\Phi \neq 0$  величину

$$T_{1/2}^{\text{эф}} = \frac{\ln(2)}{\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)}$$

называют эффективным периодом полураспада радионуклида, находящегося в нейтронном поле.

## 2.2. Трансмутация продуктов деления с учетом их накопления в ядерных реакторах

Рассмотрим систему ядерных реакторов, в которой происходит  $N_f$  делений в единицу времени, что обуславливает накопление  $i$ -го продукта деления с выходом  $Y_f^i$  в расчете на одно деление. Предположим также, что этот радионуклид переносится для трансмутации в нейтронном поле, например, специализированной установки. Тогда изменение количества этого нуклида во времени  $G_i(t)$  будет описываться следующим уравнением:

$$\frac{dG_i(t)}{dt} = Y_f^i \cdot N_f - [\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)] \cdot G_i(t),$$

где  $\Phi$  – плотность потока нейтронов, в котором осуществляется трансмутация.

Характер изменения во времени решения этого уравнения будет зависеть от начальных условий, т.е. с какого момента времени начинается процесс трансмутации. Здесь будут рассмотрены два случая.

Первый случай – трансмутация начинается одновременно с началом работы системы реакторов. Тогда решение будет иметь следующий вид:

$$G_i(t) = G_i^{eq}(\Phi) \cdot \{1 - \exp(-[\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)] \cdot t)\},$$

где  $G_i^{eq}(\Phi) \equiv \frac{Y_f^i \cdot N_f}{\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)}$ .

График зависимости  $G_i(t)$  для различных уровней плотности потока нейтронов  $\Phi$  приведен на рис. 2.2.

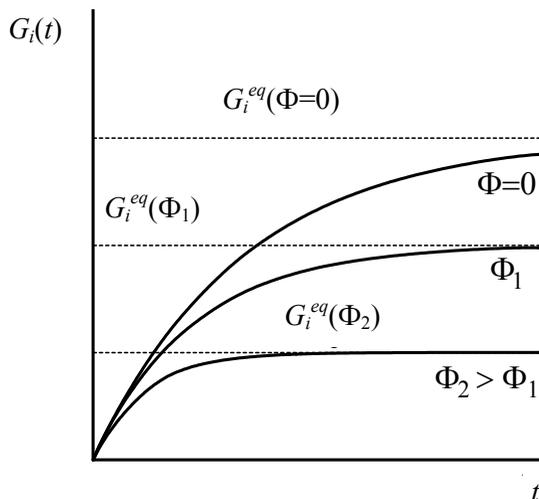


Рис. 2.2. Зависимость  $G_i(t)$  от времени при различных значениях плотности потока нейтронов  $\Phi$ , в котором происходит трансмутация

Из рис. 2.2 видно, что если  $\Phi = 0$ , т.е. трансмутация в нейтронном поле отсутствует, то количество радионуклида асимптотически выходит на равновесный уровень, обусловленный накоплением и естественным распадом. При этом равновесное количество радионуклида составит

$$G_i^{eq}(\Phi = 0) = \frac{Y_f^i \cdot N_f}{\lambda_i}.$$

Если  $\Phi \neq 0$ , то в зависимости от плотности потока нейтронов равновесное количество радионуклида будет меньше, чем в отсутствие потока нейтронов:

$$\frac{G_i^{eq}(\Phi)}{G_i^{eq}(\Phi = 0)} = \frac{\lambda_i}{\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)}$$

и к равновесию оно будет приближаться тем быстрее, чем выше  $(\sigma^i \cdot \Phi)$ , т.е. чем выше  $\Phi$ , при неизменном  $\sigma^i$ .

Учитывая асимптотический характер временной зависимости  $G_i(t)$ , нетрудно получить, что выход на уровень, отличающийся на 10% от равновесного, будет достигаться через

$$\Delta T_i^{eq} \approx 2,3 \cdot l_i.$$

Таким образом, в рассматриваемой модели ядерной системы радионуклиды – продукты деления всегда будут выходить на равновесие (рано или поздно) даже и без специального трансмутационного процесса ( $\Phi = 0$ ). Однако поскольку для долгоживущих продуктов деления, представляющих определенную опасность, среднее время жизни  $l_i = 1/\lambda_i$  составляет десятки, сотни, тысячи или даже миллионы лет, то и время выхода их на равновесие (даже с учетом 10%-го отличия от равновесного) будет таким же долгим и по существу воспринимается как недостижимое. В то же время, если разрабатываемая технология трансмутации ( $\Phi \neq 0$ ) позволит сократить среднее время жизни нуклида  $l_i = 1/[\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)]$  с миллионов

лет всего лишь до тысячелетий или даже до сотен лет, то и в этом случае время достижения близкой к равновесию трансмутации составит также тысячи или сотни лет. С уверенностью можно говорить, что эффект от применения такой трансмутации вряд ли можно считать существенным. Эффект трансмутации будет носить скорее психологический характер и состоять в убежденности, что основная цель в принципиальном плане может быть достигнута. Поэтому приемлемая технология трансмутации должна обеспечивать более быстрое достижение цели.

Второй случай – трансмутация начинается, когда в ядерной системе уже накоплено такое количество радионуклида, которое соответствует равновесному значению при осуществлении трансмутационного процесса. График изменения  $G_i(t)$  от времени для этого случая представлен на рис. 2.3.

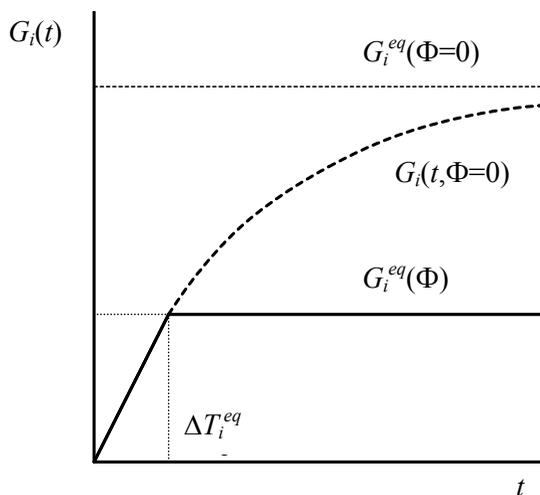


Рис. 2.3. Изменение  $G_i(t)$  от времени для случая, когда к началу трансмутации накоплено равновесное количество долгоживущего нуклида

Для оценки времени  $\Delta T_i^{eq}(\Phi)$ , требующегося для накопления равновесного количества радионуклида в этом случае, предположим, что  $\lambda_i \ll (\sigma^i \cdot \Phi)$ , т.е. либо имеется в виду весьма долгоживущий радионуклид, либо рассматривается быстрая трансмутация. В таком предположении равновесное количество радионуклида будет следующим:

$$G_i^{eq}(\Phi) \approx \frac{Y_f^i \cdot N_f}{(\sigma^i \cdot \Phi)},$$

а время накопления этого количества  $\Delta T_i^{eq}$  в системе можно легко найти из уравнения для накопления радионуклида:

$$G_i^{eq}(\Phi) \approx Y_f^i \cdot N_f \cdot \Delta T_i^{eq}.$$

Отсюда получаем 
$$\Delta T_i^{eq} \approx \frac{1}{(\sigma^i \cdot \Phi)}.$$

Видно, что время достижения равновесной трансмутации соответствует среднему времени жизни этого долгоживущего нуклида в нейтронном поле  $\Delta T_i^{eq} \approx l_i$ . Если оно будет составлять несколько десятков лет или даже меньше, то такую трансмутационную технологию можно было бы рассматривать как достаточно приемлемую. Учитывая, что ядерная энергетика уже функционирует около пяти десятилетий, в течение которых накапливались долгоживущие радионуклиды, разработка такой технологии трансмутации позволила бы довольно быстро достичь равновесного состояния, когда трансмутируется столько же долгоживущих радионуклидов, сколько их накапливается в ядерной энергосистеме.

В принципиальном плане разработка такой технологии с демонстрацией эффективной трансмутации позволила бы сформулировать тезис о том, что широкое использование нынешним поколением людей ядерной энергетике, основанной на процессе деления

тяжелых нуклидов, не будет создавать проблем с радиоактивными отходами для последующих поколений.

### **2.3. Оценка времени выхода на равновесную трансмутацию под действием тепловых и быстрых нейтронов**

Для оценки времени выхода на равновесную трансмутацию  $\Delta T_i^{eq}$  наиболее опасных долгоживущих и среднеживущих радионуклидов – продуктов деления введем некоторые предположения о параметрах спектра тепловых и быстрых нейтронов.

Будем предполагать, что спектр тепловых нейтронов имеет среднюю энергию 1 эВ и плотность потока  $\Phi = 10^{14}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ , а спектр быстрых нейтронов – среднюю энергию 200 кэВ и плотность потока  $\Phi = 10^{15}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ . Эти характеристики нейтронного поля в некоторой степени отражают возможные условия для трансмутации в тепловых и быстрых реакторах существующих типов. В табл. 2.1 приведены средние сечения захвата нейтронов для важнейших радионуклидов – продуктов деления и время накопления их равновесного количества –  $\Delta T_i^{eq}$ .

Из табл. 2.1 видно, что в принятых предположениях относительно интенсивности и спектра нейтронов время достижения равновесной трансмутации в пределах сотни лет возможно только для трех долгоживущих радионуклидов:  $^{99}\text{Tc}$  и  $^{129}\text{I}$  (в смягченном спектре нейтронов),  $^{107}\text{Pd}$  (в резонансном спектре нейтронов). Для остальных долгоживущих радионуклидов этот срок растягивается на столетия и даже на тысячелетия. Это означает, что в рассматриваемых нейтронных полях трансмутация остальных нуклидов не эффективна и вряд ли приемлема.

Таблица 2.1

**Средние сечения захвата нейтронов и время накопления равновесного количества трансмутируемых радионуклидов для теплового и быстрого спектра нейтронов**

Нуклид	$T_{1/2}$ , год	$\sigma_{n\gamma}$ , барн		$\Delta T_i^{eq}$ , год	
	$\beta$ -распад	быстрые нейтроны	тепловые нейтроны	быстрые нейтроны	тепловые нейтроны
$^{79}\text{Se}$	$6,5 \cdot 10^4$	0,03	0,1	1050	3160
$^{90}\text{Sr}$	29,0	0,01	0,14	93*	93*
$^{93}\text{Zr}$	$1,5 \cdot 10^6$	0,03	0,28	1050	1140
$^{99}\text{Tc}$	$2,1 \cdot 10^5$	0,2	4,3	158	73
$^{107}\text{Pd}$	$6,5 \cdot 10^6$	0,5	0,3	63	1050
$^{126}\text{Sn}$	$1,0 \cdot 10^5$	0,005	0,05	6300	6300
$^{129}\text{I}$	$1,6 \cdot 10^7$	0,14	4,3	230	73
$^{135}\text{Cs}$	$2,3 \cdot 10^6$	0,07	1,3	445	245
$^{137}\text{Cs}$	30,0	0,01	0,02	96*	96*

\*) Для радионуклидов  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в принятых условиях скорость нейтронной трансмутации пренебрежимо мала по сравнению с естественным распадом, т.е.  $(\sigma^i \cdot \Phi) \ll \lambda_i$ , и эти радионуклиды асимптотически выходят на равновесие практически только под действием естественного распада. Поэтому здесь под  $\Delta T_i^{eq}$  понимается время достижения 90%-го уровня от равновесного количества радионуклидов.

Как уже упоминалось, скорость нейтронной трансмутации характеризуется величиной  $(\sigma^i \cdot \Phi)$ , а время достижения равновесной трансмутации –  $\Delta T_i^{eq} \cong 1/(\sigma^i \cdot \Phi)$ . Чтобы ускорить трансмутацию и, соответственно, сократить время достижения равновесного режима, надо стремиться повысить плотность нейтронного потока и сформировать спектр нейтронов таким образом, чтобы среднее сечение трансмутации было по возможности большим. Подобного рода задачи уже решаются, например, при накоплении радиоизотопов путем облучения мишеней в специализированных ядерных ус-

тановках – ядерных реакторах с высоким потоком нейтронов. Так, в высокопоточном реакторе для накопления изотопов HFIR (Ок-Ридж, США) плотность потока нейтронов составляет  $\sim 2 \cdot 10^{15}$  нейтр./( $\text{см}^2 \cdot \text{с}$ ), что в 20 раз больше, чем в рассматриваемом выше примере ( $10^{14}$  нейтр./( $\text{см}^2 \cdot \text{с}$ ), тепловые нейтроны). Иными словами, технология создания нейтронных полей повышенной интенсивности уже используется и может быть применена для трансмутации долгоживущих продуктов деления ( $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ). Однако для сокращения времени достижения равновесного режима трансмутации  $^{126}\text{Sn}$  требуется еще более высокая плотность потока нейтронов, что уже превышает достигнутые возможности. Примеры концепций технологических установок (электроядерных и термоядерных), предназначенных для создания нейтронных полей повышенной интенсивности, рассмотрены в Приложениях.

Особо следует остановиться на обращении с такими среднеживущими радионуклидами, как  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Их средние сечения захвата нейтронов малы, а скорость естественного распада достаточно велика ( $T_{1/2} \sim 30$  лет). Поэтому требуется рекордно высокая плотность потока нейтронов ( $\sim 10^{16}$  нейтр./( $\text{см}^2 \cdot \text{с}$ )), чтобы трансмутация этих нуклидов имела смысл, т.е. чтобы  $(\sigma^i \cdot \Phi) \gg \lambda_i$ . Такие уровни потоков нейтронов достижимы в импульсных реакторах и ядерных взрывах.

В этой связи следует заметить, что количество трансмутированного радионуклида, вообще говоря, зависит не просто от плотности потока нейтронов, а от величины флюенса нейтронов ( $\Phi \cdot \Delta t$ ), или, в более общем виде, зависит от выражения  $(\int \sigma^i \cdot \Phi \cdot dt)$ , если  $\sigma^i$  и  $\Phi$  сами зависят от времени. Поэтому приемлемость импульсной технологии создания нейтронных полей высокой интенсивности для трансмутации требует подробного анализа для каждого отдельного случая, но до настоящего времени такие исследования не проводились.

В то же время считается, что хранение  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в контролируемых условиях в течение нескольких сотен лет (200-600 лет) может быть достаточным для спада их активности до безопасного уровня.

Заметим, однако, что нуклид  $^{137}\text{Cs}$  находится в смеси с другими изотопами, среди которых  $^{135}\text{Cs}$  имеет период полураспада  $T_{1/2} = 2,3 \cdot 10^6$  лет. Это означает, что после распада  $^{137}\text{Cs}$  может появиться необходимость хранения материала миллионы лет, либо этот цезий придется извлечь из хранилища и подвергнуть трансмутации изотоп  $^{135}\text{Cs}$  в специализированных установках с высоким уровнем потока нейтронов. Возможность трансмутации  $^{135}\text{Cs}$  и требования к соответствующим установкам будут рассмотрены в Приложении П.1.3.

## 2.4. Трансмутационный цикл. Оценка потерь радионуклидов при рециклировании

Количество радионуклида, помещенное в нейтронное поле для трансмутации, уменьшается со временем по закону

$$G_i(t) = G_i(0) \cdot \exp\{-[\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)] \cdot t\},$$

и поэтому скорость трансмутации  $[\lambda_i + (\sigma^i \cdot \Phi)] \cdot G_i(t)$  со временем будет также снижаться. Это означает, что за один цикл облучения вряд ли возможно снизить количество имеющегося радионуклида больше, чем на порядок. Для дальнейшей трансмутации необходимо осуществлять многоцикловой процесс облучения с очисткой от дочерних продуктов и с восполнением радионуклида, как это показано на рис. 2.4.

Здесь предполагается, что в результате облучения загруженного радионуклида доля  $X$  от этого количества трансмутируется в короткоживущие или стабильные дочерние нуклиды. Поэтому в выгружаемом материале останется доля  $(1-X)$  от количества исходного радионуклида. Облученный материал затем поступает на регенерацию, где из него извлекаются продукты трансмутации. Как правило, при этом материал переводится в жидкое или газообразное состояние и, используя различие в химических свойствах исходного нуклида и продуктов трансмутации, осуществляют его

очистку. Далее остающийся очищенный радионуклид пополняется новой порцией, взятой из хранилища или с радиохимического завода, где перерабатывают облученное топливо ядерных реакторов. Затем изготавливаются твердотельные элементы (или в жидком виде) и направляются на следующий цикл облучения.

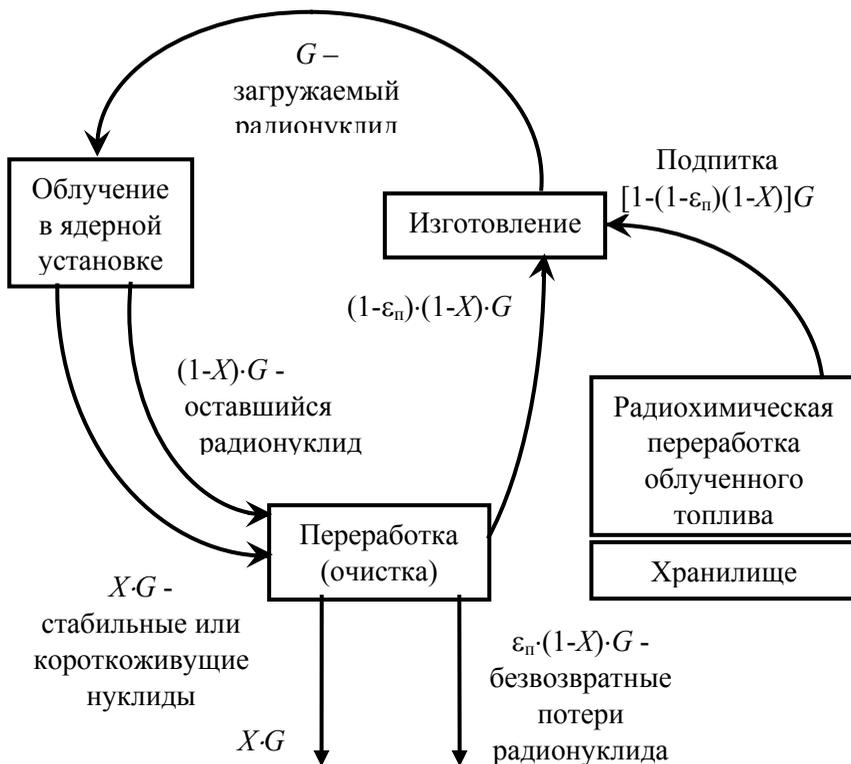


Рис. 2.4. Схема трансмутационного цикла для долгоживущего радионуклида с твердым облучаемым материалом:  $G$  – количество трансмутируемого нуклида, ежегодно загружаемого в ядерную установку;  $X$  – доля загруженного радионуклида, подвергшаяся трансмутации за цикл облучения;  $\varepsilon_n$  – доля безвозвратных потерь трансмутируемого нуклида при очистке от продуктов трансмутации

При реализации такого технологического процесса неизбежны некоторые безвозвратные потери радионуклида. Основным канал этих потерь будет связан с операцией очистки облученного материала от продуктов трансмутации.

Будем предполагать, что количество радионуклида, ежегодно загружаемого в ядерную установку для трансмутации, составляет  $G$ . В процессе облучения часть  $X \cdot G$  ежегодно трансмутируется, а на очистку поступает  $(1-X) \cdot G$ . Если  $\varepsilon_n$  – доля безвозвратных потерь радионуклида при очистке, то ежегодные безвозвратные потери радионуклида составят

$$\varepsilon_n \cdot (1 - X) \cdot G .$$

При выбранной технологии очистки эти безвозвратные потери будут подлежать захоронению.

Для оценки эффективности трансмутационного цикла введем показатель  $F$ , который будет характеризовать отношение количества радионуклида, безвозвратно теряемого при осуществлении трансмутационного цикла, к количеству радионуклида, поступающего в трансмутационный цикл с радиохимического завода или из хранилища. То есть он показывает, во сколько раз можно сократить количество захораниваемого радионуклида при трансмутации по сравнению с прямым захоронением. Выражение для определения показателя  $F$  имеет следующий вид:

$$F \equiv \frac{\text{Безвозвратные потери радионуклида}}{\text{Подпитка радионуклида}} = \\ = \frac{\varepsilon_n \cdot (1 - X) \cdot G}{[1 - (1 - \varepsilon_n) \cdot (1 - X)] \cdot G} = \frac{\varepsilon_n \cdot (1 - X)}{[1 - (1 - \varepsilon_n) \cdot (1 - X)]} .$$

Из приведенной формулы можно видеть, что значение  $F$  зависит не только от качества технологической операции очистки облученного материала, т.е. от величины безвозвратных потерь  $\varepsilon_n$ , но также и от  $X$  – глубины выжигания (трансмутации) радионуклида за цикл облучения. В табл. 2.2 приведены величины  $F$  при различных без-

возвратных потерях  $\epsilon_{\text{п}}$  и для различной глубины выжигания  $X$  за цикл облучения.

Таблица 2.2

**Величина показателя  $F$  в зависимости от глубины выжигания за цикл облучения при различных безвозвратных потерях**

Потери $\epsilon_{\text{п}}$	Коэффициент $F$		
	$X=0,1$	$X=0,5$	$X=0,9$
10%	0,47	0,09	0,01
1%	0,08	0,01	0,001
0,1%	0,009	0,001	0,0001

Из табл. 2.2 видно, что повышение глубины выжигания трансмутируемого радионуклида является важным фактором уменьшения потерь в результате осуществления трансмутационного цикла. Так, например, при выжигании 90% количества загруженного радионуклида за цикл облучения общие безвозвратные потери материала составят 1% даже при 10%-ных потерях на технологической операции очистки. Если же технология очистки обеспечит 1%-ные потери, то в этом случае количество радионуклида в безвозвратных потерях (т.е. количество захораниваемого радионуклида) можно будет снизить на три порядка по сравнению с прямым захоронением.

Однако глубокое выжигание за цикл облучения потребует повышенной плотности потока нейтронов, а также будет сопровождаться дополнительной потерей нейтронов за счет их поглощения накапливающимися продуктами трансмутации.

Таким образом, приведенные в табл. 2.2 данные можно использовать при выработке согласованных требований как к собственно процессу выжигания радионуклида, так и к выбору технологии, используемой в операциях очистки и регенерации.

Можно также сделать вывод о том, что существенно снизить количество долгоживущих радионуклидов можно с помощью такой

технологии регенерации облученного материала, которая обеспечивала бы малые безвозвратные потери.

Если материал, содержащий трансмутируемый радионуклид, используется в жидком виде (водный раствор, жидкий металл, расплавы солей), тогда появляется возможность осуществлять либо непрерывную, либо частую периодическую очистку облучаемого материала и подпитку трансмутируемым радионуклидом. Это представляется перспективным, однако нужно иметь в виду соображения безопасности. Использование облучаемого материала в жидком виде по существу подразумевает отказ от защитного барьера, связанного с удержанием радионуклидов в твердой матрице с защитным покрытием, как это имеет место при трансмутации с использованием твердотельного материала. Кроме того, необходимо принять меры по уменьшению возможных протечек и отложений радионуклидов в коммуникациях, соединяющих узлы ядерной установки, где происходит облучение материала, его очистка и пополнение.

## **2.5. Расход нейтронов на трансмутацию радионуклидов – продуктов деления**

Перевести долгоживущий радионуклид в стабильный или короткоживущий изотоп можно, изменив состав нуклонов его ядра. Под действием нейтронов протекают разнообразные ядерные реакции, среди которых более распространены:  $(n,\gamma)$ ,  $(n,p)$ ,  $(n,\alpha)$ ,  $(n,2n)$ ,  $(n,3n)$ . Реакция захвата нейтрона  $(n,\gamma)$ , как правило, превалирует для тепловых и резонансных нейтронов, пороговые реакции и реакции с вылетом заряженных частиц – для быстрых нейтронов (хотя и здесь имеются исключения).

Предпочтительным для трансмутации нуклидов продуктов деления считается использование реакции радиационного захвата нейтронов  $(n,\gamma)$ . Что касается использования пороговой  $(n,2n)$ -реакции для трансмутации, то термоядерная  $(dt)$ -реакция может рассматриваться как источник высокоэнергетичных нейтронов ( $E_n = 14,1$  МэВ) для этой цели. Однако при существующих ограниче-

ниях по нагрузке на первую стенку в термоядерных установках типа ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) оказывается, что плотность потока надпороговых нейтронов (т.е. нейтронов с энергией выше 6-8 МэВ) в blankets невелика. Так как сечение  $(n,2n)$ -реакции также невелико ( $\sim 1$  барн), среднее время жизни трансмутируемых нуклидов по  $(n,2n)$ -каналу составит столетия, и поэтому такую трансмутацию при этих условиях нельзя признать эффективной.

В электроядерных установках пучок заряженных частиц (протонов, дейтронов, ядер гелия и др.), бомбардируя мишень из тяжелого материала, рождает каскад ядерных реакций, вызывающих генерацию нейтронов. В спектре нейтронов такого источника имеется заметная доля (около 15%) надпороговых нейтронов. Однако стремление получить высокую плотность потока надпороговых нейтронов и здесь ограничивается мощностью пучка ускорителя и энерговыделением в мишени. Даже разработки перспективных электроядерных установок в настоящее время не позволяют говорить о том, что  $(n,2n)$ -канал может обеспечить достаточно быструю трансмутацию. Много проще (хотя и не совсем просто) создавать потоки нейтронов резонансных и тепловых энергий достаточно высокой интенсивности, чтобы реализовывать эффективную трансмутацию по  $(n,\gamma)$ -каналу.

Последовательность ядерных превращений долго- и среднеживущих нуклидов – продуктов деления, трансмутируемых по  $(n,\gamma)$ -каналу, приведена в табл. 2.3.

Из табл. 2.3 видно, что трансмутация через  $(n,\gamma)$ -канал действительно приводит к возникновению короткоживущих ( $\beta$ -активных) и стабильных нуклидов. В большинстве случаев оказывается достаточно одной  $(n,\gamma)$ -реакции, чтобы в последующем после  $\beta$ -распадов образовалось стабильное ядро другого химического элемента. В то же время для трансмутации  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$  и  $^{107}\text{Pd}$  требуются две  $(n,\gamma)$ -реакции, чтобы образовался другой стабильный элемент, который можно с помощью химических методов отделить при очистке облученного материала.

Из этой табл. 2.3 также видно, что для  $^{126}\text{Sn}$  достаточно одной  $(n,\gamma)$ -реакции, чтобы после трех  $\beta$ -переходов получить стабильное ядро  $^{127}\text{I}$  и затем его выделять химическими методами или нагрева-

нием, вследствие его высокой летучести. Однако если предусмотреть еще одну (n,γ)-реакцию  $^{127}\text{I}(n,\gamma)^{128}\text{I}(\beta^-, 25 \text{ мин})^{128}\text{Xe}$ , то выделение ксенона будет много проще и безопаснее, так как он – стабильный тяжелый инертный газ.

Таблица 2.3

**Последовательность нуклидных превращений продуктов деления**

Нуклид	$T_{1/2}$ , год $\beta$ -распад	Цепочка трансмутации в нейтронном поле
$^{79}\text{Se}$	$6,5 \cdot 10^4$	$^{79}\text{Se}(n,\gamma)^{80}\text{Se}(n,\gamma)^{81}\text{Se}(\beta^-, 18 \text{ мин}^*)^{81}\text{Br}_{\text{стаб}}$
$^{90}\text{Sr}$	29,0	$^{90}\text{Sr}(n,\gamma)^{91}\text{Sr}(\beta^-, 9,7 \text{ ч})^{91}\text{Y}(\beta^-, 58,8 \text{ сут})^{91}\text{Zr}_{\text{стаб}}$
$^{93}\text{Zr}$	$1,5 \cdot 10^6$	$^{93}\text{Zr}(n,\gamma)^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}(\beta^-, 64 \text{ сут})^{95}\text{Nb}(\beta^-, 95 \text{ сут})^{95}\text{Mo}_{\text{стаб}}$
$^{99}\text{Tc}$	$2,1 \cdot 10^5$	$^{99}\text{Tc}(n,\gamma)^{100}\text{Tc}(\beta^-, 15 \text{ с})^{100}\text{Ru}_{\text{стаб}}$
$^{107}\text{Pd}$	$6,5 \cdot 10^6$	$^{107}\text{Pd}(n,\gamma)^{108}\text{Pd}(n,\gamma)^{109}\text{Pd}(\beta^-, 13,5 \text{ ч})^{109}\text{Ag}_{\text{стаб}}$
$^{126}\text{Sn}$	$1,0 \cdot 10^5$	$^{126}\text{Sn}(n,\gamma)^{127}\text{Sn}(\beta^-, 2,1 \text{ ч})^{127}\text{Sb}(\beta^-, 3,85 \text{ сут})^{127}\text{Te}(\beta^-, 9,35 \text{ ч})^{127}\text{I}_{\text{стаб}}(n,\gamma)^{128}\text{I}(\beta^-, 25 \text{ мин})^{128}\text{Xe}_{\text{стаб}}$
$^{129}\text{I}$	$1,6 \cdot 10^7$	$^{129}\text{I}(n,\gamma)^{130}\text{I}(\beta^-, 12,3 \text{ ч})^{130}\text{Xe}_{\text{стаб}}$
$^{135}\text{Cs}$	$2,3 \cdot 10^6$	$^{135}\text{Cs}(n,\gamma)^{136}\text{Cs}(\beta^-, 13,7 \text{ сут})^{136}\text{Ba}_{\text{стаб}}$
$^{137}\text{Cs}$	30,0	$^{137}\text{Cs}(n,\gamma)^{138}\text{Cs}(\beta^-, 3,9 \text{ мин})^{138}\text{Ba}_{\text{стаб}}$

\*1) Величина периода полураспада

Располагая данными о расходе нейтронов на трансмутацию одного радионуклида и о среднем выходе радионуклида в расчете на одно деление, нетрудно оценить минимальный расход нейтронов на обезвреживание долгоживущих продуктов деления в расчете на одно деление (или в расчете на единицу энергии). Эти данные приведены в табл. 2.4 для делений  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами.

Видно, что выходы отдельных нуклидов при делении  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$  могут заметно различаться. Например, выход  $^{90}\text{Sr}$  при делении  $^{239}\text{Pu}$  почти в 3 раза меньше, чем при делении  $^{235}\text{U}$ .

Суммарный минимальный расход нейтронов для трансмутации всех перечисленных в табл. 2.4 радионуклидов составляет 0,35 (в расчете на одно деление  $^{235}\text{U}$ ) и 0,39 (в расчете на одно деление  $^{239}\text{Pu}$ ).

Оценивая, в какой мере велик этот расход нейтронов, нужно иметь в виду следующие три обстоятельства.

Во-первых, если ядерная энергетическая система будет состоять только из реакторов деления, то нейтроны для трансмутации придется использовать, только перераспределяя баланс цепной реакции деления. Как известно, в энергетических реакторах на тепловых нейтронах баланс цепной реакции таков, что нейтронов не хватает даже на восполнение прогорающего делящегося материала ( $^{235}\text{U}$  или плутония в урановом или смешанном уран-плутониевом топливе (МОХ-топливе), соответственно).

Таблица 2.4

**Выход радионуклидов при делении  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$  и минимальный расход нейтронов на трансмутацию**

Нуклид	Минимальный расход нейтронов (на один нуклид)	Выход $Y_f^i$ радионуклида в расчете на одно деление тепловыми нейтронами		Минимальный расход нейтронов на трансмутацию (в расчете на одно деление)	
		$^{235}\text{U}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{235}\text{U}$	$^{239}\text{Pu}$
$^{79}\text{Se}$	2	$4,8 \cdot 10^{-4}$	$3,9 \cdot 10^{-4}$	0,001	$7,8 \cdot 10^{-4}$
$^{90}\text{Sr}$	1	0,058	0,02	0,058	0,02
$^{93}\text{Zr}$	2	0,063	0,039	0,126	0,078
$^{99}\text{Tc}$	1	0,062	0,062	0,062	0,062
$^{107}\text{Pd}$	2	0,0014	0,032	0,003	0,064
$^{126}\text{Sn}$	2*	$6,0 \cdot 10^{-4}$	0,0031	0,001	0,006
$^{127}\text{I}^{**}$	1	0,0012	0,0046	0,0012	0,0046
$^{129}\text{I}^{**}$	1	0,0078	0,014	0,0078	0,014
$^{135}\text{Cs}^{***}$	1	0,066	0,072	0,066	0,072
$^{137}\text{Cs}$	1	0,062	0,065	0,062	0,065

\*) Минимальный расход нейтронов до получения стабильного  $^{128}\text{Xe}$ .

\*\*) Радиойод содержит, наряду с  $^{129}\text{I}$ , небольшое количество стабильного  $^{127}\text{I}$ . Изотопное разделение радиойода не предполагается.

\*\*\*) Основной канал образования  $^{135}\text{Cs}$  связан с  $\beta$ -распадом  $^{135}\text{Xe}$ .

Быстрые реакторы являются по сути своей бридерами, и это значит, что цепной процесс на быстрых нейтронах достаточно богат избыточными нейтронами. Этим нейтронам хватает не только на поддержание цепной реакции, но и на то, чтобы за счет поглощения в  $^{238}\text{U}$  накапливать плутоний в большем количестве, чем его расходуется при работе реактора. Если в будущем ядерная энергетика будет состоять в основном из быстрых реакторов, то не потребуются большого размножения плутония (разве что только на наращивание мощностей). В этом случае часть тепловыделяющих сборок экранов быстрых реакторов может быть заменена на сборки с трансмутируемыми долгоживущими радионуклидами. При этом будет поддерживаться требуемый баланс между расходуемым и накапливающимся плутонием, а остальные нейтроны, утекающие из активной зоны, могут расходоваться на трансмутацию долгоживущих радионуклидов – продуктов деления.

Если же ядерная система будет состоять из реакторов различного типа, то потребуются дополнительные установки – источники нейтронов (электроядерные установки, реакторы на высокообогащенном топливе, термоядерные установки).

Во-вторых, даже если проблема генерации избыточных нейтронов для трансмутации будет решена в рамках ядерной энергетике с реакторами на быстрых нейтронах, трансмутация большинства долгоживущих радионуклидов в экранах этих реакторов не может рассматриваться как эффективная. Как известно, плотность потока нейтронов в экранах быстрых реакторов примерно на порядок ниже, чем в активной зоне, и поэтому время достижения равновесной трансмутации растягивается на столетия и даже на тысячелетия. То есть только через столетия и более в ядерной энергетической системе перестанут накапливаться опасные долгоживущие радионуклиды. И только для трех долгоживущих нуклидов – продуктов деления ( $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  и  $^{107}\text{Pd}$ ) равновесное состояние между накоплением и трансмутацией в экране быстрого реактора достигается в пределах ста лет его непрерывной работы. Это соответствует умеренной величине минимального расхода – 0,15 нейтрона в расчете на одно деление, что может обеспечиваться балансом цепной реакции в быстром реакторе.

Для достаточно быстрой трансмутации остальных долгоживущих радионуклидов (с малым сечением захвата нейтронов) необ-

ходимо существенно повысить плотность потока нейтронов, что в рамках быстрого реактора представляется проблематичным, т.к. это привело бы к существенному повышению плотности энерговыделения в активной зоне и к ухудшению безопасности реактора. Для эффективного решения задачи трансмутации таких радионуклидов необходимо рассматривать специализированные высокопоточные установки на принципах электроядерной генерации нейтронов или с использованием термоядерных реакций.

В-третьих, предыдущее рассмотрение предполагало, что трансмутации подвергаются те радионуклиды, которые не только выделены из облученного топлива, но также отделены от их стабильных изотопов, входящих в состав продуктов деления. Как известно, современная технология изотопного разделения нуклидов со средней и тяжелой атомной массой предполагает разделение материала, находящегося в газообразном, атомарном или молекулярном состоянии.

В данном случае эта операция может рассматриваться как потенциально опасная, поскольку радиоактивный материал переводится в газообразное состояние, что потребует надежной герметизации оборудования и дистанционного обслуживания. Поэтому более безопасной была бы разработка технологии трансмутации, не включающей эту потенциально опасную операцию, т.е. трансмутации долгоживущих продуктов деления без их предварительного изотопного разделения. Однако такой процесс трансмутации будет характеризоваться не только повышенным расходом нейтронов на трансмутацию присутствующих стабильных изотопов, но также и другими физическими особенностями.

## **2.6. Некоторые особенности трансмутации долгоживущих радионуклидов – продуктов деления без предварительного изотопного разделения**

В этом случае трансмутации подвергается вся смесь изотопов элемента, среди которых находится долгоживущий радионуклид. Выходы при делении основных долгоживущих радионуклидов в смеси со стабильными их изотопами приведены в табл. 2.5 для деления  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами.

Состав продуктов деления  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами

Элемент	Выход нуклидов в расчете на одно деление $^{239}\text{Pu}$ тепловыми нейтронами
Sr	$0,013 \text{ }^{88}\text{Sr} + 0,02 \text{ }^{90}\text{Sr}$ ( $T_{1/2}=29$ лет)
Cs*	$0,069 \text{ }^{133}\text{Cs} + 0,072 \text{ }^{135}\text{Cs}^{**} + 0,065 \text{ }^{137}\text{Cs}$ ( $T_{1/2}=30$ лет)
I	$0,0046 \text{ }^{127}\text{I} + 0,014 \text{ }^{129}\text{I}^{**}$
Tc	$0,062 \text{ }^{99}\text{Tc}^{**}$
Pd	$0,058 \text{ }^{105}\text{Pd} + 0,042 \text{ }^{106}\text{Pd} + 0,032 \text{ }^{107}\text{Pd}^{**} + 0,021 \text{ }^{108}\text{Pd} + 0,006 \text{ }^{110}\text{Pd}$
Sn	$2,4 \cdot 10^{-5} \text{ }^{115}\text{Sn} + 4,6 \cdot 10^{-4} \text{ }^{117}\text{Sn} + 4,6 \cdot 10^{-4} \text{ }^{118}\text{Sn} +$ $+ 4,9 \cdot 10^{-4} \text{ }^{119}\text{Sn} + 4,3 \cdot 10^{-4} \text{ }^{120}\text{Sn} + 7,0 \cdot 10^{-4} \text{ }^{122}\text{Sn} +$ $+ 1,6 \cdot 10^{-4} \text{ }^{123}\text{Sn} + 1,3 \cdot 10^{-3} \text{ }^{124}\text{Sn} + 0,003 \text{ }^{126}\text{Sn}^{**}$
Se	$7,0 \cdot 10^{-5} \text{ }^{77}\text{Se} + 1,7 \cdot 10^{-4} \text{ }^{78}\text{Se} + 3,9 \cdot 10^{-4} \text{ }^{79}\text{Se}^{**} + 8,9 \cdot 10^{-4} \text{ }^{80}\text{Se} + 2,4 \cdot 10^{-3} \text{ }^{82}\text{Se}$
Zr	$0,02 \text{ }^{90}\text{Zr} + 0,024 \text{ }^{91}\text{Zr} + 0,03 \text{ }^{92}\text{Zr} + 0,04 \text{ }^{93}\text{Zr}^{**} + 0,039 \text{ }^{94}\text{Zr} + 0,05 \text{ }^{96}\text{Zr}$

\*) Без учета выгорания  $^{135}\text{Xe}$  – предшественника  $^{135}\text{Cs}$ .

\*\*) Долгоживущий радионуклид – кандидат для трансмутации.

Видно, что только  $^{99}\text{Tc}$  в продуктах деления является моноизотопом, а остальные долгоживущие радионуклиды появляются в смеси с их стабильными изотопами. Характер изменения содержания изотопов в смеси, облучаемой нейтронами, будет зависеть от нейтронно-физических свойств нуклидов и от вида цепочки нуклидных превращений. Тем не менее можно выделить некоторые характерные особенности временного изменения содержания долгоживущих радионуклидов, входящих в состав смеси и представляющих наибольший интерес.

Во-первых, происходят превращения более легких изотопов, присутствующих в смеси, в более тяжелые, на что, естественно, расходуются нейтроны и поэтому общий расход на трансмутационный процесс резко возрастает. Такая трансмутация всей совокупности долгоживущих продуктов деления может потребовать расхода одного или даже нескольких нейтронов в расчете на одно деление в ядерном реакторе. Ясно, что в рамках самоподдерживающейся цепной реакции, когда при делении появляется  $\nu_f$  ней-

тронов, нет возможности изыскать столько нейтронов, чтобы израсходовать их на трансмутацию. Здесь можно однозначно заключить, что необходимо привлекать в ядерную энергетическую систему дополнительные установки, в которых генерируются нейтроны не на базе самоподдерживающейся цепной реакции деления, а на иных принципах (электроядерный метод генерации нейтронов, термоядерный синтез).

Во-вторых, если долгоживущий радионуклид находится в средних звеньях цепочки, то в нейтронном поле наряду с трансмутацией будет происходить также и его образование из нуклидов-предшественников. Поэтому в процессе облучения содержание долгоживущего нуклида может даже повышаться со временем до некоторого предела, определяемого равновесием процессов последовательных переходов.

В-третьих, если долгоживущий радионуклид находится в средних звеньях цепочки превращений, то скорость его трансмутации может определяться минимальным сечением захвата нейтронов в цепочке изотопных переходов. Однако эта неблагоприятная взаимосвязь может быть ослаблена при соответствующем выборе момента начала трансмутации.

Если первые две особенности представляются достаточно понятными, то третья особенность может быть пояснена на упрощенной модели цепочки изотопных переходов.

Упрощенная трехзвенная модель цепочки изотопных переходов. Указанная трехзвенная модель участка изотопной цепочки может быть представлена следующим образом (рис. 2.5).

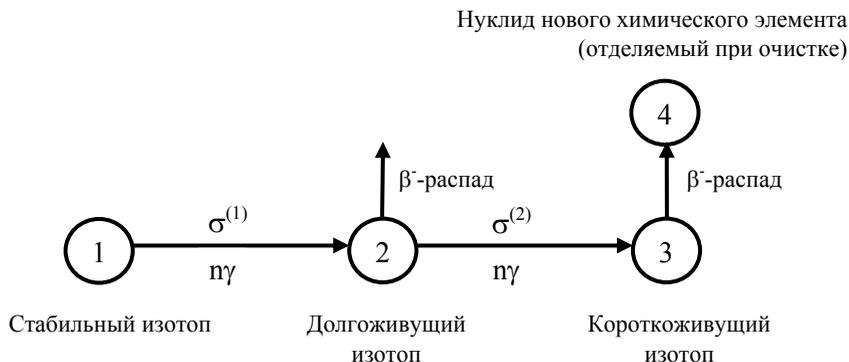


Рис. 2.5. Трехзвенная модель цепочки нуклидных превращений

Уравнения кинетики, описывающие изменение количества изотопов 1 и 2, имеют вид:

$$\frac{dG_1(t)}{dt} = Y_f^{(1)} \cdot N_f - (\sigma^{(1)} \cdot \Phi) \cdot G_1(t);$$

$$\frac{dG_2(t)}{dt} = Y_f^{(2)} \cdot N_f + (\sigma^{(1)} \cdot \Phi) \cdot G_1(t) - (\sigma^{(2)} \cdot \Phi) \cdot G_2(t).$$

Решим эту систему уравнений в предположении, что скорость делений  $N_f$  и коэффициенты при неизвестных функциях  $G_1(t)$ ,  $G_2(t)$  постоянны. Рассмотрим два варианта осуществления трансмутационного процесса.

1. Трансмутация начинается с самого начала работы реакторов. В этом случае решение системы уравнений удобно представить в следующем виде (через равновесные количества изотопов  $G_1^{eq}$  и  $G_2^{eq}$ ):

$$G_1(t) = G_1^{eq} \cdot \{1 - \exp[-\sigma^{(1)} \cdot \Phi \cdot t]\},$$

$$G_2(t) = G_2^{eq} \cdot \{1 - \exp[-\sigma^{(2)} \cdot \Phi \cdot t]\} -$$

$$- \frac{\sigma^{(1)} \cdot \Phi \cdot G_1^{eq}}{\sigma^{(2)} \cdot \Phi - \sigma^{(1)} \cdot \Phi} \cdot \{\exp[-\sigma^{(1)} \cdot \Phi \cdot t] - \exp[-\sigma^{(2)} \cdot \Phi \cdot t]\},$$

$$\text{где } G_1^{eq} = \frac{Y_f^{(1)} \cdot N_f}{\sigma^{(1)} \cdot \Phi}, \quad G_2^{eq} = \frac{[Y_f^{(1)} + Y_f^{(2)}] \cdot N_f}{\sigma^{(2)} \cdot \Phi}.$$

Рассмотрим условия выхода на равновесный состав, когда одно из сечений захвата нейтронов существенно больше другого.

Случай  $\sigma^{(1)} \ll \sigma^{(2)}$ . Для моментов времени, когда  $\exp[-\sigma^{(1)} \cdot \Phi \cdot t] \gg \exp[-\sigma^{(2)} \cdot \Phi \cdot t]$ , решения принимают вид:

$$G_1(t) = G_1^{eq} \cdot \{1 - \exp[-\sigma^{(1)} \cdot \Phi \cdot t]\},$$

$$G_2(t) = G_2^{eq} - \frac{\sigma^{(1)}}{\sigma^{(2)}} \cdot G_1^{eq} \cdot \exp[-\sigma^{(1)} \cdot \Phi \cdot t].$$

По виду этих зависимостей можно сделать вывод, что если трансмутация начинается с начала работы реакторов, то относительно медленный выход обоих нуклидов на равновесное состояние определяется экспонентой с показателем, зависящим от меньшего сечения из этих нуклидов, т.е. от  $\sigma^{(1)}$  (рис. 2.6,а).

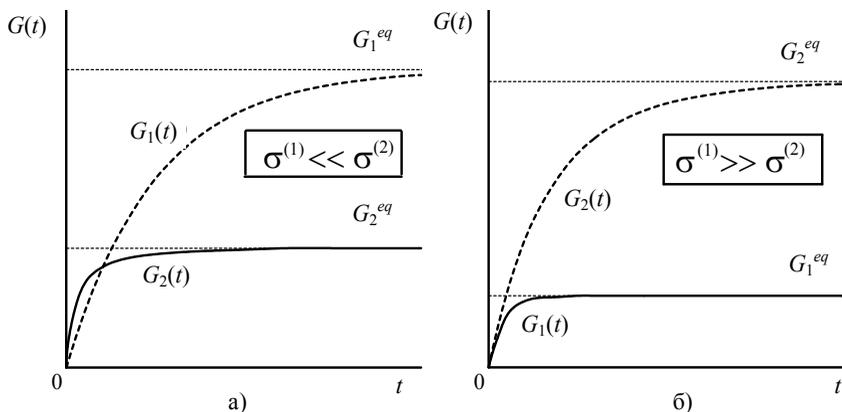


Рис. 2.6. Выход на равновесный режим трансмутируемых изотопов при различных соотношениях между их сечениями: а) –  $\sigma^{(1)} \ll \sigma^{(2)}$ ; б) –  $\sigma^{(1)} \gg \sigma^{(2)}$

Случай  $\sigma^{(1)} \gg \sigma^{(2)}$ . Для моментов времени, когда  $\exp[-\sigma^{(1)} \cdot \Phi \cdot t] \ll \ll \exp[-\sigma^{(2)} \cdot \Phi \cdot t]$ , решение можно записать в следующем виде:

$$G_1(t) \cong G_1^{eq} ,$$

$$G_2(t) \cong G_2^{eq} \cdot \{1 - \exp[-\sigma^{(2)} \cdot \Phi \cdot t]\} - G_1^{eq} \cdot \exp[-\sigma^{(2)} \cdot \Phi \cdot t] .$$

Можно видеть, что нуклид 1 быстро станет близок к равновесию. Что же касается выхода на равновесие для нуклида 2, то и тогда характер выхода определяется только экспонентой с показателем, зависящим от меньшего из этих двух сечений, т.е. от  $\sigma^{(2)}$ , и поэтому выход оказывается также медленным (рис. 2.6,б).

2. Трансмутация начинается спустя некоторое время после работы реакторов на мощности. Поскольку ядерная энергетика функционирует более пяти десятилетий, то к настоящему времени про-

дукты деления уже накоплены в довольно большом количестве. Поэтому реалистичнее рассматривать задачу о прекращении накопления долгоживущих радионуклидов продуктов деления путем их трансмутации именно с учетом накопленного количества  $G_1(t_0)$  и  $G_2(t_0)$  к моменту начала трансмутации  $t_0$ . Тогда естественным будет также вопрос о выборе этого момента времени  $t_0$ .

Так же, как это было описано в п.1, рассмотрим два случая.

Случай  $\sigma(1) \ll \sigma(2)$ . Решение уравнений кинетики, описывающее изменение количества нуклидов 1 и 2 (см. рис.2.5), удобно представить в следующем виде:

$$G_1(t) = G_1^{eq} - \{G_1^{eq} - G_1(t_0)\} \cdot \exp[-\sigma^{(1)}\Phi(t-t_0)] ,$$

$$G_2(t) = G_2^{eq} - \{G_2^{eq} - G_2(t_0)\} \cdot \exp[-\sigma^{(2)}\Phi(t-t_0)] +$$

$$+ \frac{\sigma^{(1)}\{G_1(t_0) - G_1^{eq}\}}{\sigma^{(2)} - \sigma^{(1)}} \cdot \{\exp[-\sigma^{(1)}\Phi(t-t_0)] - \exp[-\sigma^{(2)}\Phi(t-t_0)]\} .$$

В рассматриваемом случае момент времени  $t_0$  удобно выбрать из условия, чтобы  $G_2(t_0) = G_2^{eq}$  и тогда для  $t_0$  получается оценка

$$t_0 = \left(1 + \frac{Y_1}{Y_2}\right) \cdot T_{(2)} ,$$

где  $T_{(2)}$  – среднее время жизни нуклида 2 в нейтронном поле. К моменту времени  $t_0$  нуклид 1 будет накоплен в количестве

$$G_1(t_0) = \frac{\sigma^{(1)}}{\sigma^{(2)}} \cdot \left(1 + \frac{Y_1}{Y_2}\right) \cdot G_1^{eq} < G_1^{eq} ,$$

так как  $\sigma^{(1)} \ll \sigma^{(2)}$ . Тогда с началом трансмутационного процесса накапливаемое количество нуклида 1 от значения  $G_1(t_0) < G_1^{eq}$  будет асимптотически приближаться к  $G_1^{eq}$  (рис.2.7,а). В то же время

количество долгоживущего нуклида 2 от равновесного количества  $G_2(t_0) = G_2^{eq}$  будет сначала понижаться, так как его пополнение из нуклида 1 еще не соответствует равновесному уровню. Затем количество нуклида 2 начнет возрастать, асимптотически стремясь вновь к своему равновесному значению  $G_2^{eq}$ .

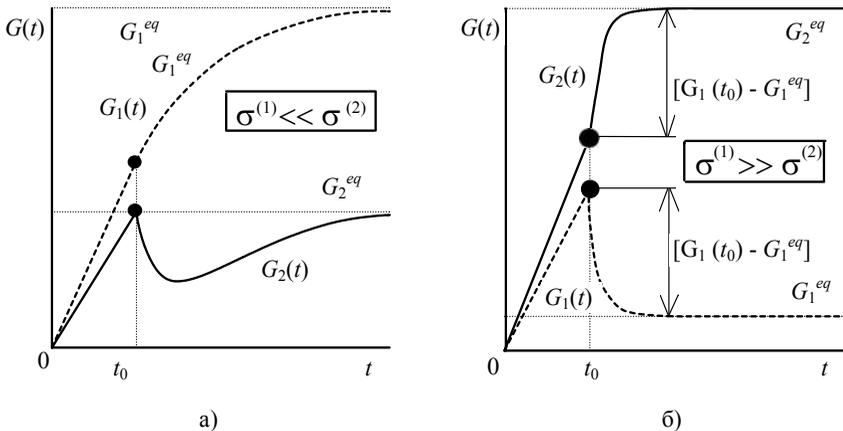


Рис. 2.7. Выход на равновесный режим трансмутируемых нуклидов в момент времени  $t_0$ , при различных соотношениях между сечениями: а)  $\sigma^{(1)} \ll \sigma^{(2)}$ ; б)  $\sigma^{(1)} \gg \sigma^{(2)}$

Здесь следует отметить одно важное обстоятельство. Выбранный момент времени

$$t_0 = \left( 1 + \frac{Y_1}{Y_2} \right) \cdot T_{(2)}$$

не зависит от  $T_{(1)}$  – среднего времени жизни нуклида 1, чье  $\sigma^{(1)} \ll \ll \sigma^{(2)}$ . Иными словами, момент начала прекращения накопления долгоживущего нуклида 2 в системе реакторов не определяется малостью сечения нуклида 1, поэтому такой момент начала трансмутационного процесса может оказаться не столь отдаленным.

Случай  $\sigma^{(1)} \gg \sigma^{(2)}$ . Решение уравнений кинетики для нуклидов 1 и 2 в этом случае удобно записать в следующем виде:

$$G_1(t) = G_1^{eq} + \{G_1(t_0) - G_1^{eq}\} \cdot \exp[-\sigma^{(1)}\Phi(t - t_0)],$$

$$G_2(t) = G_2^{eq} - \{G_2^{eq} - G_2(t_0)\} \cdot \exp[-\sigma^{(2)}\Phi(t - t_0)] +$$

$$+ \frac{\sigma^{(1)}\{G_1(t_0) - G_1^{eq}\}}{\sigma^{(1)} - \sigma^{(2)}} \cdot \{\exp[-\sigma^{(2)}\Phi(t - t_0)] - \exp[-\sigma^{(1)}\Phi(t - t_0)]\}.$$

Хотя радионуклид 2 характеризуется относительно малым сечением  $\sigma^{(2)}$ , однако приближение к равновесному его количеству  $G_2^{eq}$  с началом трансмутации ускоряется благодаря эффективному переходу нуклида 1 в нуклид 2 (поскольку  $\sigma^{(1)} \gg \sigma^{(2)}$ ). Поэтому момент времени  $t_0$  для начала трансмутационного процесса в этом случае может быть выбран из условия

$$G_2^{eq} = G_2(t_0) + \{G_1(t_0) - G_1^{eq}\}.$$

Тогда для  $t_0$  получается следующая оценка:

$$t_0 = T_{(2)} + \frac{Y_1}{Y_1 + Y_2} \cdot T_{(1)} = \left(1 + \frac{Y_1}{Y_1 + Y_2} \cdot \frac{T_{(1)}}{T_{(2)}}\right) \cdot T_{(2)}.$$

Так как  $\sigma^{(1)} \gg \sigma^{(2)}$ , то  $T_{(2)} \gg T_{(1)}$  и  $t_0$  по величине будет слегка превышать  $T_{(2)}$ .

С началом трансмутационного процесса нуклид 1, которого было накоплено к моменту времени  $t_0$  больше его равновесного количества ( $G_1(t_0) > G_1^{eq}$ ), будет относительно быстро переходить в нуклид 2 ( $\sigma^{(1)} \gg \sigma^{(2)}$ ), уменьшаясь в количестве и асимптотически стремясь к своему равновесному значению  $G_1^{eq}$  (рис.2.7,б). Радио-

нуклид 2, количество которого к моменту времени  $t_0$  было меньше равновесного ( $G_2(t_0) < G_2^{eq}$ ), будет быстро пополняться за счет перехода из нуклида 1, стремясь к  $G_2^{eq}$ .

В рассматриваемом случае время начала трансмутации будет определяться, главным образом, средним временем жизни самого радионуклида 2 в нейтронном поле, а присутствие стабильного изотопа 1 приведет лишь к незначительному его увеличению.

Изложенное выше относилось к модельной трехзвенной цепочке изотопных переходов. Реальные цепочки могут включать и больше звеньев. Однако следует отметить, что с началом трансмутации нуклиды с большими нейтронными сечениями будут претерпевать быстрые переходы. Вследствие этого, а также при соответствующем выборе начала трансмутационного процесса можно обеспечить, чтобы количество долгоживущего радионуклида приблизилось к равновесному значению. При этом будет достигнута одна из важных целей трансмутации – прекращение накапливания долгоживущих радионуклидов – продуктов деления в функционирующей ядерной энергетической системе.

При осуществлении рециклирования долгоживущего радионуклида в трансмутационном цикле без изотопного разделения равновесная загрузка этого радионуклида будет выше, чем в случае с предварительным изотопным разделением. Это повлечет за собой большие потери радионуклида при рециклировании, что необходимо учитывать при разработке технологии трансмутационного цикла.

В заключение заметим, что переходный процесс трансмутации может потребовать переменной по времени интенсивности генерации нейтронов на его обеспечение, что необходимо будет учитывать при планировании ввода в строй трансмутационных установок и организации самого процесса трансмутации.

Необходимо учитывать также, что мощность ядерной энергетической системы может заметно изменяться в пределах рассматриваемого временного диапазона.

## **2.7. Об основных критериях для оценки эффективности обезвреживания долгоживущих радиоактивных отходов**

Как было рассмотрено выше, процесс обезвреживания (трансмутации) долгоживущих РАО включает в себя несколько стадий. Сюда относятся собственно облучение радионуклидов в нейтронном поле, а также внешние технологические операции с очисткой облученного материала и с его регенерацией. Процесс трансмутации может быть однократным (одноцикловым), когда облученный материал с «выжженным» долгоживущим радионуклидом после выгрузки отправляется на захоронение. Этот процесс может также быть многократным (многоцикловым), когда облученный материал подвергается очистке от накопившихся стабильных (и короткоживущих) дочерних продуктов трансмутации основного долгоживущего нуклида, пополняется новой порцией этого нуклида и затем подвергается следующему циклу облучения. Такой многостадийный процесс трудно характеризовать единым количественным критерием (по крайней мере, до сих пор такого критерия не найдено). Поэтому представляется целесообразным выделить несколько наиболее важных и информативных показателей. К таким показателям можно отнести следующие: среднее время жизни трансмутируемого радионуклида в нейтронном поле, неизбежные потери радионуклидов в технологическом цикле трансмутации, генерацию избыточных нейтронов для трансмутации, безопасность трансмутационного цикла для окружающей среды.

Поясним, почему выбраны именно эти показатели в качестве приоритетных.

Среднее время жизни трансмутируемого радионуклида в нейтронном поле. Этот показатель даёт представление о том, в какой степени может быть сокращено время жизни трансмутируемого радионуклида в нейтронном поле по сравнению с естественным радиоактивным распадом. Однако гораздо важнее то, что этот показатель определяет время достижения основной цели трансмутации – достижение равновесного режима, т.е. он определяет время накопления равновесной загрузки трансмутируемого нуклида. Важность этого показателя определяется также тем, что, по суще-

ству, только при достижении равновесной трансмутации (когда трансмутируется ровно столько, сколько образуется радионуклидов в системе) ядерная энерготехнология приобретает новое качество – качество «чистой» энерготехнологии, т.е. энерготехнологии, в которой производство полезной энергии не будет сопровождаться накоплением опасных долгоживущих радионуклидов.

Поскольку трансмутируемые радионуклиды появляются только в результате функционирования ядерной энергетике, поэтому остается только ждать, пока ядерная энергетика «накопит» их в достаточном количестве. Если равновесная загрузка окажется большой, то, с одной стороны, может потребоваться длительное время на ее накопление, а с другой, эту большую равновесную загрузку трудно будет разместить в трансмутационной установке, особенно учитывая то обстоятельство, что таких установок желательно иметь малое количество по отношению к энергетическим реакторам. И если окажется, что для накопления равновесной загрузки потребуются несколько столетий, то роль такого процесса долгое время будет невелика. В этом случае разумно будет поставить вопрос о целесообразности такой неэффективной трансмутации.

Неизбежные потери радионуклидов в технологическом цикле трансмутации. Реальный технологический процесс трансмутации будет сопровождаться неизбежными потерями радиоактивных материалов. С этой точки зрения важным является обеспечение «глубокой» трансмутации в каждом цикле и сокращение потоков радиоактивных материалов во внешних операциях трансмутационного цикла, что, в конечном счете, и определит, в какой мере трансмутационный процесс уменьшает количество долгоживущих радионуклидов.

Генерация избыточных нейтронов для трансмутации. Трансмутационный процесс должен быть обеспечен достаточным количеством избыточных нейтронов. Источник избыточных нейтронов, включенный в систему ядерной энергетике, может существенным образом влиять на конфигурацию многокомпонентной ядерной системы и, следовательно, на эффективность и конкурентоспособность производства полезной энергии. В настоящее время наряду с быстрыми реакторами анализируется потенциал электроядерных и термоядерных установок как источников нейтронов для обеспечения трансмутационного процесса.

Безопасность трансмутационного цикла для окружающей среды. Требования по безопасности трансмутационного цикла должны быть более жесткими, чем требования по воздействию на окружающую среду, налагаемые на энергетические ядерные реакторы. Воздействие ядерных источников энергии на окружающую среду обычно сопоставляют с воздействием энергоисточников на органическом топливе (например, угольных электростанций). В случае реализации трансмутационного цикла его безопасность не должна быть ниже безопасности, которую можно обеспечить для окружающей среды и человека при захоронении РАО. Представляется, что этот весьма существенный фактор может сузить выбор концепций трансмутационных установок и соответствующих технологий.

### **3. ГЕНЕРАЦИЯ НЕЙТРОНОВ ДЛЯ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ТРАНСМУТАЦИИ ДОЛГОЖИВУЩИХ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ**

В данном разделе будет дан анализ баланса нейтронов в критических системах (ядерные реакторы) и в системах с внешним источником (электроядерные установки (ЭЛЯУ) с генерацией нейтронов в мишени, облучаемой пучком заряженных частиц, и термоядерные установки (ТЯУ)). Причем ЭЛЯУ и ТЯУ могут иметь подкритический размножающий бланкет с актинидами, либо бланкет, не содержащий делящихся материалов.

#### **3.1. Критические системы (ядерные реакторы)**

Критическая система характеризуется нейтронным балансом самоподдерживающейся цепной реакции деления. Применительно к ядерным реакторам на урановом топливе этот баланс может быть записан в следующем виде (в расчете на одно деление в основном делящемся материале):

$$v_f^{235} - 1 - \alpha_{235} + \Delta_f^{238} - \Delta^n - L - \Delta_c^{238} = 0,$$

где  $\nu_f^{235}$  – число нейтронов, появляющееся при делении  $^{235}\text{U}$ ;  $\alpha_{235} = \sigma_c^{235} / \sigma_f^{235}$ ;  $\Delta_f^{238}$  – дополнительное размножение нейтронов за счет деления  $^{238}\text{U}$ ;  $\Delta^n$  – доля нейтронов, потерянных при поглощении в конструкционных материалах, теплоносителе, в накапливающихся продуктах деления и в органах управления;  $L$  – доля нейтронов, теряемых при утечке;  $\Delta_c^{238}$  – доля нейтронов, поглощенных в  $^{238}\text{U}$  (воспроизводство вторичного делящегося материала).

Пример такого баланса нейтронов для теплового реактора и для быстрого реактора приведен в табл. 3.1.

Таблица 3.1

**Баланс нейтронов для теплового реактора с урановым топливом  
и для быстрого реактора с уран-плутониевым топливом**

Тип реактора	$\nu_f^{235} - 1$	$-\alpha_{235}$	$+\Delta_f^{238}$	$-\Delta^n$	$-\Delta_c^{238}$	Баланс
Реактор на тепловых нейтронах (U-топливо)	2,46 – 1	– 0,55	+ 0,04	– 0,45	– 0,5	0
Реактор на быстрых нейтронах (U-Pu топливо)	2,87 – 1*)	– 0,2	+ 0,10	– 0,27	– 1,5	0

\*) Здесь имеется в виду  $\nu_f^{239} - 1$

Из табл. 3.1 видно, что высвободить нейтроны для трансмутации можно только в результате перераспределения нейтронного баланса цепной реакции. Например, можно уменьшить расход нейтронов на захват в  $^{238}\text{U}$ , если уменьшить количество  $^{238}\text{U}$ , используемого в реакторах, а за счет этого ввести трансмутируемые долгоживущие продукты деления.

Однако следует заметить, что в тепловых реакторах доля нейтронов, поглощаемых в  $^{238}\text{U}$ ,  $\Delta_c^{238} \cong 0,5$ , т.е. на одно сгоревшее ядро  $^{235}\text{U}$ , не воспроизводится даже и одного ядра вторичного делящегося материала  $^{239}\text{Pu}$ . При переключении части нейтронов на трансмутацию увеличится расход  $^{235}\text{U}$ , повысится необходимый запас реактивности на выгорание, может ухудшиться безопасность в связи с уменьшением отрицательной обратной связи, связанной с эффектом Доплера.

Реакторы на быстрых нейтронах характеризуются более богатым нейтронным балансом, о чем можно судить по величине  $\Delta_c^{238} = 1,5$  – расходу нейтронов на воспроизводство вторичного делящегося материала. Превышение над единицей означает, что воспроизводится плутония заметно больше, чем расходуется в реакторе (реактор-бридер).

Если в перспективе ядерная энергетика будет в основном базироваться на быстрых реакторах, то наработка вторичного топлива потребует только на восполнение прогорающего первичного топлива, а также на обеспечение развития ядерной энергосистемы. Тогда в быстрых реакторах часть урана в экранах можно будет заменить на трансмутируемые долгоживущие радионуклиды, т.е. такой реактор можно рассматривать как источник нейтронов для трансмутации. Трансмутационный потенциал такого быстрого реактора (при условии самообеспечения топливом) мог бы составить  $\sim 0,5$  нейтрона в расчете на одно деление.

Если сопоставить минимальные потребности в нейтронах на трансмутацию основных долгоживущих продуктов деления  $0,35\text{--}0,4$  нейтр./деление (см. табл. 2.4.) с количеством избыточных нейтронов ( $\sim 0,5$ ), генерируемых в расчете на одно деление, то, казалось бы, можно сделать вывод о неплохом трансмутационном потенциале быстрого реактора. Действительно, избыточных нейтронов в быстром реакторе может оказаться достаточно для трансмутации основных долгоживущих радионуклидов – продуктов деления, однако, как уже было показано (см. раздел 2.7), трансмутационный потенциал не может характеризоваться только количеством генерируемых избыточных нейтронов. Для эффективной трансмутации требуется еще и достаточно высокая плотность нейтронного потока, чтобы наступление равновесной трансмутации не пришлось ждать в течение столетий (или даже тысячелетий) функционирования такой ядерной системы.

Как уже ранее рассматривалось (см. раздел 2.3), плотность потока нейтронов в экране быстрого реактора невысока, и, даже с учетом смягчения спектра нейтронов, время жизни ядер радионуклидов в таком нейтронном поле оказывается неприемлемо долгим (столетия и даже тысячелетия). Поэтому быстрые реакторы, по-

видимому, могут рассматриваться как установки для трансмутирования только  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  (без изотопного отделения от стабильного  $^{127}\text{I}$ ) и  $^{107}\text{Pd}$  после его предварительного изотопного выделения.

Для эффективной трансмутации остальных долгоживущих радионуклидов требуются более высокие плотности потока нейтронов. А поскольку уровень нейтронного потока в экране быстрого реактора связан с уровнем потока нейтронов в активной зоне, то увеличение плотности нейтронного потока повлечет за собой необходимость увеличения плотности энерговыделения в активной зоне, что имеет ограничения по теплогидравлике, работоспособности твэлов и безопасности.

## **3.2. Системы с внешним источником нейтронов**

В настоящее время известны два принципа генерации неактивных нейтронов в больших количествах: реакции глубокого расщепления тяжелых ядер под действием ускоренных заряженных частиц (электроядерный метод) и термоядерный синтез тяжелых изотопов водорода в установках с магнитным или инерционным удержанием плазмы.

### **3.2.1. Электроядерный метод генерации нейтронов**

Метод основан на взаимодействии ускоренных заряженных частиц с ядрами мишени из вещества с большой атомной массой. Процесс взаимодействия высокоэнергетических частиц с ядрами носит каскадный характер, когда первичная частица выбивает из ядер мишени множество вторичных частиц с достаточно большой энергией, чтобы в свою очередь выбивать следующие частицы. Таким образом, при поглощении в мишени пучка ускоренных частиц в ней возбуждаются реакции глубокого расщепления с последующим каскадно-испарительным размножением нейтронов, включая реакции  $(n, xn)$ . При этом в делящихся мишенях происходит деление ядер нуклонами с энергиями от нескольких МэВ до сотен и тысяч мегаэлектронвольт.

### 3.2.1.1. Внутриядерный и межъядерный каскад

Первичная ускоренная заряженная частица ( $p$ ,  $d$ ,  $He$ , ионы легких элементов), взаимодействуя с нуклонами ядра, передает им часть своей энергии и в результате внутриядерных взаимодействий (внутриядерного каскада) рождается множество вторичных частиц ( $p$ ,  $d$ ,  $\alpha$ ,  $t$ ,  $n$ ,  $\pi$ ,  $\mu$ ). Из этого множества частиц (рис. 3.1) те, которые заряжены, будут терять свою энергию на ионизацию и в процессе замедления взаимодействовать с ядрами до тех пор, пока их энергии достаточно, чтобы преодолеть кулоновский барьер (межъядерный каскад).

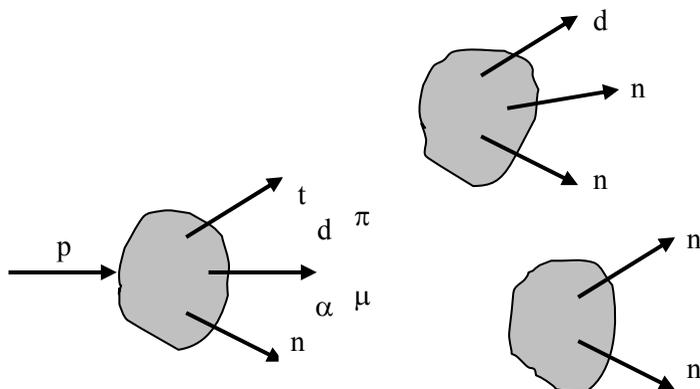


Рис. 3.1. Размножение частиц в каскадно-испарительном процессе ядерных взаимодействий

Нейтроны же, естественно, будут распространяться, сталкиваясь с ядрами и участвуя в неупругих реакциях, в том числе в реакциях ( $n, xn$ ). В итоге заряженные частицы со все меньшей энергией уже не будут способны порождать внутриядерный каскад, а будут только тормозиться в материале мишени до остановки. Таким образом, все заряженные частицы затормозятся, и останется только поток рожденных нейтронов, которые также участвовали во внутриядерном и межъядерном каскаде. В результате неупругих взаимодействий частиц с ядрами возникают возбужденные «горячие» ядра. Возбуждение этих ядер может сниматься путем испарения частиц из горячего ядра (преимущественно нейтронов), за счет высоко-

энергетического деления, сопровождаемого эмиссией дополнительных нейтронов, а также путем  $\gamma$ -излучения.

В качестве мишени используют преимущественно материал с большой атомной массой (Pb, Bi, W, U, Th и др.), а также, что является исключением, легкий элемент Be (порог реакции  $(n,2n)$  на  ${}^9\text{Be}$  невелик и составляет 1,67 МэВ). Энергия связи нейтронов в ядрах с большой атомной массой ниже, чем для ядер со средней атомной массой, поэтому и выход нейтронов оказывается выше.

### **3.2.1.2. Генерация нейтронов в мишени и нейтронный баланс ЭЛЯУ**

Нейтронный выход (среднее число испускаемых из мишени нейтронов в расчете на одну бомбардирующую частицу) пропорционален величине кинетической энергии бомбардирующей частицы в момент первого неупругого столкновения с ядрами мишени. Поэтому максимальный нейтронный выход на единицу затраченной энергии достигается в том случае, когда минимальна доля начальной энергии частицы  $\delta$ , затрачиваемая на ионизацию среды до первого неупругого соударения с ядрами мишени:

$$\delta = \frac{1}{E_0} \int_0^{\lambda_{in}} \left( -\frac{dE}{dx} \right) \cdot dx ,$$

где  $E_0$  – начальная энергия частицы;  $-dE/dx$  – потеря энергии частицы на единицу пути;  $\lambda_{in}$  – средняя длина пробега до первого неупругого соударения с ядром вещества мишени.

График зависимости доли начальной энергии  $\delta$ , теряемой на ионизацию, от начальной энергии частицы приведен на рис. 3.2.

Из рис. 3.2 видно, что с увеличением энергии  $E_0$  величина  $\delta$  уменьшается и выходит на плато в области  $E_0 = 1,5\text{--}3$  ГэВ (для протонов и дейтронов). При дальнейшем увеличении  $E_0$  начнется логарифмический рост  $(-dE/dx)$  и будет увеличиваться доля энергии, уносимая электронно-фотонной компонентой каскада, которая в генерации нейтронов не участвует. Эти факторы являются важными при выборе энергии ускоряемых частиц.

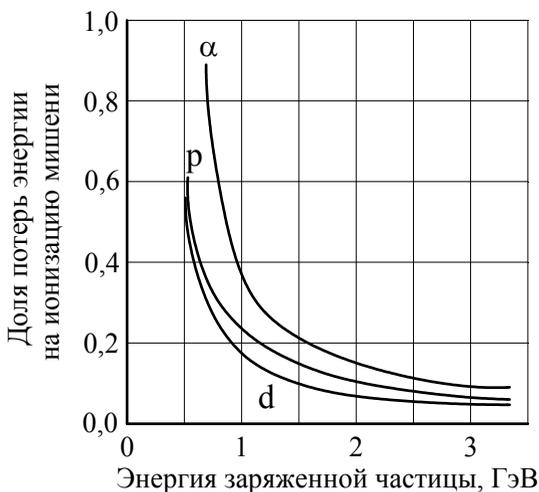


Рис. 3.2. Зависимость доли  $\delta$  кинетической энергии, теряемой ускоренной заряженной частицей на ионизацию мишени до первого неупругого столкновения, от начальной энергии  $E_0$  (в расчете на единицу заряда)

Величина выхода нейтронов в результате каскадного процесса зависит также от материала мишени и ее размеров. Так, например, на рис. 3.3 приведен график зависимости среднего числа нейтронов, рождающихся в расчете на один протон, от начальной энергии  $E_0$  для мишени из тяжелого вещества (Sn, Pb, U, Th) и для легкой мишени из бериллия.

Можно видеть, что наибольшим выходом нейтронов из неделящихся материалов характеризуется Pb. Выход нейтронов из Th и U заметно выше (за счет высокоэнергетического деления, а также деления надпороговыми нейтронами). Эти данные о выходах нейтронов получены экспериментальным путем, однако их следует расценивать как несколько заниженные, так как размеры использованных мишеней были меньше той области, где развивается каскадный процесс и завершается размножение нейтронов через  $(n, xn)$ -реакции. Поэтому увеличивая размеры мишени, можно обеспечить условия практически полного протекания этих реакций.

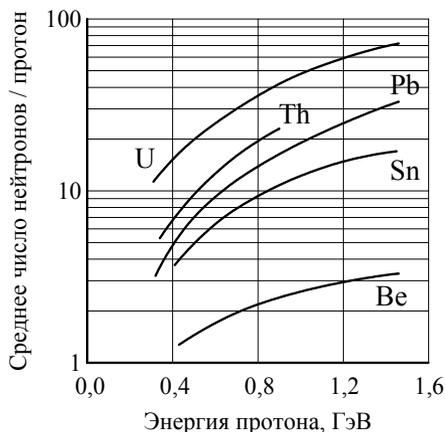


Рис. 3.3. Нейтронные выходы из цилиндрических мишеней диаметром 10 см и длиной 60 см (длина Th-мишени – 30 см, длина Be-мишени – 90 см) в зависимости от начальной энергии протона  $E_0$

На рис. 3.4 для цилиндрической Pb-мишени, бесконечной по высоте, показана зависимость выхода жесткой нейтронной компоненты, а также величина полной утечки нейтронов от радиуса мишени.

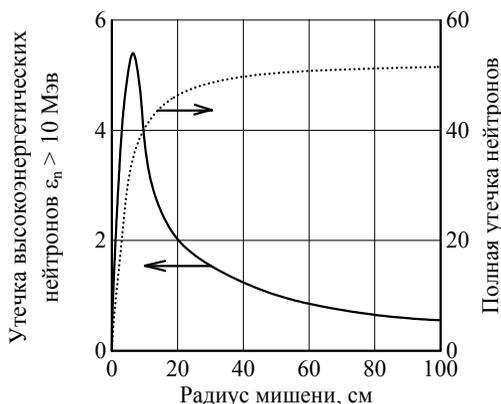


Рис. 3.4. Утечка нейтронов с поверхности бесконечной по высоте цилиндрической Pb-мишени в зависимости от ее радиуса (в расчете на один протон с энергией  $E_p = 1,6$  ГэВ)

Видно, что выход подпороговых нейтронов достигает насыщения при радиусе 40–50 см и составляет около 45–50 нейтронов на протон.

Если вокруг такой мишени разместить бланкет с долгоживущими радионуклидами, то расход нейтронов на трансмутацию  $S_{sp}^{тр}$  может быть определен следующим образом:

$$S_{sp}^{тр} = S_{sp} - \Delta_c^{тн,км,зам} - L - \Delta_{тр},$$

где  $S_{sp}$  – скорость генерации нейтронов в мишени;  $\Delta_c^{тн,км,зам}$  – скорость захвата нейтронов в теплоносителе, конструкционных материалах и замедлителе;  $L$  – утечка нейтронов из системы;  $\Delta_{тр}$  – скорость захвата нейтронов при трансмутации долгоживущих радионуклидов, которые возникают в связи с функционированием самой ЭЛЯУ (радионуклиды – продукты взаимодействия пучка ускоренных заряженных частиц с веществом мишени, радионуклиды – продукты деления, энергия которых используется для питания ускорителя).

Скорость генерации нейтронов в результате каскадного процесса в мишени, бомбардируемой пучком ускоренных частиц (для определенности пусть это будут протоны), следующим образом связана с током пучка ускорителя  $I_p$ :

$$S_{sp} = C_n \cdot I_p,$$

где  $C_n$  – выход нейтронов из мишени в расчете на один бомбардирующий протон.

Скорость захвата нейтронов в бланкете определяется как

$$\Delta_c = (\sigma_c \cdot \Phi) \cdot G.$$

Так же определяется и скорость трансмутации радионуклидов через (n,γ)-канал.

### 3.2.1.3. Затраты энергии на генерацию нейтронов в мишени ЭЛЯУ

Поскольку использование электроядерного метода для генерации нейтронов рассматривается для нужд ядерной энергетической системы, будем исходить из того, что питание ускорителя осуществляется от атомного источника энергии. Это может быть либо энергия отдельной АЭС, либо энергия деления, вырабатываемая в подкритическом бланкете рассматриваемой ЭЛЯУ. Удобно при этом относить выход нейтронов из мишени на энергию одного деления, используемую для питания ускорителя, независимо от того, где это деление произошло. Тогда в расчете на это деление количество нейтронов, генерируемых в мишени ЭЛЯУ, бомбардируемой ускоренными протонами, можно оценить по следующей формуле:

$$S_{sp} = C_n \cdot i_p = C_n \cdot \eta_{ac} \cdot \eta_{th} \cdot \frac{E_f}{E_p},$$

где  $i_p$  – удельная величина тока пучка ускорителя в расчете на энергию одного деления, используемую для его питания;  $\eta_{ac}$  – КПД ускорителя, т.е. эффективность преобразования подводимой к ускорителю электроэнергии в энергию пучка заряженных частиц;  $\eta_{th}$  – КПД преобразования энергии деления в электрическую энергию;  $E_f$  – энергия деления (200 МэВ);  $E_p$  – энергия ускоренного протона.

Если принять, что  $C_n = 50$  (свинцовая мишень),  $\eta_{ac} = 50\%$ ,  $\eta_{th} = 30\%$ ,  $E_p = 1,6$  ГэВ, то получим, что  $S_{sp} = 0,9$  нейтр./дел.

В дальнейшем будем предполагать, что за счет безвозвратной утечки нейтронов и паразитного поглощения в конструкционных материалах, теплоносителе и замедлителе теряется около 10% генерируемых нейтронов. Что касается расхода нейтронов на обезвреживание радионуклидов – продуктов каскадного процесса в мишени, то этот вопрос в настоящее время только начинает изучаться, и поэтому в наших оценках эта статья расхода нейтронов не учитывается. Таким образом, будем предполагать, что количество

нейтронов, генерируемых в ЭЛЯУ для нужд трансмутации, составляет  $S_{sp}^{TP} = 0,8$  нейтр./дел. Это – дополнительные нейтроны по отношению к нейтронному балансу ядерной энергетической системы, которые могут использоваться для трансмутации долгоживущих РАО энергетических реакторов. Для того чтобы оценить вклад дополнительных нейтронов, необходимо учесть, что не все из них могут использоваться для трансмутации долгоживущих радионуклидов от коммерческих реакторов, так как при их получении использовалась энергия деления (для питания ускорителя) с сопутствующим появлением радионуклидов-продуктов деления. Если на трансмутацию долгоживущих радионуклидов – продуктов деления требуется  $\eta_{tr}$  нейтронов в расчете на одно деление, то количество делений в системе, используемых для коммерческих целей, может быть найдено из баланса между генерацией и расходом нейтронов:

$$\eta_{tr} \cdot N_f^{KOM} = (S_{sp}^{TP} - \eta_{tr}) \cdot N_f^{ЭЛЯУ} ,$$

где  $N_f^{KOM}$  – количество делений для коммерческих целей;  $N_f^{ЭЛЯУ}$  – количество делений для питания ускорителя.

Соотношение числа делений  $N_f^{ЭЛЯУ} / N_f^{KOM}$  (т.е. соотношение мощностей в ядерной системе) в зависимости от требуемого расхода нейтронов на трансмутацию от одного деления приведено в табл. 3.2.

Таблица 3.2

**Соотношение числа делений для поддержки ЭЛЯУ и для коммерческих целей**

$\eta_{tr}$	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5
$N_f^{ЭЛЯУ} / N_f^{KOM}$	0,14	0,33	0,6	1,0	1,7

Из этой таблицы можно сделать важный вывод – при расходе нейтронов на трансмутацию долгоживущих радионуклидов  $\eta_{tr} = 0,2-0,5$  оказывается, что существенная доля делений в ядерной

системе, а значит, и существенная часть производимой энергии будет расходоваться не на коммерческие цели, а на обеспечение процесса обезвреживания долгоживущих РАО. Такое перераспределение в расходе энергии, вырабатываемой ядерной системой, не может не отразиться существенным образом на экономической эффективности ядерной энерготехнологии. В рассматриваемом балансе нейтронов для обеспечения трансмутационного процесса необходимо обеспечить достаточно высокую плотность потока нейтронов, чтобы трансмутация была эффективной.

#### *3.2.1.4. ЭЛЯУ со слабоподкритическим бланкетом*

В настоящее время основное внимание исследователей обращено на ЭЛЯУ со слабоподкритическим бланкетом, окружающим мишень. В бланкете таких ЭЛЯУ предполагается помещать МА и, возможно, некоторое количество плутония для сжигания в концентрированном виде в более безопасных условиях ( $K_{эф} < 1$ ), чем это можно осуществлять в ядерных реакторах. В этой связи отметим два обстоятельства.

Во-первых, использование слабоподкритического бланкета с хорошим размножением нейтронов позволяет снизить ток пучка ускорителя, т.е. ослабить требования к ускорительной части ЭЛЯУ.

Во-вторых, при сжигании МА будут высвобождаться нейтроны, которые, вообще говоря, можно использовать на цели трансмутации долгоживущих продуктов деления. Для этого вокруг слабоподкритического бланкета планируется размещать сборки с трансмутируемыми радионуклидами и замедляющий нейтроны материал для формирования предпочтительного спектра нейтронов и повышения сечения трансмутации.

Однако трудности создания нейтронного потока повышенной интенсивности для обеспечения эффективной трансмутации в ЭЛЯУ со слабоподкритическим бланкетом будут того же порядка, что и в критических реакторах.

В то же время использование бланкетов ЭЛЯУ, не содержащих делящихся материалов или с небольшим их содержанием, открывает принципиальную возможность формирования высокой плотности потока нейтронов, хотя и требует применения сильноточных ускорителей.

### 3.2.2. Управляемый термоядерный синтез как источник нейтронов для трансмутации

Управляемый термоядерный синтез (УТС) тяжелых изотопов водорода традиционно рассматривается как источник энергии с практически неисчерпаемой топливной базой. Исследования в области УТС, проводимые уже почти полвека, в настоящее время находятся на том рубеже, когда приближается момент получения интенсивной управляемой термоядерной реакции. Важная роль в этом принадлежит международному реактору-токамаку ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor), рабочий проект которого был завершён в 1998 году. Однако вследствие чрезмерно высокой стоимости сооружения он был пересмотрен (1999 – 2001 гг.) и термоядерная мощность была уменьшена втрое (до 500 МВт). В 2005 году в соответствии с этим вариантом проекта было принято решение построить ITER в Кадараше (Франция).

На этой установке планируется продемонстрировать зажигание плазмы и получение термоядерной реакции в (dt)-смеси изотопов водорода с положительным энергетическим выходом. Причем эта реакция синтеза протекает в соответствии с уравнением



т.е. сопровождается появлением быстрого нейтрона, уносящего в бланкет около 80% выделяющейся энергии. Предполагается, что в реакторе-токамаке ITER будут достигнуты параметры плазмы, обеспечивающие ее устойчивое горение с положительным балансом по энергии. Однако для восполнения трития, выгорающего в плазме, требуется расходовать нейтроны на его наработку в бланкете, содержащем литий.

Наряду с (dt)-реакцией в перспективе рассматривается также и (dd)-реакция синтеза, которая протекает по двум каналам с приблизительно одинаковой вероятностью:



### 3.2.2.1. (dt)-синтез: оценка генерации нейтронов для трансмутации

Осуществление термоядерной (dt)-реакции предполагает, что восполнение сгорающего дейтерия ( ${}^2_1\text{d}$ ) не составляет проблемы, т.к. его запасы на нашей планете практически неисчерпаемы (0,014% в природной воде), а для воспроизводства радиоактивного трития -  ${}^3_1\text{t}$  ( $T_{1/2} = 12,3$  года) предполагается использовать главным образом реакцию



(сечение этой реакции составляет 940 барн при  $E_n = 0,025$  эВ).

Поскольку в (dt)-реакции появляется один нейтрон, а на восполнение сгорающего трития требуется тоже один нейтрон (на самом деле, несколько больше чем один, если учитывать потери трития вblankете вследствие его распада и при выделении), то, учитывая неизбежные потери нейтронов вblankете за счет паразитного поглощения и утечки, для самообеспечения необходимо предусмотреть дополнительное размножение получаемых термоядерных нейтронов. Энергия термоядерных нейтронов достаточно высока (14,1 МэВ), что выше порога (n,2n)-реакции. Поэтому такие нейтроны могут быть эффективно размножены. Для этого рассматривается использование Pb, Be и других материалов, способных размножать нейтроны. В табл. 3.3 приведен выход нейтронов  $S_{dt}$  с учетом их размножения в различных материалах в расчете на один первичный термоядерный нейтрон.

Таблица 3.3

**Выход нейтронов за счет (n,2n)-реакции в различных материалах в расчете на один первичный термоядерный нейтрон ( $E_n = 14,1$  МэВ)**

Материал размножителя	Pb	Mo	Sn	Be	V	Ti	Fe
$S_{dt}$ -выход нейтронов на один термоядерный нейтрон	1,84	1,84	1,79	1,78	1,57	1,38	1,29

Из этого числа нейтронов необходимо как минимум один нейтрон израсходовать на воспроизводство сгорающего трития. Принято считать, что с учетом потерь и радиоактивного распада требуется воспроизводить 1,06 ядра трития в расчете на одну (dt)-реакцию. Тогда величина выхода нейтронов с учетом размножения и за вычетом 1,06 нейтрона на воспроизводство трития может служить верхней оценкой потенциала (dt)-реакции по генерации нейтронов для трансмутации.

В реальности, конечно, необходимо будет учитывать потери нейтронов вblankете и утечку из него. Строго говоря, необходимо также учитывать, что некоторое количество нейтронов придется расходовать на трансмутацию долгоживущих радионуклидов, которые появятся в результате активации материала blankета. Соответствующим подбором материалов этот расход нейтронов может быть сделан относительно небольшим и в нашем рассмотрении учитываться не будет.

Принципиальная схема blankета ТЯУ для трансмутации долгоживущих радионуклидов приведена на рис. 3.5.

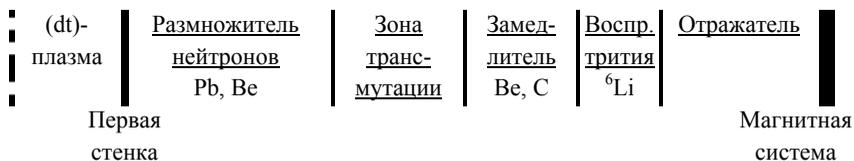


Рис. 3.5. Принципиальная схема blankета ТЯУ на основе (dt)-реакции синтеза для трансмутации долгоживущих радионуклидов

На этом рисунке видно, что первая стенка – это стенка камеры, внутри которой осуществляется термоядерная реакция. За первой стенкой располагается размножитель термоядерных нейтронов, которые используются в следующей зоне для трансмутации загруженных долгоживущих радионуклидов. Эта зона может содержать также и замедлитель для формирования смягченного спектра нейтронов, во многих случаях предпочтительного с точки зрения повышения эффективности трансмутации. Далее располагаются зоны,

где обеспечивается дальнейшее замедление нейтронов и воспроизводство трития. Снаружи располагается магнитная система, обеспечивающая удержание плазмы.

Толщина зоны размножителя выбирается таким образом, чтобы существенная часть термоядерных нейтронов провзаимодействовала с ядрами размножителя. Иными словами, чтобы утечка термоядерных нейтронов за зоной размножителя была небольшой, а полная утечка нейтронов из размножителя достигла насыщения (рис. 3.6).

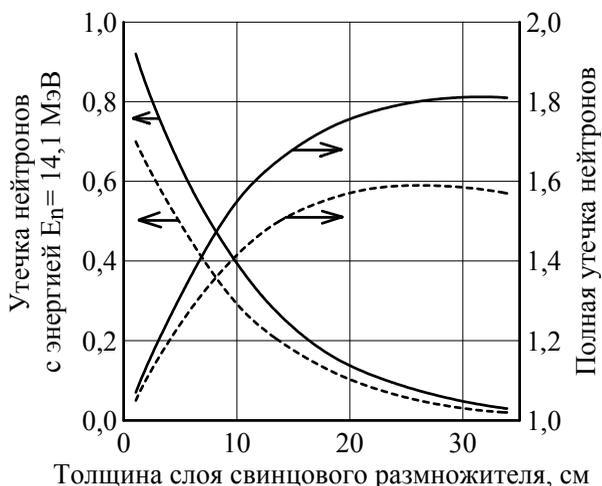


Рис. 3.6. Зависимость утечки термоядерных нейтронов и полной утечки нейтронов (в расчете на один нейтрон источника) от толщины слоя свинцового размножителя:

- — при отсутствии первой стенки;
- - - - - — первая стенка — Fe (толщина 2 см)

Видно, что при использовании свинцового размножителя толщиной 25–30 см более 90% термоядерных нейтронов провзаимодействовали с материалом размножителя, и полная утечка с его правой границы достигла насыщения. Здесь также показано, что учет первой стенки (Fe, толщина 2 см), расположенной перед размножителем, заметно ослабляет эффект размножения. Необходимо также учитывать паразитное поглощение нейтронов в конструкционных материалах, в замедлителе, теплоносителе и потери за счет

утечки. Поэтому величину генерации нейтронов на нужды трансмутации  $S_{dt}^{TP}$  в blankets термоядерной установки можно определить следующим образом (в расчете на одну (dt)-реакцию):

$$S_{dt}^{TP} = S_{dt} - \Delta_c^{ТН,КМ,зам} - L - \Delta_{\text{тритий}},$$

где  $\Delta_c^{ТН,КМ,зам}$  – паразитное поглощение в теплоносителе, конструкционных материалах и замедлителе;  $L$  – потери нейтронов на утечку из системы;  $\Delta_{\text{тритий}}$  – расход нейтронов на воспроизводство трития ( $\sim 1,06$ ).

Оценки показывают, что для термоядерной установки типа ITER при толщине первой стенки 2 см (нержавеющая сталь) и использовании свинца (толщина 25 см) в качестве размножителя число размноженных нейтронов (на одну (dt)-реакцию) составит 1,50. Примем, что паразитное поглощение в теплоносителе, конструкционных материалах и замедлителе составляет 0,15. Тогда с учетом расхода нейтронов на воспроизводство трития  $\Delta_{\text{тритий}} = 1,06$ , на нужды трансмутации может быть использовано  $S_{dt}^{TP} \approx 0,3$  нейтрона на одну (dt)-реакцию. Полная энергия (около 22 МэВ), которая выделяется в blankets, складывается из энергии, образующейся в результате (dt)-реакции синтеза, расхода энергии на эндотермическую (n,2n)-реакцию размножения нейтронов и энергии, связанной с захватом нейтронов в blankets.

Оценим, сколько нужно осуществлять (dt)-реакций по отношению к числу делений в ядерных реакторах для того, чтобы трансмутировать появляющиеся долгоживущие продукты деления. Это можно определить из балансного соотношения между генерацией нейтронов и их расходом на трансмутацию:

$$S_{dt}^{TP} \cdot N_{dt} = \eta_{\text{тр}} \cdot N_f^{\text{КОМ}},$$

где  $N_{dt}$  – число (dt)-реакций;  $N_f^{\text{КОМ}}$  – число делений, энергия которых используется для коммерческих целей;  $\eta_{\text{тр}}$  – расход нейтронов на трансмутацию долгоживущих радионуклидов, появляющихся при одном делении в ядерном реакторе.

Соотношение между термоядерной энергией и энергией деления может быть оценено, если известно соотношение между числом реакций синтеза и числом реакций деления

$$\frac{W_{dt}}{W_f^{KOM}} = \frac{E_{dt} \cdot N_{dt}}{E_f \cdot N_f^{KOM}} = \frac{E_{dt}}{E_f} \cdot \frac{\eta_{TP}}{S_{dt}^{TP}} = \frac{E_{dt}}{E_f} \cdot \frac{\eta_{TP}}{0,3}$$

В табл. 3.4 приведены эти соотношения при различном расходе нейтронов на трансмутацию долгоживущих продуктов деления.

Таблица 3.4

**Соотношение между числом реакций синтеза и числом реакций деления, а также между термоядерной энергией и энергией деления в зависимости от расхода нейтронов на трансмутацию**

$\eta_{TP}$	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6
$N_{dt} / N_f^{KOM}$	0,33	0,66	0,99	1,32	1,65	3,30
$W_{dt} / W_f^{KOM}, \%$	3,6	7,2	10,8	14,4	18,0	36,0

Можно видеть, что доля термоядерных мощностей, которые необходимо ввести в ядерную энергосистему, оказывается относительно невелика. Если, например, на трансмутацию долгоживущих продуктов от одного деления потребуется  $\eta_{TP} = 0,5$  нейтр./дел., то доля термоядерных мощностей составит около 15% мощности всей системы. Если же для этой цели использовать ЭЛЯУ, то доля мощностей, связанная с ЭЛЯУ (обеспечение энергией ускорителей), составит более 60% (см. табл. 3.2).

### ***3.2.2.2. О трансмутации радионуклидов – продуктов деления термоядерными нейтронами с использованием (n,2n)-реакции***

Энергия термоядерных нейтронов, рождающихся в (dt)-реакции синтеза  $E_n = 14,1$  МэВ, что заметно выше порога (n,2n)-реакций на

ядрах продуктов деления (8–10 МэВ). Поэтому, в принципе, они могут использоваться для трансмутации по этому каналу. Такая трансмутация привлекательна тем, что она происходит без расхода нейтронов, а наоборот, с их размножением. Однако для того чтобы трансмутация была эффективной, необходима достаточно высокая плотность потока термоядерных нейтронов. Как уже рассматривалось выше, нужно, чтобы время жизни трансмутируемого нуклида в нейтронном поле составляло, по крайней мере, несколько десятилетий, не более. Оценим требуемую для этого плотность потока термоядерных нейтронов. Предположим, что сечение  $(n,2n)$ -реакции для трансмутируемого нуклида составляет  $\sim 1$  барн, и потребуем, чтобы среднее время жизни долгоживущего радионуклида в нейтронном поле было  $\sim 50$  лет. Тогда плотность потока нейтронов, найденная из соотношения

$$l \cong \frac{1}{\sigma \cdot \Phi},$$

составит  $\Phi \cong 6,4 \cdot 10^{14}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ . Такая плотность потока термоядерных нейтронов будет соответствовать нейтронной нагрузке на первую стенку термоядерного реактора  $\sim 14,5$  МВт/ $\text{м}^2$ . В настоящее время в качестве приемлемой по стойкости материала первой стенки рассматривается нейтронная нагрузка  $\sim 1$  МВт/ $\text{м}^2$ , а в качестве перспективной  $\sim 2,5$  МВт/ $\text{м}^2$  (ITER, проект 1998 года). Поэтому если даже ориентироваться на величину перспективной нагрузки, то и тогда среднее время жизни долгоживущего радионуклида, трансмутируемого в нейтронном поле по  $(n,2n)$ -каналу, составит около 300 лет, т.е. слишком длительное время. Это позволяет заключить, что на настоящем уровне развития термоядерной технологии трансмутация по  $(n,2n)$ -каналу вряд ли может расцениваться как эффективная.

Что же касается трансмутации долгоживущих нуклидов – продуктов деления по  $(n,\gamma)$ -каналу, то исследования показывают, что вblankете ТЯУ можно создать условия для быстрой трансмутации.

В табл. 3.5 в качестве примера приведены средние времена жизни некоторых продуктов деления в нейтронном поле в области бланкета, прилегающей к плазменной камере при нейтронной нагрузке 1 МВт/м<sup>2</sup>.

Таблица 3.5

**Среднее время жизни долгоживущих радионуклидов в нейтронном поле бланкета, заполненного замедлителем (радионуклид помещен в 10-см область, прилегающую к плазменной камере)**

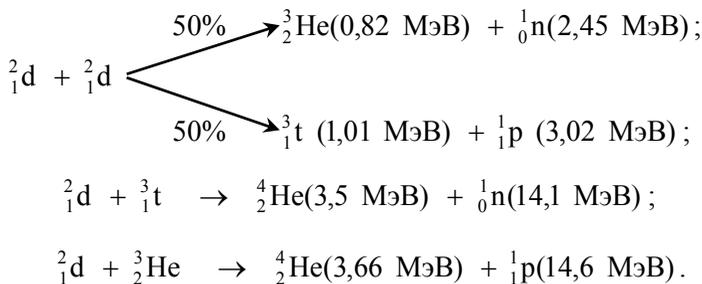
Материал бланкета	$l_i$ - среднее время жизни радионуклида в нейтронном поле, год			
	<sup>99</sup> Tc	<sup>129</sup> I	<sup>135</sup> Cs	<sup>93</sup> Zr
Бериллий	0,86	0,72	1,7	6,4
Графит	2,60	2,30	5,7	19,0

Из приведенных данных о  $l_i$  можно заключить, что в использованной идеализированной модели бланкета средние времена жизни радионуклидов являются весьма короткими. Значит, при учете реальной конструкции и при перенесении зоны трансмутации в среднюю часть бланкета есть основания надеяться, что время жизни долгоживущих радионуклидов останется в пределах нескольких десятилетий.

**3.2.2.3. (dd)-синтез: оценка генерации нейтронов для трансмутации**

Как уже указывалось, разработка технологии термоядерного синтеза на основе (dt)-реакции находится на этапе, когда с сооружением международного термоядерного реактора ITER будет получено зажигание плазмы и устойчивое ее горение с положительным балансом по энергии.

Для зажигания плазмы на основе (dd)-реакции требуются более высокие параметры, которые на современном этапе пока не могут быть реализованы в стационарном режиме. При горении (dd)-плазмы происходят следующие термоядерные реакции:

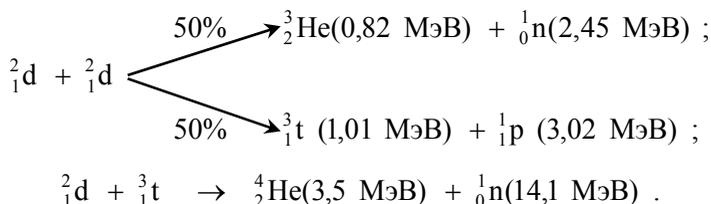


Если (dd)-плазму очищать только от «золы» ( ${}^4_2\text{He}$  и легкий водород – протий), то будут реализовываться все реакции синтеза и тогда его называют полностью катализированным (dd)-синтезом. Если в процессе очистки плазмы отделять  ${}^3_2\text{He}$  и «золу», то будут реализовываться первые две реакции, и тогда его называют частично катализированным (dd)-синтезом. В настоящем рассмотрении важным является обеспечение производства нейтронов. Поэтому необходимо создать условия для протекания реакций, в которых происходит генерация нейтронов. В то же время последняя реакция (d,  ${}^3\text{He}$ ) является «безнейтронной», и поэтому ее целесообразно исключить.

Что же касается сжигания  ${}^3_2\text{He}$ , то «безнейтронный» синтез на основе (d ${}^3\text{He}$ )-реакции можно будет реализовать в отдельных установках, и он рассматривается как весьма перспективный во всей проблеме УТС. Дело в том, что синтез на основе (d ${}^3\text{He}$ )-реакции будет сопровождаться малой активацией оборудования термоядерной установки, и в этом заключается его привлекательность и принципиальное отличие от (dt)- и (dd)-синтеза. Хотя собственно (d ${}^3\text{He}$ )-реакция и является безнейтронной, однако в (d ${}^3\text{He}$ )-плазме будет протекать также и (dd)-реакция с выходом нейтронов. Тем не менее выход нейтронной компоненты, пропорциональный квадрату концентрации дейтерия, может быть сделан достаточно малым.

### 3.2.2.4. Оценка генерации нейтронов в частично катализированном (dd)-синтезе

Как уже отмечалось, в частично катализированном (dd)-синтезе протекают следующие термоядерные реакции:



В расчете на одну (dd)-реакцию в среднем будет генерироваться 0,5 нейтрона с  $E_n = 2,45$  МэВ и 0,5 нейтрона с  $E_n = 14,1$  МэВ за счет сгорания образующегося трития. Жесткая компонента этого нейтронного источника может быть размножена при размещении свинца или бериллия за первой стенкой. Как было отмечено в разделе 3.2.2.1, посвященном (dt)-синтезу, коэффициент размножения может составить 1,50. Учитывая, что мягкая компонента нейтронного источника носит «подпороговый» характер ( $E_n = 2,45$  МэВ) и при прохождении первой стенки и размножителя несколько ослабится (примерно на 10%), то выход нейтронов в расчете на одну частично катализированную (dd)-реакцию (с учетом генерации нейтронов в сопровождающей (dt)-реакции) составит

$$S_{dd} = 0,5 \cdot 1,5 + 0,5 \cdot 0,9 = 1,20 .$$

Хотя это меньше, чем выход нейтронов в (dt)-реакции с учетом размножения, однако здесь нет необходимости тратить нейтроны на воспроизводство трития. Поэтому если принять, что паразитное поглощение в теплоносителе, конструкционных материалах и замедлителе составляет 0,25, то на нужды трансмутации может быть использовано  $S_{dd}^{\text{TP}} = 0,95$  нейтрона в расчете на одну частично катализированную (dd)-реакцию. Эта величина в три раза больше, чем соответствующая генерация нейтронов для трансмутации с помощью (dt)-реакции синтеза.

### ***3.2.2.5. Использование термоядерного синтеза с уменьшенной долей трития в плазме ((ddt)-синтез)***

Известно, что (dd)- и ( $d^3\text{He}$ )-синтез рассматриваются как следующий этап после освоения (dt)-синтеза, так как зажигание (dd)- и ( $d^3\text{He}$ )-плазмы требует поддержания значительно более высоких параметров плазмы и магнитного поля. Поэтому можно полагать, что после зажигания (dt)-плазмы потребуется определенное время для развития технологии, обеспечивающей повышение параметров плазмы. Однако (dd)-синтез в качестве источника нейтронов для целей трансмутации правильнее было бы рассматривать только как «предельный» вариант. Действительно, путь от (dt)-синтеза (с равнокомпонентной плазмой) к (dd)-синтезу лежит через зажигание плазмы с уменьшенным содержанием трития (будем обозначать этот вариант как (ddt)-синтез). Температура зажигания и другие параметры плазмы в этом случае будут более умеренными, чем для (dd)-синтеза. Конечно, при этом будет требоваться определенная подпитка тритием (с коэффициентом воспроизводства по тритию меньшим единицы), а значит, и соответствующий расход нейтронов для его воспроизводства. Такое воспроизводство трития естественным образом может осуществляться, если в blankets использовать нейтроны, утекающие из зоны трансмутации в области blankets с низкой плотностью потока нейтронов. Это неизбежно будет иметь место, т.к. трансмутируемые нуклиды, как правило, характеризуются относительно небольшими сечениями поглощения нейтронов.

### ***3.2.2.6. Оценка энергетического баланса при использовании (ddt)-синтеза для нужд трансмутации***

Выше уже отмечалось, что для получения экзотермической (ddt)-реакции синтеза необходимо повысить параметры плазмы по сравнению с параметрами равнокомпонентной (dt)-плазмы. В ближайшем будущем вряд ли можно надеяться на осуществление та-

кого процесса. Однако следует заметить, что для получения источника нейтронов достижение условий зажигания плазмы не является обязательным. Нейтроны можно генерировать и в режиме с подводом энергии извне на ее нагрев.

Для рассмотрения энергетического баланса предположим, что энергия для нагрева плазмы берется частично за счет энергии синтеза, выделяющейся в плазме, а частично от атомного источника.

Как это принято исследователями и разработчиками технологии термоядерного синтеза, мерой, характеризующей соотношение между энергией, получаемой в результате реакции синтеза, и затратами энергии на нагрев плазмы, является величина  $Q$ :

$$Q = P_{fus} / P_h \quad (3.1)$$

где  $P_{fus}$  – энергия, получаемая в результате реакции синтеза в плазме;  $P_h$  – энергия, расходуемая на нагрев плазмы.

Выразим величины этих энергий через число соответствующих ядерных реакций:

$$\begin{aligned} P_{fus} &= e_{fus} \cdot N_{ddt} , \\ P_h &= \eta_{th} \cdot [e_{fus} \cdot N_{ddt} + e_f \cdot N_f^{ytc}] \cdot \eta_h , \end{aligned} \quad (3.2)$$

где  $N_{ddt}$  – число реакций синтеза;  $N_f^{ytc}$  – число реакций деления в реакторах, которые производят энергию для нагрева плазмы;  $\eta_{th}$  – КПД преобразования тепловой энергии в электрическую;  $\eta_h$  – эффективность использования подводимой энергии для нагрева плазмы.

Используя уравнение (3.1) и выражение (3.2), получим зависимость отношения поддерживающих делений  $N_f^{ytc}$  к числу реакций синтеза как функцию  $Q$ :

$$\frac{N_f^{ytc}}{N_{ddt}} = \frac{e_{fus}}{e_f} \cdot \left[ \frac{1}{Q \cdot \eta_{th} \cdot \eta_h} - 1 \right].$$

Режим самоподдерживающейся реакции синтеза будет достигаться при  $N_f^{ytc} / N_{ddt} = 0$ , т.е. если

$$Q = \frac{1}{\eta_{th} \cdot \eta_h}.$$

При  $\eta_{th} = 0,3$  и  $\eta_h = 0,8$  это соответствует  $Q \geq 4,15$ . Для сравнения заметим, что в термоядерном реакторе ITER с (dt)-плазмой будет достигнуто  $Q = 15$  (ITER, проект 1998 года).

Если в ядерной системе будет присутствовать нейтронный источник на основе (ddt)-синтеза, то энергия, связанная с функционированием этого источника, может быть определена в соответствии с выражением

$$W_{ddt} \equiv \eta_{th} \cdot [e_{fus} \cdot N_{ddt} + e_f \cdot N_f^{ytc}], \quad (3.3)$$

а коммерческая энергия, вырабатываемая системой, по формуле

$$W_f^{KOM} \equiv \eta_{th} \cdot e_f \cdot N_f^{KOM}.$$

Тогда соотношение между ними (т.е. структура энергии, вырабатываемая системой) будет иметь вид

$$\frac{W_{ddt}}{W_f^{KOM}} = \frac{e_{fus}}{e_f} \cdot \frac{1}{\eta_{th} \cdot \eta_h} \bigg/ \frac{N_f^{KOM}}{N_{ddt}}.$$

Соотношение между числом делений в системе для коммерческих целей и числом реакций синтеза для генерации нейтронов

можно получить из баланса между количеством нейтронов, генерируемых для трансмутации, и потребностью в нейтронах на обезвреживание долгоживущих продуктов деления. Запишем этот баланс в следующем виде:

$$\eta_{\text{тр}} \cdot N_f^{\text{КОМ}} + \eta_{\text{тр}} \cdot N_f^{\text{УТС}} = N_{\text{ддт}} \cdot S_{\text{ддт}}^{\text{ТР}}. \quad (3.4)$$

Здесь слева записано количество нейтронов, необходимое для обезвреживания радионуклидов от делений на коммерческие цели и от делений, поддерживающих (ddt)-реакцию. Справа – генерация нейтронов при (ddt)-синтезе для целей трансмутации, т.е. с учетом воспроизводства трития ( $\Delta_{\text{тритий}} < 1$ ), паразитного поглощения и безвозвратной утечки нейтронов.

Решив уравнение (3.4) относительно  $N_f^{\text{КОМ}}/N_{\text{ддт}}$  и, используя соотношение (3.3), запишем выражение для структуры энергии, вырабатываемой ядерной системой, с учетом обеспечения процесса трансмутации:

$$\frac{W_{\text{ддт}}}{W_f^{\text{КОМ}}} = \frac{e_{\text{fus}}}{e_f} \cdot \eta_{\text{тр}} \cdot \frac{1}{Q \cdot \eta_{\text{th}} \cdot \eta_h} \left/ \left\{ S_{\text{ддт}}^{\text{ТР}} - \eta_{\text{тр}} \cdot \frac{e_{\text{fus}}}{e_f} \cdot \left[ \frac{1}{Q \cdot \eta_{\text{th}} \cdot \eta_h} - 1 \right] \right\} \right.$$

Для получения численной оценки будем предполагать, что средняя энергия (ddt)-реакции синтеза с учетом эндотермической (n,2n)-реакции при размножении нейтронов в бланкете составляет 21 МэВ. В табл. 3.6 для иллюстрации приведено отношение  $W_{\text{ддт}}/W_f^{\text{КОМ}}$  для «предельного» случая, когда термоядерный источник нейтронов основывается на частично катализированном (dd)-синтезе, т.е. при горении (ddt)-плазмы, где сжигаемый тритий образуется только в результате реакций внутри плазмы и при отсутствии его воспроизводства в бланкете.

**Соотношение между энергией, связанной с термоядерным источником нейтронов, и энергией на коммерческие цели**

$Q$	$W_{ddt}/W_f^{KOM}, \%$		
	$\eta_{тр} = 0,25$	$\eta_{тр} = 0,5$	$\eta_{тр} = 1,0$
1,0	11	25	61
4,15	2,5	5	10

Из таблицы видно, что структура вырабатываемой энергии чувствительна к величине  $Q$  и при  $Q = 1$  она существенно хуже, чем для  $Q = 4,15$ . Оценки показывают, что использование частично катализированного (dd)-синтеза с  $Q = 4,15$  (что соответствует самообеспечению энергией процесса синтеза) позволит примерно в 3 раза снизить долю энергии, связанную с термоядерным источником нейтронов по сравнению с (dt)-синтезом. Если же на трансмутацию потребуется  $\eta_{тр} = 1,0$  нейтр./дел., то доля термоядерной энергии в системе составит 10%. Иными словами, даже в этом случае ядерная энергосистема будет базироваться, в основном, на реакции деления.

**3.2.2.7. О возможности повышения скорости трансмутации долгоживущих продуктов деления при использовании (ddt)-синтеза**

Как уже отмечалось, важным ограничением на плотность потока термоядерных нейтронов является ограничение, связанное с работоспособностью первой стенки под действием термоядерных нейтронов.

Для первого термоядерного реактора ITER (проект 1998 года) в качестве допустимой определена нейтронная нагрузка на первую стенку в  $1 \text{ МВт/м}^2$ , что соответствует току термоядерных нейтро-

нов  $4,4 \cdot 10^{13}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$  с энергией  $E_n = 14,1$  МэВ (заметим, что в проекте 2001 года, принятом к строительству, максимальная нейтронная нагрузка снижена до  $0,78$  МВт/ $\text{м}^2$ ).

Если использовать (ddt)-синтез, то в термоядерном источнике нейтронов наряду с жесткой компонентой с  $E_n = 14,1$  МэВ будут присутствовать нейтроны с  $E_n = 2,45$  МэВ, способность которых наносить повреждения структуре материала первой стенки заметно ниже, чем для жесткой компоненты. Это означает, что при реализации (ddt)-синтеза появится возможность иметь в blankets более высокую плотность потока нейтронов для трансмутации, чем для (dt)-синтеза при одинаковой повреждающей дозе в материале первой стенки. Это, в свою очередь, позволит сделать трансмутацию более быстрой.

Таким образом, разработка (ddt)-синтеза для нужд трансмутации позволит иметь меньшую долю термоядерных мощностей в ядерной системе, а также повысить скорость трансмутации долгоживущих радионуклидов – продуктов деления.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Ядерная энерготехнология, базирующаяся на реакции деления тяжелых ядер (актиноидов), практически не потребляет кислорода и не производит газообразных соединений углерода, азота, серы, порождающих парниковый эффект. В этом смысле ее можно считать экологически чистой. Однако она порождает долгоживущие радиоактивные нуклиды, требующие надежной изоляции от окружающей среды в течение сотен тысяч и миллионов лет.

Как показывают исследования, ядерно-физический потенциал этой энерготехнологии весьма высок и вполне обосновано ставить вопрос о разработке такой структуры топливного цикла ядерной энергетической системы, которая позволит с помощью нейтронной трансмутации обезвреживать наиболее опасные долгоживущие РАО.

Подводя итог рассмотрению путей обезвреживания долгоживущих РАО, можно сделать вывод, что нет принципиальных запретов на пути избавления ядерной энерготехнологии в будущем от могильников долгоживущих высокоактивных РАО.

Для достижения этой цели потребуются добиться определенного прогресса в электроядерной и термоядерной технологиях. При этом может быть обеспечена необходимая генерация дополнительных нейтронов, а разработка высокопоточных бланкетных систем позволит осуществлять трансмутацию достаточно быстро и эффективно. Необходимым компонентом в этом процессе, конечно, должна быть радиационно-химическая технология переработки трансмутируемых материалов.

В принципиальном плане разработка элементов такой технологии с использованием пилотных установок для демонстрации эффективной трансмутации долгоживущих радионуклидов продуктов деления позволила бы в практическом плане обосновать тезис о том, что широкое использование нынешним поколением людей ядерной энергетики, основанной на процессе деления тяжелых нуклидов, не будет создавать проблем с радиоактивными отходами для последующих поколений.

## П.1. НЕЙТРОННО-ФИЗИЧЕСКИЕ ОСОБЕННОСТИ ОБЕЗВРЕЖИВАНИЯ ДОЛГОЖИВУЩИХ РАДИОАКТИВНЫХ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ

### П.1.1. Трансмутация $^{99}\text{Tc}$

В составе продуктов деления в облученном топливе присутствует один изотоп технеция –  $^{99}\text{Tc}$  ( $T_{1/2} = 2,1 \cdot 10^5$  лет). Выход  $^{99}\text{Tc}$  при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами составляет 0,062 в расчете на одно деление. С учетом его горения в процессе кампании реактора содержание  $^{99}\text{Tc}$  в облученном топливе оказывается несколько меньшим и соответствует выходу 0,055 на одно деление.

Добавление или выбивание нейтрона из ядра  $^{99}\text{Tc}$  посредством  $(n,\gamma)$ -реакции или  $[(n,2n)+(\gamma,n)]$ -реакций приводит к цепочке превращений, представленной на рис. П.1.1.

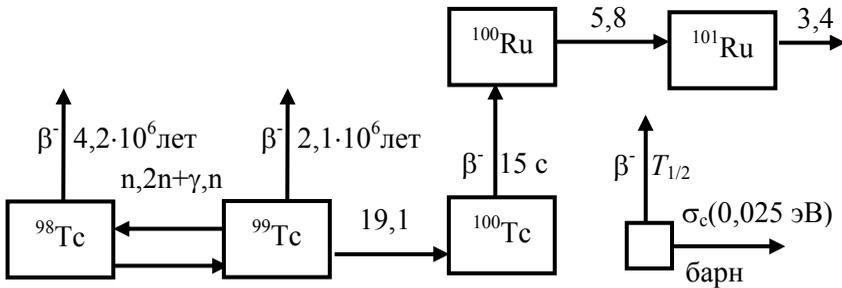


Рис. П.1.1. Цепочка нуклидных превращений при трансмутации  $^{99}\text{Tc}$  в нейтронном поле

Причем, выбивание нейтрона из ядра  $^{99}\text{Tc}$  приводит к образованию также долгоживущего изотопа  $^{98}\text{Tc}$  ( $T_{1/2} = 4,2 \cdot 10^6$  лет), т.е. является нежелательным процессом. Изотоп  $^{99}\text{Tc}$  характеризуется

достаточно большим сечением захвата нейтронов в области резонансных и тепловых энергий (рис. П.1.2).

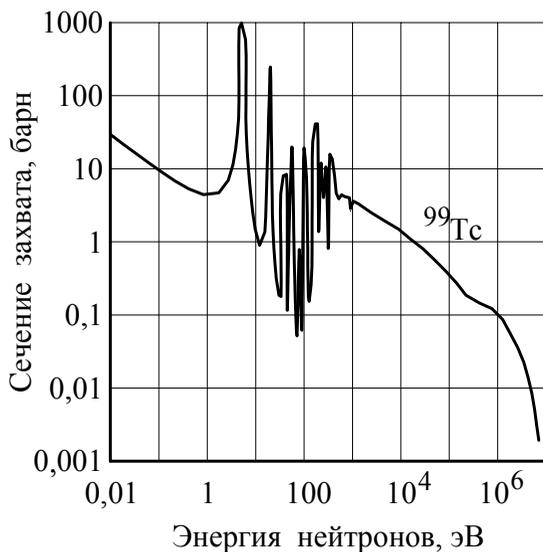


Рис. П.1.2. Сечение захвата нейтронов для  $^{99}\text{Tc}$  в зависимости от энергии нейтронов

Поэтому  $^{99}\text{Tc}$  может эффективно трансмутироваться как в спектре нейтронов легководного реактора, так и в смягченном спектре нейтронов в экране быстрого реактора. Так, например, в спектре нейтронов легководного реактора с плотностью потока  $\Phi = 10^{14}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$  среднее время жизни ядра  $^{99}\text{Tc}$  составляет около 50 лет, т.е. и для накопления равновесной загрузки потребуется 50 лет работы реактора. Тогда с началом трансмутации производство энергии уже не будет сопровождаться накоплением долгоживущего опасного радионуклида  $^{99}\text{Tc}$ .

Технеций в металлической форме можно помещать в отдельные сборки, в которые для смягчения спектра нейтронов, если это требуется, также вводится замедлитель, например гидрид циркония  $\text{ZrH}_{1,7}$ .

В той же мере достаточно эффективно можно будет осуществлять трансмутацию  $^{99}\text{Tc}$  в смягченном спектре нейтронов blankets ЭЛЯУ, а также в blankets термоядерной установки.

Как можно видеть из цепочки нуклидных превращений, для трансмутации одного ядра  $^{99}\text{Tc}$  требуется одна реакция захвата нейтрона, приводящая к образованию  $^{100}\text{Ru}$ , который может быть отделен при регенерации облученного материала. Это значит, что расход нейтронов на трансмутацию  $^{99}\text{Tc}$  составит 0,055 нейтр./дел. (минимальная оценка). Быстрые реакторы, как известно, характеризуются величиной генерации избыточных нейтронов, расходуемых на расширенное воспроизводство топлива, порядка 0,2-0,5 нейтрона в расчете на одно деление в реакторе. Если их использовать на трансмутацию  $^{99}\text{Tc}$ , то на одно деление в быстром реакторе можно сжигать  $^{99}\text{Tc}$  от 3–8 делений в других реакторах. Правда, при этом такой быстрый реактор уже перестанет быть бридером топлива, а будет работать в режиме самообеспечения.

В случае использования ЭЛЯУ с генерацией в мишени  $\sim 0,8$  нейтрона в расчете на одно деление, энергия которого используется для питания ускорителя ЭЛЯУ, можно будет трансмутировать  $^{99}\text{Tc}$ , накапливающийся в результате  $\sim 14$  делений, т.е. ЭЛЯУ, питаемые энергией от одного реактора типа ВВЭР-1000, были бы способны трансмутировать  $^{99}\text{Tc}$  от 13 таких реакторов.

## П.1.2. Трансмутация $^{129}\text{I}$

В продуктах деления йод присутствует в виде смеси двух изотопов: стабильный  $^{127}\text{I}$  и радиоактивный  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 1,6 \cdot 10^7$  лет). Выход этих изотопов йода при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами равен 0,5% и 1,4% соответственно. Учитывая, что стабильный изотоп  $^{127}\text{I}$  составляет только 25% смеси, считается, что проводить потенциально опасную операцию изотопного выделения радиоактивного изотопа  $^{129}\text{I}$  перед трансмутацией нецелесообразно.

Цепочка изотопных превращений при облучении смеси  $^{127}\text{I}$  и  $^{129}\text{I}$  в нейтронном поле представлена на рис. П.1.3.

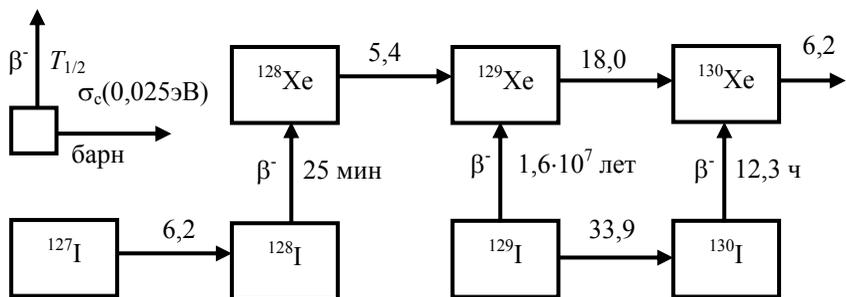


Рис. П.1.3. Цепочка нуклидных превращений при трансмутации  $^{127}\text{I}$  (в смеси изотопов осколочного йода) в нейтронном поле

Изотопы  $^{127}\text{I}$  и  $^{129}\text{I}$  характеризуются достаточно большими сечениями захвата тепловых нейтронов (рис. П.1.4), сопоставимыми с сечением захвата нейтронов  $^{99}\text{Tc}$ .

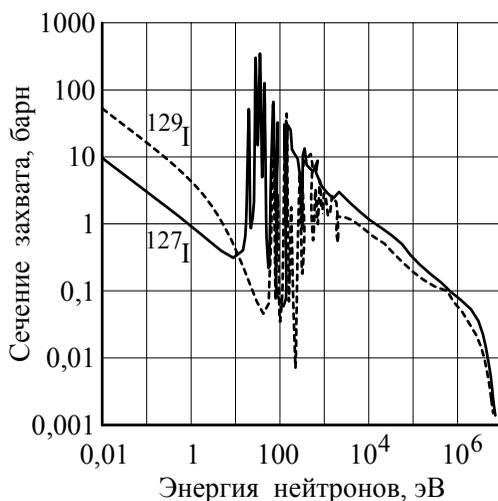


Рис. П.1.4. Сечение захвата  $^{127}\text{I}$  и  $^{129}\text{I}$  в зависимости от энергии нейтронов

Поэтому облучение смеси изотопов йода в спектре нейтронов легководного реактора или в смягченном спектре экрана быстрого реактора позволит эффективно трансмутировать смесь этих изото-

пов в стабильные изотопы ксенона. Учитывая высокую летучесть йода и то, что дочерним продуктом является инертный газ ксенон, предпочтительно трансмутационный процесс осуществлять при невысоких температурах, предусмотрев в облучаемых сборках газовую полость для сбора накапливающегося ксенона.

Так же, как и  $^{99}\text{Tc}$  смесь изотопов йода может трансмутировать в смягченном спектре нейтронов и в экране быстрого реактора, и в бланкете ЭЛЯУ. Так, например, если предполагать, что энергия от одного деления, будучи использована для питания ускорителя, позволит получить в ЭЛЯУ  $\sim 0,8$  нейтрона для трансмутации, тогда в бланкете можно будет трансмутировать смесь изотопов йода (выход при делении – 1,9%) от 42 делений в энергетических реакторах (максимальная оценка). Иными словами, ЭЛЯУ, питающиеся от одного реактора ВВЭР-1000, будут способны трансмутировать смесь изотопов йода, который нарабатывает 41 реактор типа ВВЭР-1000.

В перспективе возможно будет использовать и термоядерные установки для трансмутации йода. Если предположить, что от одной (dt)-реакции для трансмутации можно использовать  $\sim 0,3$  нейтрона (раздел 3.2.2.1), то эти нейтроны позволят обеспечить трансмутацию смеси изотопов йода от 15 делений (максимальная оценка), а один термоядерный реактор типа ITER будет способен трансмутировать  $^{129}\text{I}$  без изотопного разделения от реакторов типа ВВЭР-1000 суммарной мощностью около 60 ГВт(эл.).

### П.1.3. Трансмутация $^{135}\text{Cs}$

Долгоживущий радионуклид  $^{135}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 2,3 \cdot 10^6$  лет) в составе продуктов деления находится в смеси с изотопами  $^{133}\text{Cs}$  (стабильный),  $^{134}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 2,06$  года) и  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30$  лет). Основной канал накопления изотопа  $^{135}\text{Cs}$  связан с  $\beta$ -распадом нуклида  $^{135}\text{Xe}$ . Этот нуклид в спектре нейтронов тепловых реакторов успевает заметно выгорать, и поэтому содержание  $^{135}\text{Cs}$  в облученном топливе тепловых реакторов меньше, чем в топливе быстрых реакторов. Выход изотопов цезия в расчёте на одно деление в тепловых реакторах (с учетом выгорания и послереакторной выдержки – 5 лет) составляет

$$^{133}\text{Cs} / ^{134}\text{Cs} / ^{135}\text{Cs} / ^{137}\text{Cs} = 0.0475 / 0,0003 / 0.017 / 0.043 .$$

При помещении этой смеси в нейтронное поле для трансмутации будет реализовываться цепочка нуклидных превращений, показанная на рис. П.1.5.

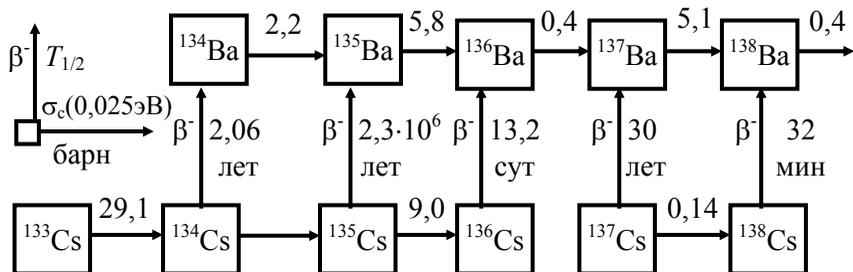
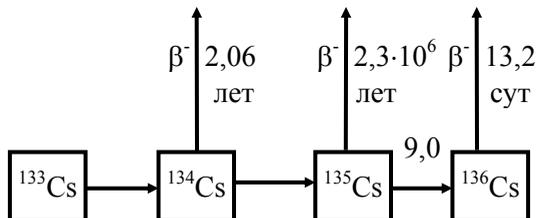


Рис. П.1.5. Цепочка нуклидных превращений при трансмутации  $^{135}\text{Cs}$  (в смеси изотопов осколочного цезия) в нейтронном поле

По виду этой цепочки можно сделать следующие заключения.

Во-первых, поскольку радионуклид  $^{136}\text{Cs}$  является весьма короткоживущим ( $T_{1/2} = 13,2$  сут), то следующий изотоп  $^{137}\text{Cs}$  практически не связан с остальными изотопами цепочки. Учитывая также, что нуклид  $^{137}\text{Cs}$  сам довольно быстро распадается ( $T_{1/2} = 30$  лет) и имеет малое сечение захвата нейтронов ( $0,14$  барн при  $E_n = 0,025$  эВ), радиоактивный распад является основным каналом, определяющим уменьшение его содержания.

Во-вторых, по существу, характер трансмутации долгоживущего  $^{135}\text{Cs}$  будет определяться изотопными переходами в трехзвенной цепочке



При нейтронном облучении содержание  $^{135}\text{Cs}$  будет снижаться за счет  $(n,\gamma)$ -реакции (собственно трансмутация), и одновременно будет происходить его пополнение за счет цепочки реакций  $^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134}\text{Cs}(n,\gamma)^{135}\text{Cs}$ . Количественно величина этого пополнения будет зависеть от отношения  $(\sigma^{(134)} \cdot \Phi) / \lambda_{134}$ , характеризующего соотношение интенсивности каналов реакций для  $^{134}\text{Cs}$ . Если  $\lambda_{134} \gg \gg (\sigma^{(134)} \cdot \Phi)$ , то подпитка  $^{135}\text{Cs}$  будет пренебрежимо мала, и трансмутация  $^{135}\text{Cs}$  будет происходить так, как будто он – выделенный изотоп, а присутствие  $^{133}\text{Cs}$  и  $^{134}\text{Cs}$  будет сказываться только на увеличении общего расхода нейтронов вследствие захвата в этих изотопах.

Если же  $\lambda_{134} \leq (\sigma^{(134)} \cdot \Phi)$ , то образование  $^{135}\text{Cs}$  через реакцию  $^{134}\text{Cs}(n,\gamma)^{135}\text{Cs}$  обусловит дополнительный расход нейтронов на его трансмутацию.

Зависимость сечений захвата от энергии нейтронов для рассматриваемых изотопов цезия показана на рис. П.1.6.

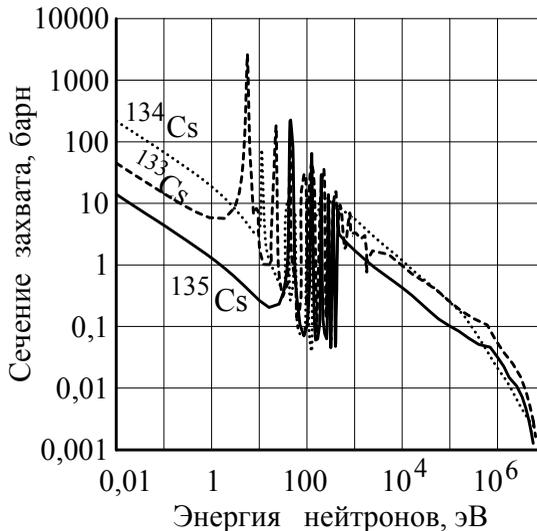


Рис. П.1.6. Сечение захвата для  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{135}\text{Cs}$  в зависимости от энергии нейтронов

Минимальное сечение захвата нейтронов среди рассматриваемых трех изотопов характерно для  $^{135}\text{Cs}$  (9,0 барн при  $E_n = 0,025$  эВ). Чтобы время жизни этого нуклида в поле тепловых нейтронов было  $\sim 50$  лет, необходима плотность потока тепловых нейтронов  $\Phi \sim 3 \cdot 10^{14}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ . Это приблизительно на порядок больше, чем плотность потока тепловых нейтронов в легководном реакторе. В экране быстрого реактора плотность потока нейтронов также недостаточна для эффективной трансмутации  $^{135}\text{Cs}$  (среднее время жизни этого нуклида в нейтронном поле составляет сотни лет).

Поэтому рассмотрим трансмутацию  $^{135}\text{Cs}$  (без изотопного разделения) в бланкете термоядерной установки типа ITER с (dt)-реакцией синтеза.

Концепция бланкета ТЯУ типа ITER для трансмутации  $^{135}\text{Cs}$  (рис. П.1.7)

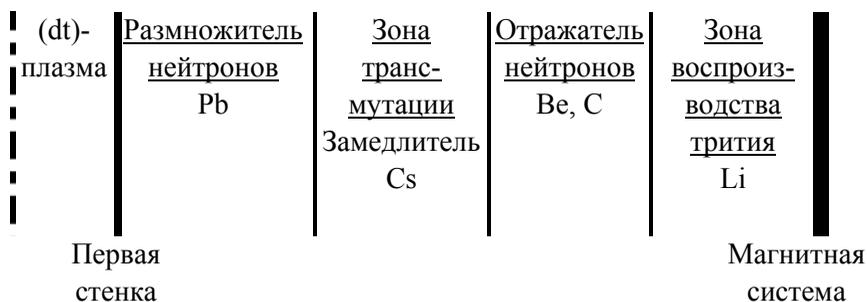


Рис.П.1.7. Схема бланкета термоядерной установки типа ITER для трансмутации  $^{135}\text{Cs}$

Для размножения термоядерных нейтронов ( $E_n = 14,1$  МэВ), рожденных в (dt)-реакции синтеза, за первой стенкой размещается слой свинца. Далее размноженные нейтроны поступают в зону трансмутации  $^{135}\text{Cs}$ , содержащую замедлитель (бериллий, графит). Чтобы замедленные нейтроны, диффундирующие в сторону плазменной камеры, не претерпевали паразитный захват материалом первой стенки, в свинцовый размножитель может быть добавлен цезий «свежего» состава, т.е. цезий, извлеченный из облученного

топлива. В этом случае диффундирующие к первой стенке медленные нейтроны будут захватываться изотопами  $^{133}\text{Cs}$  и  $^{134}\text{Cs}$ , сечение захвата у которых довольно значительно: 29,1 барн и 139,8 барн, соответственно, при  $E_n = 0,025$  эВ.

После выжигания  $^{133}\text{Cs}$  и  $^{134}\text{Cs}$  дальнейшее облучение этого материала целесообразно продолжить в зоне трансмутации в потоке нейтронов повышенной плотности для трансмутации преимущественно  $^{135}\text{Cs}$ . За зоной трансмутации размещается отражатель нейтронов, а далее – зона воспроизводства трития.

При нейтронной нагрузке на первую стенку  $1 \text{ МВт/м}^2$  (ITER, проект 1998 года) средняя плотность потока тепловых нейтронов в зоне трансмутации составляет  $\Phi \sim 3 \cdot 10^{14}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ . В этих условиях среднее время жизни трансмутируемого  $^{135}\text{Cs}$  около 50 лет. При этом для изотопа  $^{134}\text{Cs}$  соотношение между каналами реакций  $(\sigma^{(134)} \cdot \Phi) / \lambda_{134} \cong 0,6$ . Это значит, что около 40% ядер  $^{134}\text{Cs}$  путем захвата нейтронов будет переходить в долгоживущий  $^{135}\text{Cs}$ , что, как следствие, приводит к дополнительному расходу нейтронов на трансмутацию. В трехзвенной цепочке  $^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134}\text{Cs}(n,\gamma)^{135}\text{Cs}$  величина расхода нейтронов в расчете на трансмутацию одного ядра  $^{135}\text{Cs}$  может быть оценена по следующей формуле:

$$\Delta n = \frac{Y_f^{135} + Y_f^{133} \cdot \left[ 1 + \frac{2 \cdot \sigma^{(134)} \cdot \Phi}{\lambda_{134} + \sigma^{(134)} \cdot \Phi} \right]}{Y_f^{135}}.$$

В предположении, что  $Y_f^{133} = 0,0475$ ;  $Y_f^{135} = 0,017$  и  $(\sigma^{(134)} \cdot \Phi) / \lambda_{134} \cong 0,6$ , расход нейтронов на трансмутацию одного ядра  $^{135}\text{Cs}$  без его изотопного выделения составит  $\Delta n = 5,9$  нейтрона. Если осуществить операцию изотопного разделения, то расход нейтронов будет равен 1 нейтрону (минимальная оценка), т.е. в 5,9 раза меньше. Общий расход нейтронов на трансмутацию ядра  $^{135}\text{Cs}$  без его изотопного выделения составляет  $\sim 0,1$  нейтрона в расчете на одно деление в тепловом реакторе. Это минимальная оценка, не учитывающая паразитное поглощение нейтронов в изотопах бария, которые являются дочерними нуклидами в цепочке трансмутации цезия.

Ранее было оценено, что при осуществлении (dt)-реакции количество избыточных нейтронов для трансмутации может составить

~ 0,3 нейтрона на одну (dt)-реакцию. Это означает, что для трансмутации  $^{135}\text{Cs}$  без изотопного разделения (0,1 нейтрона на деление) потребуется осуществить 1/3 (dt)-реакции в расчете на одно деление в реакторе, т.е. доля термоядерных мощностей в ядерной системе будет около 3-4%. При зажигании (dd)-реакции эта доля может быть снижена примерно в 3 раза, поскольку (dd)-синтез более богат избыточными нейтронами.

В высокопоточном бланкете ЭЛЯУ также можно осуществить эффективную трансмутацию  $^{135}\text{Cs}$  без изотопного разделения, однако при этом доля реакторных мощностей, связанных с питанием сильноточных ускорителей для таких специализированных ЭЛЯУ, составит более 13% в ядерной энергосистеме.

### П.1.4. Трансмутация $^{126}\text{Sn}$

Долгоживущий радионуклид  $^{126}\text{Sn}$  ( $T_{1/2} = 10^5$  лет) в составе осколочного олова находится в смеси из девяти изотопов (табл. П.1.1).

Таблица П.1.1

**Выход изотопов олова при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами и минимальный расход нейтронов на трансмутацию (в расчете на одно деление)**

Изотоп	Выход $Y_f$ , %	Минимальный расход нейтронов на трансмутацию, $10^4$ нейтр./дел.
$^{115}\text{Sn}$	0,0024	1,44
$^{116}\text{Sn}$	–	–
$^{117}\text{Sn}$	0,046	18,4
$^{118}\text{Sn}$	0,046	13,8
$^{119}\text{Sn}$	0,049	9,80
$^{120}\text{Sn}$	0,043	4,30
$^{122}\text{Sn}^*$	0,131	20,0
$^{124}\text{Sn}$	0,128	12,8
$^{126}\text{Sn}$	0,310	31,0
Сумма	0,754	111,54

\* ) В силу отсутствия данных о сечении захвата нейтронов изотопом  $^{121g}\text{Sn}$  предположено, что оно велико, и выход этого изотопа при делении добавлен к выходу изотопа  $^{122}\text{Sn}$ .

Суммарный минимальный расход нейтронов на трансмутацию всей смеси изотопов олова невелик ( $\sim 0,013$  нейтрона на одно деление), поскольку невелик выход изотопов олова при делении (табл. П.1.1). Однако трудность трансмутации  $^{126}\text{Sn}$  (независимо от того, находится ли он в составе смеси изотопов или выделен из нее) состоит в том, что его сечение захвата нейтронов невелико (рис. П.1.8).

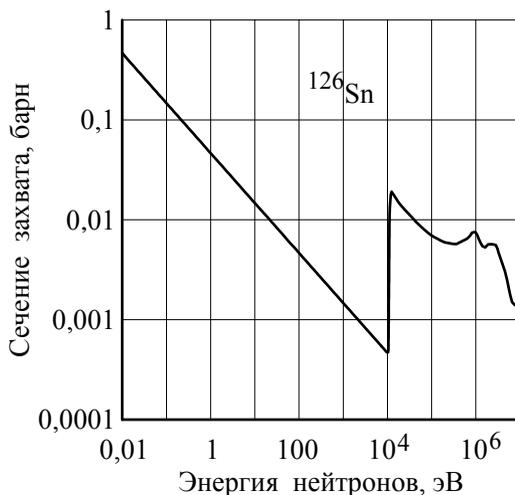


Рис.П.1.8. Сечение захвата  $^{126}\text{Sn}$  в зависимости от энергии нейтронов

Поэтому для эффективной трансмутации  $^{126}\text{Sn}$  необходима достаточно высокая плотность потока нейтронов. Сечение захвата нейтронов изотопом  $^{126}\text{Sn}$  составляет 0,3 барн при  $E_n = 0,025$  эВ. Чтобы при этом среднее время жизни ядра  $^{126}\text{Sn}$  в нейтронном поле было  $\sim 50$  лет, плотность потока тепловых нейтронов должна быть  $\Phi \sim 2 \cdot 10^{15}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ . В энергетических легководных реакторах плотность потока тепловых нейтронов в 50–100 раз меньше, что не позволяет надеяться на осуществление эффективной трансмутации  $^{126}\text{Sn}$ . Для этого необходим высокопоточный бланкет специализированной установки.

Формирование структуры высокопоточного бланкета для трансмутации радионуклидов с малым сечением захвата нейтронов

имеет некоторую особенность. Для объяснения ее запишем баланс нейтронов для зоны трансмутации в таком бланкете в следующем виде:

$$J_{\text{ист}} - \Sigma_c^{\text{TP}} \cdot \Phi \cdot V - \Sigma_c^{\text{TH, KM, зам}} \cdot \Phi \cdot V - B^2 \cdot D \cdot \Phi \cdot V = 0,$$

где  $J_{\text{ист}}$  – поступление нейтронов в зону трансмутации от внешнего источника;  $\Sigma_c^{\text{TP}}, \Sigma_c^{\text{TH, KM, зам}}$  – макросечение захвата нейтронов в трансмутируемом нуклиде, теплоносителе, конструкционных материалах и замедлителе;  $B^2$  – лапласиан, характеризующий утечку нейтронов из зоны трансмутации;  $D$  – коэффициент диффузии нейтронов;  $V$  – объем зоны.

Разрешим это уравнение относительно средней плотности потока нейтронов  $\Phi$ :

$$\Phi = \frac{J_{\text{ист}}}{V \cdot (\Sigma_c^{\text{TP}} + \Sigma_c^{\text{TH, KM, зам}} + B^2 \cdot D)}.$$

Из этого соотношения видно, что для создания высокой плотности потока нейтронов необходимо, чтобы общее поглощение и утечка нейтронов были малы. Для эффективного использования нейтронов на цели трансмутации нужно, чтобы доминирующим поглощением нейтронов было поглощение в трансмутируемом нуклиде, т.е. чтобы выполнялось неравенство

$$\Sigma_c^{\text{TP}} > \Sigma_c^{\text{TH, KM, зам}} + B^2 \cdot D.$$

Это означает, что конструкционные материалы, теплоноситель и замедлитель должны выбираться с низким сечением захвата нейтронов. Представляется, что более просто это требование можно удовлетворить в бланкете специализированной ЭЛЯУ. Причем такое требование распространяется также и на выбор материалов для мишенного комплекса ЭЛЯУ.

Цепочку нуклидных превращений для  $^{126}\text{Sn}$  (рис. П.1.9) можно разделить на три почти независимых звена.

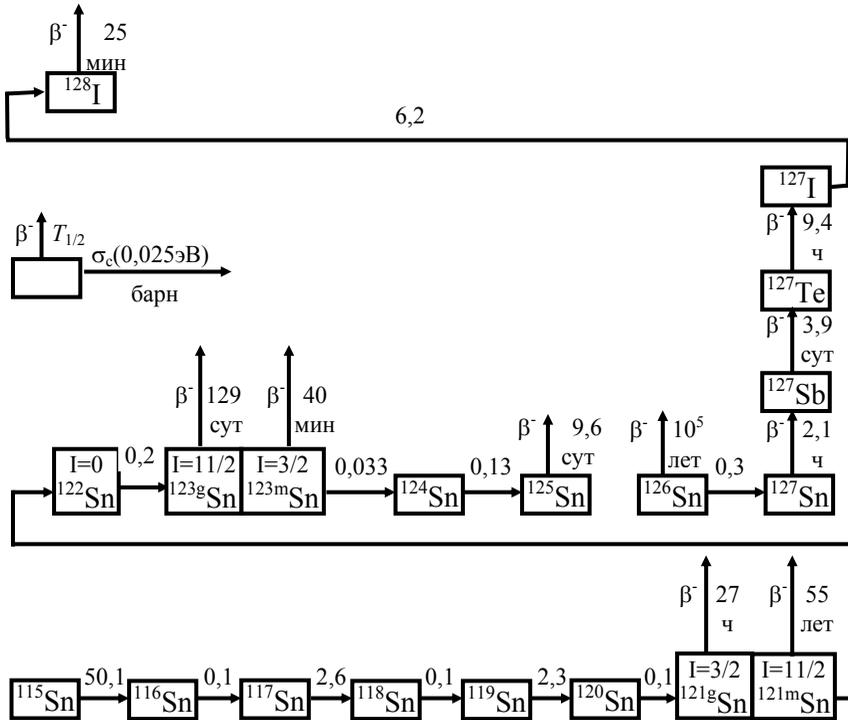


Рис. П.1.9. Цепочка нуклидных превращений при трансмутации  $^{126}\text{Sn}$  (в смеси изотопов осколочного олова) в нейтронном поле

Первое звено содержит изотопы  $^{115}\text{Sn}$ - $^{121g}\text{Sn}$ . Оно заканчивается довольно быстро распадающимся радионуклидом  $^{121g}\text{Sn}$  ( $T_{1/2} = 27$  час) в стабильный  $^{121}\text{Sb}$ . Вероятность захвата теплового нейтрона по каналу реакции  $^{120}\text{Sn}(n,\gamma)^{121g}\text{Sn}$  существенно больше, чем по каналу  $^{120}\text{Sn}(n,\gamma)^{121m}\text{Sn}$ , т.к. разница в спинах конечного и исходного ядер для первой реакции  $\Delta I = 3/2$ , что существенно меньше, чем для второй реакции ( $\Delta I = 11/2$ ).

Второе звено содержит изотопы  $^{122}\text{Sn}$ - $^{123m}\text{Sn}$ . Оно заканчивается быстрораспадающимся нуклидом  $^{123m}\text{Sn}$  ( $T_{1/2} = 40$  мин). Вероятность захвата теплового нейтрона по каналу реакции  $^{122}\text{Sn}(n,\gamma)^{123g}\text{Sn}$  ( $\Delta I = 11/2$ ) существенно меньше, чем по каналу  $^{122}\text{Sn}(n,\gamma)^{123m}\text{Sn}$  ( $\Delta I = 3/2$ ).

Третье звено содержит два изотопа:  $^{124}\text{Sn}$  и  $^{125}\text{Sn}$  ( $T_{1/2} = 9,6$  сут), причём вследствие короткого периода полураспада практически отсутствуют переходы в долгоживущий  $^{126}\text{Sn}$ .

Последнее звено состоит только из одного долгоживущего радионуклида  $^{126}\text{Sn}$ . Поэтому можно заключить, что характер трансмутации нуклида  $^{126}\text{Sn}$  определяется главным образом его сечением захвата нейтронов, а присутствие остальных изотопов проявляется через дополнительный расход нейтронов на переходы в остальных звеньях цепочки.

Захват нейтрона изотопом  $^{126}\text{Sn}$  приводит к образованию короткоживущего  $^{127}\text{Sn}$ , который в результате цепочки из трех  $\beta^-$ -распадов  $^{127}\text{Sn}(\beta^-, 2,1 \text{ час}) \rightarrow ^{127}\text{Sb}(\beta^-, 3,9 \text{ сут}) \rightarrow ^{127}\text{Te}(\beta^-, 2,4 \text{ час}) \rightarrow ^{127}\text{I}(\text{стаб})$  превращается в стабильный  $^{127}\text{I}$ . Этот нуклид может быть выделен химическими методами из облученного материала, однако проще выделять стабильный инертный газ  $^{128}\text{Xe}$  – продукт реакции  $^{127}\text{I}(n,\gamma) \rightarrow ^{128}\text{I}(\beta^-, 25 \text{ мин}) \rightarrow ^{128}\text{Xe}$ .

#### П.1.4.1. Концепция blankets ЭЛЯУ для трансмутации $^{126}\text{Sn}$

Структура высокопоточного blankets ЭЛЯУ для эффективной трансмутации  $^{126}\text{Sn}$  может выглядеть следующим образом (рис.П.1.10).

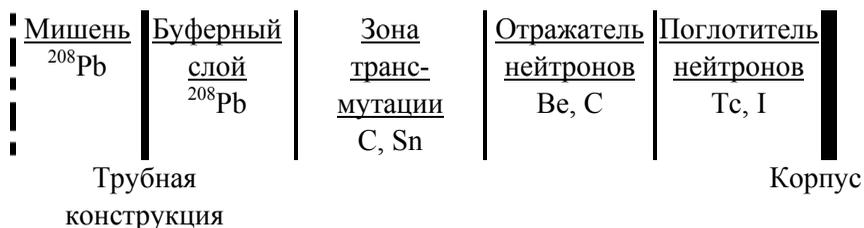


Рис.П.1.10. Схема blankets ЭЛЯУ для трансмутации  $^{126}\text{Sn}$

Мишенно-blankетный комплекс ЭЛЯУ бассейнового типа заполнен свинцом, обогащенным по изотопу  $^{208}\text{Pb}$ . В центре расположена мишень ( $^{208}\text{Pb}$ ), отделенная трубной конструкцией от blankets, для обеспечения интенсивного теплоотвода из мишени. Как известно, ядро  $^{208}\text{Pb}$  является дважды магическим с замкнутыми

нейтронными и протонными оболочками, что обуславливает рекордно низкое сечение захвата медленных нейтронов ( $\sim 0,5$  мбарн при  $E_n = 0,025$  эВ). В качестве замедлителя нейтронов выбран графит, так как его сечение захвата тепловых нейтронов также мало ( $\sim 3,5$  мбарн при  $E_n = 0,025$  эВ).

Таким образом, выбор  $^{208}\text{Pb}$  в качестве теплоносителя и графита в качестве замедлителя позволяет сформировать в зоне трансмутации поток тепловых нейтронов с высокой плотностью.

Нейтроны, генерируемые в мишени, сначала претерпевают замедление вследствие неупругого и упругого замедления в буферном слое свинца (рис. П.1.10). Затем формирование спектра тепловых нейтронов происходит при замедлении на графите в зоне трансмутации. За зоной трансмутации размещается графитовый отражатель. Нейтроны, продиффундировавшие через отражатель и обладающие уже меньшей плотностью потока, утилизируются во второй зоне трансмутации, где облучаются радионуклиды со значимым сечением захвата, например  $^{99}\text{Tc}$  или радиойод. Это позволяет использовать эти нейтроны для трансмутации и одновременно уменьшить облучение корпуса установки.

Расчет распределения плотности потока нейтронов в модели такого blankets показал, что при токе пучка протонов  $I_p = 200$  мА и их энергии  $E_p = 1,5$  ГэВ средняя плотность потока тепловых нейтронов приблизительно равна  $5 \cdot 10^{15}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ , а среднее сечение захвата нейтронов ядром  $^{126}\text{Sn} \sim 0,1$  барн. При этом среднее время жизни ядра  $^{126}\text{Sn}$  в нейтронном поле – 65 лет. В рассматриваемом blankets ЭЛЯУ при использовании малопоглощающего нейтроны свинца, обогащенного  $^{208}\text{Pb}$ , в трансмутируемом олове поглощается около половины нейтронов, попадающих в blankets. Если же вместо свинца, обогащенного  $^{208}\text{Pb}$ , использовать природный свинец, то плотность потока тепловых нейтронов в зоне трансмутации снижается примерно в 3 раза, поскольку сечение захвата нейтронов природным свинцом ( $0,17$  барн при  $E_n = 0,025$  эВ) существенно больше, чем для  $^{208}\text{Pb}$  ( $0,0005$  барн при  $E_n = 0,025$  эВ). Среднее время жизни ядра  $^{126}\text{Sn}$  в нейтронном поле возрастает до 240 лет. Наряду с этим резко ухудшается эффективность использования генерируемых в мишени нейтронов вследствие паразитного захвата в природном свинце. В этом случае полезное использова-

ние нейтронов составляет только 1/6 часть нейтронов, генерируемых в мишени.

Этот пример наглядно показывает важность подбора материалов для высокопоточных бланкетов трансмутационных установок, используемых для обезвреживания долгоживущих радионуклидов с малыми сечениями трансмутации.

Минимальный расход нейтронов на трансмутацию  $^{126}\text{Sn}$  без изотопного разделения составляет 0,0112 нейтр./дел. (см. таблицу П.1.1). В предположении, что в ЭЛЯУ с линейным ускорителем протонов и мишенью из свинца генерируется около 0,8 нейтрона в расчете на 200 МэВ энергии деления, используемой для питания ускорителя, и поскольку в рассматриваемом бланкете на трансмутацию  $^{126}\text{Sn}$  расходуется около половины нейтронов источника, то с их помощью можно трансмутировать  $^{126}\text{Sn}$ , образуемый от ~ 37 делений (максимальная оценка). Если предполагать, что эффективность преобразования подводимой к ускорителю электроэнергии в энергию пучка ускоренных протонов ( $I_p = 200$  мА,  $E_p = 1,5$  ГэВ) равна  $\eta_{ac} = 50\%$ , то подводимая к ЭЛЯУ мощность составит 600 МВт (эл.). Тогда такая ЭЛЯУ будет способна трансмутировать  $^{126}\text{Sn}$  без изотопного разделения от 21 реактора типа ВВЭР-1000.

Как уже отмечалось, из суммарного расхода нейтронов на трансмутацию олова (0,0112 нейтрона в расчете на одно деление) около 30% нейтронов тратится на трансмутацию собственно  $^{126}\text{Sn}$ . Поэтому если предварительно провести операцию изотопного разделения и выделить  $^{126}\text{Sn}$ , то подобная установка была бы способна трансмутировать  $^{126}\text{Sn}$ , который генерируется 65 реакторами типа ВВЭР-1000.

#### **П.1.4.2. Использование свинца, обогащенного изотопом $^{208}\text{Pb}$**

Изотоп  $^{208}\text{Pb}$  может быть выделен из естественного свинца путем обогащения. Однако даже для единичной ЭЛЯУ этот процесс может оказаться весьма трудоемким, так как потребуются тысячи тонн материала. Гораздо более привлекательным представляется выделение такого свинца при добыче ториевой руды.

Как известно, стабильный изотоп  $^{208}\text{Pb}$  является нуклидом, которым заканчивается длинная цепочка радиоактивных распадов,

начинающаяся с  $^{232}\text{Th}$ . В настоящее время соотношение содержащий  $^{208}\text{Pb}/^{232}\text{Th}$  в ториевой руде составляет 1/5. Это значит, что при добыче 10000 тонн  $^{232}\text{Th}$  можно попутно извлекать около 2000 тонн  $^{208}\text{Pb}$ . Такой масштаб добычи  $^{208}\text{Pb}$  вряд ли можно рассматривать в качестве приемлемого применительно к крупномасштабной ядерной энергетике, если свинец использовать как теплоноситель в энергетических реакторах. Однако для специализированных установок, составляющих относительно небольшую долю в ядерной системе, использование такого источника добычи  $^{208}\text{Pb}$  представляется вполне разумным.

### П.1.5. Трансмутация $^{79}\text{Se}$

Долгоживущий радионуклид  $^{79}\text{Se}$  претерпевает  $\beta^-$ -распад ( $T_{1/2} = 65000$  лет), не сопровождающийся  $\gamma$ -излучением. В составе осколочного селена этот долгоживущий изотоп находится в смеси из 5 изотопов (остальные четыре изотопа – стабильные). Выход  $^{79}\text{Se}$  при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами составляет 0,039% в расчете на одно деление, а выход всей смеси изотопов селена равен 0,394%, т.е. на долю долгоживущего  $^{79}\text{Se}$  приходится 10%. Выход остальных изотопов селена приведен в табл. П.1.2.

Таблица П.1.2

**Выход изотопов селена при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами и минимальный расход нейтронов на трансмутацию (в расчете на одно деление)**

Изотоп	Выход $Y_f$ , %	Минимальный расход нейтронов на трансмутацию, $10^{-4}$ нейтр./дел.
$^{77}\text{Se}$	0,007	2,8
$^{78}\text{Se}$	0,0168	5,1
$^{79}\text{Se}$	0,0390	7,8
$^{80}\text{Se}$	0,0890	8,9
$^{82}\text{Se}$	0,242	24,2
Сумма	0,394	48,8

Если смесь изотопов селена подвергнуть облучению в спектре тепловых нейтронов, то будет реализовываться цепочка изотопных превращений, представленная на рис. П.1.11.

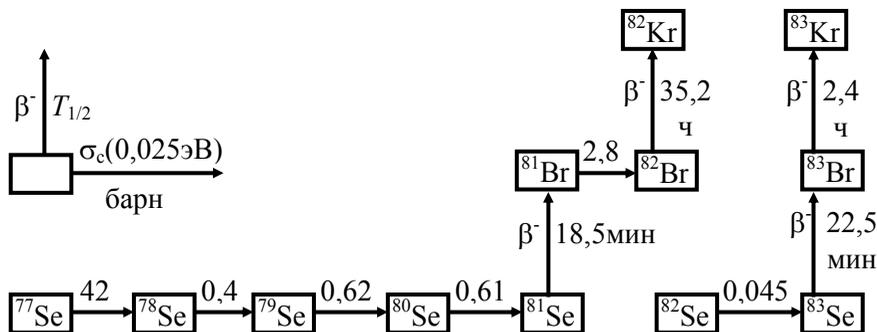


Рис.П.1.11. Цепочка нуклидных превращений при трансмутации  $^{79}\text{Se}$  (в смеси изотопов осколочного селена) в нейтронном поле

Исходя из вида этой цепочки, минимальный расход нейтронов на трансмутацию  $^{79}\text{Se}$  без изотопного разделения можно оценить по следующей формуле:

$$\Delta n = 4 \cdot Y_f^{77} + 3 \cdot Y_f^{78} + 2 \cdot Y_f^{79} + 1 \cdot Y_f^{80} + 1 \cdot Y_f^{82} .$$

Подставив значения выходов изотопов селена, получим  $\sim 0,005$  нейтр./дел. В то же время на трансмутацию собственно  $^{79}\text{Se}$  тратится только 0,0008 нейтр./дел., что составляет 16% от минимального расхода нейтронов на трансмутацию всего осколочного селена. Причем стабильные легкие изотопы  $^{77}\text{Se}$  и  $^{78}\text{Se}$ , предшествующие долгоживущему  $^{79}\text{Se}$ , будут переходить в него, поддерживая таким образом долгоживущую радиоактивность в процессе трансмутации.

Сечения захвата тепловых нейтронов для изотопов селена невелики, менее 1 барна, за исключением  $^{77}\text{Se}$ , сечение захвата которого составляет 42 барна при  $E_n = 0,025$  эВ. Величины этих сечений соизмеримы с сечениями для изотопов олова, извлеченного из продуктов деления (см. П.1.4). Поэтому для эффективной трансмутации  $^{79}\text{Se}$  без изотопного разделения необходимо использовать также высокопоточный бланкет, содержащий материалы с низкими сечениями захвата нейтронов. Для этого воспользуемся концепцией blankets ЭЛЯУ, рассмотренной применительно к трансмутации долгоживущего радионуклида  $^{126}\text{Sn}$  (см. рис.П.1.10).

При средней плотности потока тепловых нейтронов в зоне трансмутации  $5 \cdot 10^{15}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$  и среднем сечении захвата нейтронов ядром  $^{79}\text{Se}$  около 0,3 барна среднее время жизни этого радионуклида в нейтронном поле составляет 21 год.

Как уже указывалось, в ЭЛЯУ с линейным ускорителем протонов и мишенью из свинца в расчете на 200 МэВ энергии деления, которая используется для питания ускорителя, генерируется  $\sim 0,8$  нейтрона. В blanketе рассматриваемой ЭЛЯУ при использовании малопоглощающего нейтроны свинца, обогащенного изотопом  $^{208}\text{Pb}$ , в смеси изотопов селена поглощается около половины нейтронов, генерируемых в мишени. Поэтому в расчете на 200 МэВ энергии деления, которая используется для питания ускорителя, может трансмутироваться селен от  $\sim 80$  делений. Тогда такая ЭЛЯУ будет способна трансмутировать осколочный селен без изотопного разделения от 48 реакторов типа ВВЭР-1000.

Из суммарного расхода 0,005 нейтрона на одно деление только около 16% нейтронов тратится на трансмутацию собственно долгоживущего изотопа  $^{79}\text{Se}$ . Если предварительно провести операцию изотопного разделения и выделить  $^{79}\text{Se}$ , то подобный электроядерный трансмутатор будет способен трансмутировать  $^{79}\text{Se}$ , производимый при работе 300 реакторов типа ВВЭР-1000. Заметим, что в настоящее время вся атомная энергетика планеты имеет суммарную мощность такого порядка.

Если использовать природный свинец в мишени и в blanketе ЭЛЯУ, то плотность потока тепловых нейтронов в зоне трансмута-

ции снизится примерно в 3 раза, и среднее время жизни ядра  $^{79}\text{Se}$  в нейтронном поле соответственно возрастет до 60 лет. Однако при этом доля полезно используемых на трансмутацию нейтронов снижается до весьма малой величины:  $\sim 15\%$ . Соответственно упадет и производительность электроядерного трансмутатора.

### П.1.6. Трансмутация $^{93}\text{Zr}$

В составе продуктов деления в облученном топливе присутствуют 8 изотопов циркония (с  $^{90}\text{Zr}$  до  $^{97}\text{Zr}$ ), причем долгоживущий радионуклид только один –  $^{93}\text{Zr}$  ( $T_{1/2} = 1,53 \cdot 10^6$  лет). Выход  $^{93}\text{Zr}$  при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами составляет 3,9% в расчете на одно деление, а выход всех изотопов циркония – 20,8%. Выход отдельных изотопов циркония при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами приведен в табл. П.1.3.

Таблица П.1.3

**Выход изотопов циркония при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами, равновесный состав и минимальный расход нейтронов на трансмутацию**

Изотоп	Выход $Y_f, \%$ (на одно деление)	Выход (нормированный)	Равновесный состав циркония	Минимальный расход нейтронов (на одно деление)
$^{90}\text{Zr}$	2,0	0,096	0,237	0,100
$^{91}\text{Zr}$	2,4	0,115	0,050	0,096
$^{92}\text{Zr}$	3,0	0,144	0,044	0,090
$^{93}\text{Zr}$	3,9	0,187	0,008	0,078
$^{94}\text{Zr}$	4,3	0,206	0,414	0,043
$^{96}\text{Zr}$	5,2	0,252	0,294	0,052
Сумма	20,8	1,000	1,000	0,459

Если смесь изотопов циркония подвергать облучению в поле тепловых нейтронов, то будет реализовываться цепочка превращений, представленная на рис. П.1.12.

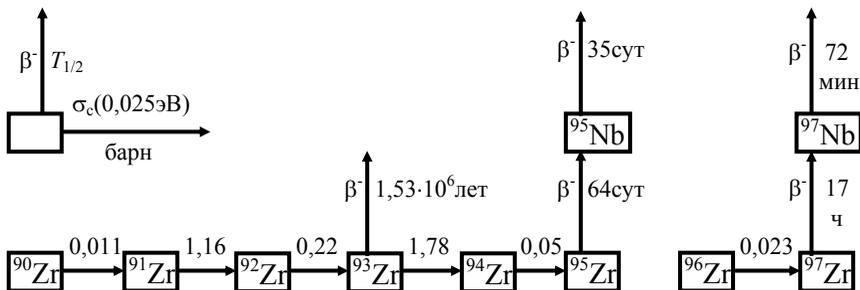


Рис.П.1.12. Цепочка нуклидных превращений при трансмутации  $^{93}\text{Zr}$  (в смеси изотопов осколочного циркония) в нейтронном поле

Предполагая, что процесс трансмутации происходит с непрерывной очисткой от дочерних изотопов ниобия и с подпиткой и используя данные о сечениях  $(n,\gamma)$ -реакций в цепочке превращений, нетрудно оценить установившийся изотопный состав смеси изотопов циркония, подвергающейся облучению (см. табл. П.1.3). Характерной особенностью этого установившегося состава является низкое содержание изотопа  $^{93}\text{Zr}$  (менее 1%). Это обстоятельство потребует больше места в зоне трансмутации для размещения трансмутируемого материала.

В соответствии с цепочкой нуклидных превращений минимальный расход нейтронов на трансмутацию  $^{93}\text{Zr}$  без изотопного разделения можно оценить по следующей формуле:

$$\Delta n = 5 \cdot Y_f^{90} + 4 \cdot Y_f^{91} + 3 \cdot Y_f^{92} + 2 \cdot Y_f^{93} + 1 \cdot Y_f^{94} + 1 \cdot Y_f^{96} ;$$

и он составляет 0,459 нейтр./дел. Нужно заметить, что на трансмутацию собственно изотопа  $^{93}\text{Zr}$  расходуется 0,078 нейтр./дел., т.е. около 17% нейтронов, а остальные расходуются на поглощение в стабильных нуклидах циркония, находящихся в облучаемой смеси. Причем стабильные изотопы  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{91}\text{Zr}$ ,  $^{92}\text{Zr}$ , предшественники изо-

топа  $^{93}\text{Zr}$ , будут превращаться в него, поддерживая таким образом долгоживущую радиоактивность. Так как расход нейтронов на трансмутацию  $^{93}\text{Zr}$  без изотопного разделения довольно большой (0,459 нейтр./дел.), то для его трансмутации необходим мощный источник нейтронов.

Как уже указывалось ранее, в качестве источников нейтронов для трансмутации рассматриваются быстрые реакторы, ЭЛЯУ и термоядерные установки. Проекты быстрых реакторов-бридеров характеризуются величиной генерации избыточных нейтронов (расходуемых на расширенное воспроизводство), составляющей 0,3-0,5 нейтрона в расчете на одно деление в реакторе. Если эти нейтроны использовать на цели трансмутации циркония без изотопного разделения, то с учетом потерь на утечку и паразитное поглощение их не хватит для трансмутации циркония, генерируемого при делении в этом реакторе. Кроме того, низкая плотность потока нейтронов в экране быстрого реактора и малые сечения (n, $\gamma$ )-реакций обусловили бы низкую эффективность трансмутации, т.е. долгое, в течение тысячелетия, время накопления равновесной загрузки (см. табл. 2.1).

В ЭЛЯУ, питающихся от атомного источника энергии для ускорения заряженных частиц, генерируется  $\sim 0,8$  нейтрона в расчете на одно деление, используемое для питания ускорителя. Если минимальный расход нейтронов на трансмутацию циркония от одного деления составляет 0,459, то генерируемых 0,8 нейтрона не хватило бы на трансмутацию циркония даже от двух делений. Таким образом, ядерная энергетическая система в этом случае состояла бы всего на 45% из коммерческих реакторов, а другие 55% реакторов работали бы на питание ускорителей ЭЛЯУ – трансмутаторов циркония. Ясно, что если учитывать трансмутацию и других долгоживущих продуктов деления, то в такой ядерной системе большая часть атомных мощностей будет работать на трансмутацию, т.е. на «собственные» нужды. Ядерная энергосистема с такой структурой не может быть эффективной и приемлемой для широкого производства энергии.

При использовании термоядерного синтеза на основе (dt)-реакции генерация избыточных нейтронов может составить  $\sim 0,3$  нейтрона на одну (dt)-реакцию (см. п.3.2.2.1), т.е. 0,3 нейтрона в расчете на 20 МэВ, выделяющихся вblankете. Так как на трансмутацию

$^{93}\text{Zr}$  без изотопного разделения расходуется как минимум 0,459 нейтрона в расчете на одно деление, то для такой трансмутации потребуется 1,53 реакции синтеза, и тогда термоядерные мощности в ядерной энергосистеме составили бы  $\sim 15\%$ , т.е. такая энергетическая система базировалась бы в основном на реакции деления.

Использование нейтронного источника на основе частично катализированной (dd)-реакции с генерацией  $\sim 0,95$  нейтрона на одну (dd)-реакцию при условии достижения режима зажигания позволило бы иметь в ядерной энергетической системе только около 5% термоядерных мощностей. Поэтому для трансмутации  $^{93}\text{Zr}$  без изотопного разделения целесообразно будет использовать технологию термоядерного синтеза.

Концепция blankets термоядерной установки типа ITER для трансмутации  $^{93}\text{Zr}$

Для термоядерного синтеза на основе (dt)-реакции структура blankets установки типа ITER (было бы правильнее говорить о структуре модуля blankets, т.к. blankets реактора ITER может состоять из набора модулей с различным целевым назначением) сходна с blanketsом, уже описанным в разделе П.1.3, и представлено на рис.П.1.13.



Рис.П.1.13. Схема blankets термоядерной установки типа ITER на основе (dt)-реакции синтеза для трансмутации  $^{93}\text{Zr}$

Здесь за первой стенкой размещен размножитель нейтронов (свинец), за которым в зоне трансмутации формируется спектр тепловых нейтронов. Часть тепловых нейтронов будет диффундировать к плазменной камере, где может быть поглощена в первой стенке. При этом, по существу, будут теряться нейтроны и повреж-

даться первая стенка. Чтобы этого избежать, в зоне размножителя термоядерных нейтронов и за зоной трансмутации может быть размещен литий для полезного поглощения нейтронов и воспроизводства трития. При такой компоновке blankets магнитная система оказывается защищенной от воздействия нейтронов утечки из зоны трансмутации. Нейтронно-физические расчеты blankets при нейтронной нагрузке на первую стенку  $1 \text{ МВт/м}^2$  и при использовании графита в качестве замедлителя показывают, что в зоне трансмутации средняя плотность потока тепловых нейтронов может составлять  $\Phi \sim 5 \cdot 10^{14} \text{ нейтр./(см}^2 \cdot \text{с)}$  и среднее время жизни ядра долгоживущего радионуклида  $^{93}\text{Zr}$  около 50 лет. В силу низкого сечения захвата нейтронов изотопами циркония в blankets необходимо использовать такие материалы, чтобы захват нейтронов в них не оказался доминирующим по сравнению с захватом в трансмутируемом цирконии.

Выше уже было оценено, что баланс между накоплением и трансмутацией  $^{93}\text{Zr}$  без изотопного разделения может достигаться при доле термоядерных мощностей на основе (dt)-реакции в ядерной энергосистеме, составляющей по меньшей мере 15%. Это означало бы, что в термоядерном реакторе типа ITER (термоядерная мощность – 1500 МВт, проект 1998 года) можно будет обезвреживать цирконий, нарабатываемый энергетическими реакторами типа ВВЭР-1000 суммарной мощностью 3,5 ГВт(эл.). Если осуществлять трансмутацию  $^{93}\text{Zr}$ , предварительно выделив его из смеси стабильных изотопов, то производительность одного термоядерного реактора типа ITER возрастет примерно в 6 раз, и он смог бы обезвреживать выделенный  $^{93}\text{Zr}$ , нарабатываемый энергетическими реакторами типа ВВЭР суммарной мощностью 20 ГВт(эл.).

Еще более значительным потенциалом по генерации избыточных нейтронов для трансмутации характеризуется (dd)-синтез. Принципиальная схема blankets термоядерной установки на основе (dd)-реакции имеет некоторые важные отличия от рассмотренной выше схемы blankets реактора на основе (dt)-реакции. Это отличие обусловлено отсутствием необходимости воспроизводства топлива для реакции синтеза. Схема blankets показана на рис. П.1.14.

Чтобы защитить первую стенку от облучения тепловыми нейтронами, диффундирующими из зоны трансмутации, и использовать их, в зону свинцового размножителя можно поместить поглотитель нейтронов. Это могут быть предназначенные для трансмутации долгоживущие радионуклиды со значимым сечением захвата нейтронов, такие, например, как  $^{99}\text{Tc}$ , смесь изотопов цезия (изотопы  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  имеют достаточно большие сечения захвата нейтронов).

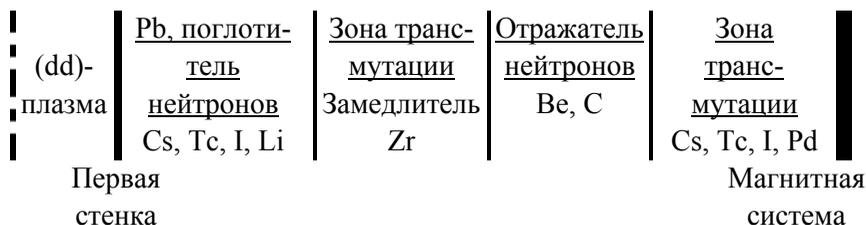


Рис. П.1.14. Схема blankets термоядерной установки типа ITER на основе (dd)-реакции для трансмутации  $^{93}\text{Zr}$

Таким же образом можно защитить и магнитную систему от облучения нейтронами, утекающими из периферийной области трансмутации. Как известно, плотность тепловых нейтронов по мере прохождения зоны трансмутации будет уменьшаться по закону

$$\Phi \sim \exp\left(-\frac{\Delta x}{L}\right),$$

где  $\Delta x$  – толщина;  $L$  – длина диффузии нейтронов.

В уменьшенном потоке нейтронов среднее время жизни трансмутируемого циркония будет чрезмерно большим, и трансмутация станет малоэффективной. Чтобы использовать эти «низкопотенциальные» нейтроны и защитить магнитную систему от облучения нейтронами, также потребуется разместить поглотитель нейтронов. В качестве такого поглотителя нейтронов можно использовать  $^6\text{Li}$  для наработки трития, что позволит осуществлять (ddt)-синтез в

дейтериевой плазме с небольшой добавкой трития, содержание которого в плазме будет зависеть от скорости его накопления в бланкете. Переход на дейтерий-тритиевую смесь позволит также снизить требования к параметрам плазмы и магнитного поля. Таким образом, возникает необходимость комплексного подхода при выборе как плазменной, так и бланкетной частей установки для трансмутации всей совокупности долгоживущих радионуклидов.

Для термоядерной установки, работающей на основе частично катализированной (dd)-реакции синтеза, при оценках можно исходить из повышенной величины плотности нейтронного потока термоядерных нейтронов на первую стенку по сравнению с (dt)-синтезом. Тогда с помощью такой термоядерной установки можно было бы трансмутировать  $^{93}\text{Zr}$  без изотопного разделения от энергетических реакторов типа ВВЭР-1000 суммарной мощностью 15 ГВт(эл.).

В случае осуществления предварительного изотопного выделения долгоживущего радионуклида  $^{93}\text{Zr}$  такой термоядерный трансмутатор смог бы обезвреживать  $^{93}\text{Zr}$  от энергетических реакторов типа ВВЭР-1000 суммарной мощностью 100 ГВт(эл.).

Такую возможность не следует исключать благодаря следующему обстоятельству. При тщательной очистке от ниобия (дочернего продукта распада) осколочный цирконий можно рассматривать как «чистый»  $\beta^-$ -излучатель (максимальная энергия – 63 кэВ). Поэтому цирконий может быть подвергнут изотопному разделению с выделением долгоживущего  $^{93}\text{Zr}$ , причем радиационная обстановка в процессе изотопного разделения не будет осложняться  $\gamma$ -излучением. Не следует исключать также и возможности использования осколочного циркония в качестве КМ.

### П.1.7. Трансмутация $^{107}\text{Pd}$

Палладий, накапливающийся как продукт деления, содержит один долгоживущий изотоп  $^{107}\text{Pd}$  ( $T_{1/2} = 6,5 \cdot 10^6$  лет) и четыре стабильных изотопа:  $^{105}\text{Pd}$ ,  $^{106}\text{Pd}$ ,  $^{108}\text{Pd}$  и  $^{110}\text{Pd}$ . Выход долгоживущего  $^{107}\text{Pd}$  при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами составляет 3,17% в расчете на одно деление, а выход всей смеси изотопов палладия – 15,8% (табл. П.1.4).

**Выход изотопов палладия при делении  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами, равновесный состав и минимальный расход нейтронов на трансмутацию**

Изотоп	Выход $Y_f$ , % (на одно деление)	Выход (нормированный)	Равновесный состав палладия	Минимальный расход нейтронов (на одно деление)
$^{105}\text{Pd}$	5,76	0,364	0,006	0,230
$^{106}\text{Pd}$	4,19	0,265	0,725	0,126
$^{107}\text{Pd}$	3,17	0,201	0,163	0,064
$^{108}\text{Pd}$	2,05	0,130	0,046	0,021
$^{110}\text{Pd}$	0,63	0,040	0,060	0,006
Сумма	15,8	1,000	1,000	0,447

Если смесь изотопов палладия подвергать облучению в спектре тепловых нейтронов, то будет реализовываться цепочка нуклидных превращений, представленная на рис. П.1.15.

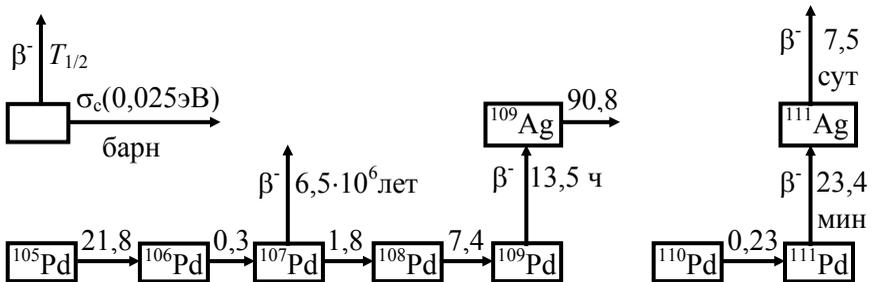


Рис. П.1.15. Цепочка нуклидных превращений при трансмутации  $^{107}\text{Pd}$  (в смеси изотопов осколочного палладия) в нейтронном поле

Эта цепочка похожа на цепочку для циркония, уже рассмотренную в предыдущем разделе. Для обеих цепочек характерно, что долгоживущий радионуклид  $^{107}\text{Pd}$  так же, как и  $^{93}\text{Zr}$ , находится в среднем звене, т.е. не только выгорая при облучении, но и подпитываясь за счет  $(n,\gamma)$ -реакций на стабильных предшественниках.

По виду цепочки нуклидных превращений, минимальный расход нейтронов на трансмутацию  $^{107}\text{Pd}$  без изотопного разделения можно оценить по следующей формуле:

$$\Delta n = 4 \cdot Y_f^{105} + 3 \cdot Y_f^{106} + 2 \cdot Y_f^{107} + 1 \cdot Y_f^{108} + 1 \cdot Y_f^{110},$$

и он составляет  $\sim 0,45$  нейтрона в расчете на одно деление. Причем на трансмутацию собственно долгоживущего нуклида  $^{107}\text{Pd}$  расходуется 0,064 нейтрона, т.е. около 14% нейтронов. Остальные нейтроны расходуются на поглощение в стабильных изотопах палладия, находящихся в облучаемой смеси. Причем стабильные изотопы  $^{105}\text{Pd}$  и  $^{106}\text{Pd}$ , предшествующие изотопу  $^{107}\text{Pd}$ , будут переходить в него, поддерживая таким образом долгоживущую активность.

Расход нейтронов на трансмутацию  $^{107}\text{Pd}$  без изотопного разделения такой же большой, как и для  $^{93}\text{Zr}$ , когда он находится в смеси с другими изотопами циркония.

Поэтому в качестве трансмутатора  $^{107}\text{Pd}$  целесообразно рассматривать термоядерную установку, сходную с той, которая рассматривалась в предыдущем разделе применительно к трансмутации циркония. Это в равной степени относится как к варианту с (dt)-синтезом, так и к варианту с (dd)-синтезом.

Сечения захвата тепловых нейтронов радионуклидами  $^{107}\text{Pd}$  и  $^{93}\text{Zr}$  довольно близки. Поэтому и среднее время жизни ядра нуклида  $^{107}\text{Pd}$  также будет слабо отличаться от  $^{93}\text{Zr}$ . В предположении, что процесс трансмутации  $^{107}\text{Pd}$  в смеси со своими стабильными изотопами происходит с непрерывной очисткой и подпиткой, нетрудно оценить установившийся изотопный состав палладия (таблица П.1.4). Если сравнить изотопный состав палладия, выделенного из облученного топлива (состав подпитки), с установившимся равновесным составом палладия в трансмутаторе, то можно заметить, что состав подпитки содержит существенно большую долю  $^{105}\text{Pd}$ . Это значит, что при облучении палладия исходного состава прежде всего будет происходить интенсивное выжигание  $^{105}\text{Pd}$  и, соответственно, интенсивный расход нейтронов на этот процесс. Поскольку сечение захвата нейтронов нуклидом  $^{105}\text{Pd}$  достаточно велико (21,8 барн при  $E_n = 0,025$  эВ), то для осуществления быстрого его выжигания нет смысла помещать такой состав палладия сразу в зону с высокой плотностью потока тепловых нейтронов, т.е. в

зону трансмутации. Поэтому трансмутацию  $^{107}\text{Pd}$  без изотопного разделения можно осуществлять в два этапа так же, как это рассматривалось применительно к трансмутации  $^{135}\text{Cs}$  без изотопного разделения (см. раздел П.1.3).

В силу низкого сечения захвата нейтронов изотопами Pd в бланкете необходимо использовать такие материалы, чтобы захват нейтронов в них не оказался доминирующим по сравнению с захватом в трансмутируемом Pd.

Как уже отмечалось, наиболее богатым источником нейтронов из тех, что рассматривались, является термоядерный синтез на основе частично катализированной (dd)-реакции. В режиме зажигания такой реакции с помощью термоядерной установки типа ITER (проект 1998 года) можно было бы трансмутировать  $^{107}\text{Pd}$  без изотопного разделения, нарабатываемый в энергетических реакторах типа ВВЭР-1000 суммарной мощностью 15 ГВт(эл.). При осуществлении предварительного изотопного выделения  $^{107}\text{Pd}$  такой термоядерный трансмутатор смог бы обезвреживать его от энергетических реакторов типа ВВЭР-1000 суммарной мощностью 90 ГВт (эл.).

Такую возможность целесообразно иметь в виду, т.к. долгоживущий изотоп  $^{107}\text{Pd}$  испускает мягкое  $\beta$ -излучение (максимальная энергия 35 кэВ), которое не сопровождается  $\gamma$ -радиацией. Поскольку мягкое  $\beta$ -излучение легко задерживается тонким защитным слоем, то радиационная обстановка на установках по изотопному разделению в данном случае может поддерживаться благоприятной для эксплуатации. Следует признать, что радиоактивный палладий или его газообразные соединения, находящиеся внутри разделительных установок, все же будут представлять определенную опасность. Заметим, однако, что при этом в качестве «отвала» может быть получен высокоценный материал, пригодный для практически неограниченного использования в неядерных отраслях промышленности.

### **П.1.8. Обращение с осколочным стронцием (среднеживущий изотоп $^{90}\text{Sr}$ )**

Осколочный стронций содержит два изотопа: радиоактивный  $^{90}\text{Sr}$  ( $T_{1/2} = 28,6$  лет) и стабильный  $^{88}\text{Sr}$ . Радиоактивный  $^{90}\text{Sr}$  подвер-

жен  $\beta$ -распаду, который не сопровождается проникающим  $\gamma$ -излучением и поэтому в настоящее время находит применение в качестве изотопного источника энергии. Этот нуклид обладает чрезвычайно низким сечением захвата нейтронов (сечение в тепловой точке составляет всего 0,014 барн). Так как он сам распадается естественным образом со средним временем жизни 41,3 лет, то его трансмутация могла бы иметь смысл, если бы обеспечила среднее время жизни в нейтронном поле хотя бы на порядок меньше, чем естественный распад. Однако для этого потребовался бы поток тепловых нейтронов плотностью  $\sim 5 \cdot 10^{17}$  нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ , что в настоящее время нереально. Поэтому в отношении осколочного стронция рассматривается временное приповерхностное хранение (300-500 лет), в настоящее время он в ограниченных количествах используется в качестве изотопного источника энергии и ионизирующего излучения.

## П.2. ВЫЖИГАНИЕ МЛАДШИХ АКТИНИДОВ

Наряду с «большими» актинидами (Th, U и Pu), содержащимися в топливе, в процессе облучения в нем накапливаются так называемые «младшие» актиниды: Np, Am, Cm, Bk, Cf и т.д. Содержание младших актинидов (МА) в облученном топливе энергетических реакторов относительно невелико и составляет  $(0,7-2,5) \cdot 10^{-3}$ .

По своим нейтронно-физическим свойствам МА не относятся к хорошо делящимся нуклидам, таким, как  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ , а по химическим свойствам весьма близки к продуктам деления из группы редкоземельных элементов. Поэтому при химической переработке облученного топлива не было стимула их выделять. Исторически сложилось так, что с самого начала работы первых ядерных реакторов при переработке облученного топлива МА оставались с основной массой продуктов деления, составляя РАО высокой удельной активности.

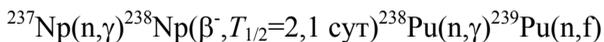
Однако МА являются радиотоксичными нуклидами, отличаются достаточно длительными периодами полураспада, интенсивной генерацией нейтронов спонтанного деления (табл. П.2.1) и во многом определяют уровень остаточного тепловыделения при длительном хранении облученного топливного материала. Если облученное топливо захоранивать без переработки, то после тысячи лет выдержки МА будут определять тепловую нагрузку могильника на длительный срок. Поэтому считается, что предпочтительнее выделять МА из облученного топлива и их утилизировать в ядерных установках.

Таблица П.2.1

**Радиационные характеристики младших актинидов**

Нуклид	$T_{1/2}$ , лет (спонт.дел.)	$T_{1/2}$ , лет ( $\alpha$ -распад)	Выход нейтронов при спонт.дел. нейтр./с·кг	Уд.тепловыделение ( $\alpha$ -распад), Вт/кг
$^{237}\text{Np}$	$1,0 \cdot 10^{18}$	$2,1 \cdot 10^6$	0,1	-----
$^{241}\text{Am}$	$1,1 \cdot 10^{14}$	432	$1,3 \cdot 10^3$	117
$^{243}\text{Am}$	$3,4 \cdot 10^{13}$	7380	$3,8 \cdot 10^3$	6,85
$^{242}\text{Cm}$	$6,5 \cdot 10^6$	0,45	$2,3 \cdot 10^{10}$	113000
$^{244}\text{Cm}$	$1,3 \cdot 10^7$	18,1	$1,1 \cdot 10^{10}$	2800

Реакция радиационного захвата нейтронов не позволяет вывести нуклид из состава МА, которые все подвержены достаточно длительному радиоактивному распаду. Поэтому предпочтительнее использовать реакции деления МА. Вместе с тем, использование последовательности реакций захвата нейтронов также оказывается полезной потому, что приводит рано или поздно к образованию хорошо делящихся нуклидов, которые и претерпевают деление. Например, последовательность реакций при облучении  $^{237}\text{Np}$

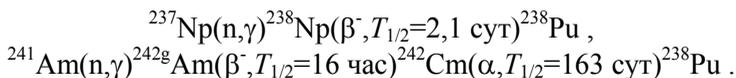


приводит к образованию  $^{239}\text{Pu}$ , который с большой вероятностью претерпевает деление. В этом случае на сжигание  $^{237}\text{Np}$  расходуется повышенное количество нейтронов. Если же исходный МА с достаточно большой вероятностью претерпевает деление, то расход нейтронов не только может быть меньше, а даже, наоборот, появятся избыточные нейтроны. Такие нейтроны могут появиться также и при сжигании  $^{237}\text{Np}$  в высоком потоке тепловых нейтронов вследствие деления короткоживущего изотопа  $^{238}\text{Np}$ . При этом предотвращается рост радиотоксичности облучаемых МА вследствие, главным образом, уменьшения количества накапливаемого  $^{238}\text{Pu}$ .

Однако при решении вопроса о способах утилизации МА нужно учитывать, что их использование связывают также с проблемой нераспространения ядерного оружия и рассматривают как средство повышения защищенности плутония в топливном цикле.

## П.2.1. Потенциальная роль МА в повышении защищенности плутония в топливном цикле

Облучение  $^{237}\text{Np}$  и  $^{241}\text{Am}$  медленными нейтронами приводит к инициированию следующих реакций:



Радионуклид  $^{238}\text{Pu}$  как источник нейтронов спонтанного деления в 2,4 раза интенсивнее, чем  $^{240}\text{Pu}$ . Кроме того, благодаря  $\alpha$ -распаду ( $T_{1/2} = 87,7$  лет) он является интенсивным источником тепла (удельное тепловыделение 570 Вт/кг). Если изотоп  $^{238}\text{Pu}$  добавить к плутонию, то эти факторы затруднят использование такого материала в ядерных взрывных устройствах. Добавление  $^{238}\text{Pu}$  к плутонию приведет к возрастанию нейтронного фона, связанного со спонтанным делением, и к преждевременному развитию цепного процесса при срабатывании ядерного взрывного устройства. Тепловыделение  $\alpha$ -распада затруднит обращение с плутонием заряда, требуя непрерывного отвода тепла. В противном случае это может привести к преждевременному перегреву и разрушению взрывного устройства. В табл. П.2.2 приведены некоторые характеристики оружейного плутония, плутония реакторного состава и, как пример, оружейного плутония с добавлением 30%  $^{238}\text{Pu}$ .

Таблица П.2.2

**Генерация нейтронов спонтанного деления и тепловыделение радиоактивного распада плутония**

Характеристика	Изотопный состав плутония, %		
	Оружейный Pu	Реакторный Pu	Оружейный Pu + 30% $^{238}\text{Pu}$
$^{238}\text{Pu}$	0,01	1,6	30,0
$^{239}\text{Pu}$	93,82	58,0	65,62
$^{240}\text{Pu}$	5,8	22,4	4,12
$^{241}\text{Pu}$	0,35	12,0	0,25
$^{242}\text{Pu}$	0,02	6,0	0,01
Генерация нейтронов спонтанного деления, $10^5$ нейтр./с·кг)	0,6	3,75	8,2
Тепловыделение $\alpha$ -распада, Вт/кг	2,28	13,1	172

Как видно из этой таблицы, при добавлении 30%  $^{238}\text{Pu}$  к оружейному плутонию нейтронный фон возрастает более чем вдвое по сравнению с реакторным плутонием. Тепловыделение распада в материале заряда возрастает в 75 раз по сравнению с оружейным

плутонием и в 13 раз по сравнению с реакторным плутонием. Поскольку нуклид  $^{238}\text{Pu}$  является изотопом плутония, то для его отделения необходимо будет использовать сложную технологию изотопного разделения, причем исходный материал для такой операции будет радиоактивным, что осложнит осуществление разделительного процесса. Дело в том, что  $\alpha$ -частицы радиоактивного распада изотопов Pu, тормозящиеся в газообразном фторидном соединении плутония, будут вызывать разрушение молекул этого соединения. В результате появятся свободный фтор и другие более легкие молекулы с плутонием. Это нарушит обогащательный процесс с выделением «легкой» компоненты с плутонием-238. Кроме того, различие в массах разделяемых изотопов плутония составляет  $239 - 238 = 1$  а.е.м., т.е. в три раза меньше, чем при изотопном разделении урана (изотопы  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  имеют разницу в 3 а.е.м.).

Эти факторы могут сделать более сложным, трудоемким процесс изотопного разделения денатурированного плутония, т.е. плутония со специально введенными добавками таких изотопов, как  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ , по сравнению с обогащением урана. Это, в свою очередь, может сделать непривлекательным такой денатурированный плутоний для использования в ядерных взрывных устройствах. Если же такой плутоний будет находиться в виде диоксида  $\text{PuO}_2$ , как это предусматривается при использовании МОХ-топлива, то за счет ( $\alpha, n$ )-реакции на кислороде генерация нейтронов возрастет еще в 6 раз.

Таким образом, если будет признана целесообразность денатурирования плутония, тогда утилизация МА может осуществляться либо в виде их гомогенной смеси с МОХ-топливом энергетических реакторов, либо при отдельном облучении с накоплением  $^{238}\text{Pu}$ . Однако вышеприведенные соображения относятся к нуклидам  $^{237}\text{Np}$  и  $^{241}\text{Am}$ . В то же время в составе МА присутствуют также  $^{243}\text{Am}$  ( $T_{1/2} = 7380$  лет) и изотопы кюрия (в первую очередь изотоп  $^{244}\text{Cm}$  с периодом полураспада 18,1 года). Изотопы кюрия характеризуются интенсивной генерацией нейтронов спонтанного деления, а изотоп  $^{244}\text{Cm}$ , к тому же, является интенсивным источником тепла  $\alpha$ -распада (2800 Вт/кг). Это настолько интенсивный источник тепла, что даже при содержании его в свежем топливе в количестве 0,5-1% удельное тепловыделение составит 20-30 Вт/кг, что в настоящее время рассматривается как верхний предел внутреннего

тепловыделения, когда еще возможны транспортные операции с топливными сборками.

Таким образом, если утилизация МА будет осуществляться с учетом необходимости обеспечения защищенности плутония, то, по-видимому, потребуется отделять только кюрий. Именно такая фракция МА потребует решения вопроса о способах ее сжигания или выдержки в приповерхностных хранилищах. Количество накапливающегося кюрия и его предшественника  $^{243}\text{Am}$  существенным образом будет зависеть от состава топлива, используемого в энергетических реакторах.

## П.2.2. Накопление МА в энергетических реакторах с урановым и МОХ-топливом

Основным каналом накопления  $^{237}\text{Np}$  при работе легководного реактора на урановом топливе является цепочка реакций



Что касается накопления Am, Cm и других МА, то они образуются при захвате нейтронов накапливающимся плутонием. В таблице П.2.3 приведено накопление МА в легководном реакторе мощностью 1 ГВт(эл.) на урановом и МОХ-топливе.

Таблица П.2.3

**Накопление МА в легководном реакторе мощностью 1 ГВт(эл.) с урановым и МОХ-топливом (выдержка после выгрузки 150 суток)**

Нуклиды МА	Накопление МА, кг/год	
	Урановое топливо	МОХ-топливо
$^{237}\text{Np}$	20,4	15,1
$^{241}\text{Am}$	1,3	6,0
$^{243}\text{Am}$	2,5	21,8
$^{244}\text{Cm}$	0,9	15,6
$^{245}\text{Cm}$	0,06	1,7
Сумма	25,1	60,2

При использовании уранового топлива доминирующая часть накапливаемых МА связана с  $^{237}\text{Np}$ , а содержание  $^{244}\text{Cm}$  и его предшественника  $^{243}\text{Am}$  составляет 14%. Если же в легководном реакторе используется МОХ-топливо, то большая часть МА включает  $^{244}\text{Cm}$  и  $^{243}\text{Am}$  (60%). Следовательно, при переводе легководных реакторов на МОХ-топливо и при замыкании топливного цикла проблема обращения с МА в большей мере сведется к проблеме обращения с кюриевой фракцией, и прежде всего с изотопом  $^{244}\text{Cm}$ .

Как уже отмечалось, в силу интенсивного тепловыделения при  $\alpha$ -распаде  $^{244}\text{Cm}$ , необходимо использовать большое разбавление этого нуклида, т.е. низкую его концентрацию. Если это будет сжигание в реакторах, то следует предусмотреть низкую концентрацию  $^{244}\text{Cm}$  в топливе, если – длительное хранение, то потребуется фрагментирование материала для надежного теплоотвода. При этом необходимо учитывать, что хранящийся материал будет характеризоваться высоким фоном нейтронов спонтанного деления и накоплением гелия в результате  $\alpha$ -распада  $^{244}\text{Cm}$ . Заметим, что объем накапливающегося гелия при нормальных условиях будет в тысячу раз больше, чем объем кюрия.

В результате длительной выдержки (несколько сотен лет) практически весь  $^{244}\text{Cm}$  распадется до  $^{240}\text{Pu}$ . И здесь появится проблема: что делать с накопившимся  $^{240}\text{Pu}$ . Если его продолжать выдерживать, то до практически полного распада ( $T_{1/2} = 6450$  лет) потребуется еще около сотни тысяч лет. Если же его сжигать в реакторах, то сначала придется его извлечь из материала, где он образовался и где его концентрация низка.

До настоящего времени однозначного ответа, что делать с кюриевой фракцией, еще не выработано. Ниже будет рассмотрена концепция ядерной установки для эффективного сжигания этой фракции.

### **П.2.3. Особенности ядерно-физических свойств МА, важные для их сжигания в ядерных установках**

Ядерно-физические свойства МА заметно отличаются от таковых для основных нуклидов, используемых в качестве топлива в ядерных реакторах. В первую очередь речь идет о характере зави-

симости сечения деления от энергии нейтронов, а также и доли запаздывающих нейтронов, появляющихся при их делении. Поэтому можно ожидать, что эти особенности повлияют на характеристики ядерной установки, если в нее в качестве топлива будут загружены МА.

### П.2.3.1. Сечения деления и захвата нейтронов нуклидами МА

На рис. П.2.1 приведены зависимости сечения деления (а) и сечения захвата (б) для некоторых нуклидов МА. Можно видеть, что отличительной чертой здесь является то, что в области энергий нейтронов ниже 1 МэВ значение сечения деления заметно снижается при уменьшении энергии.

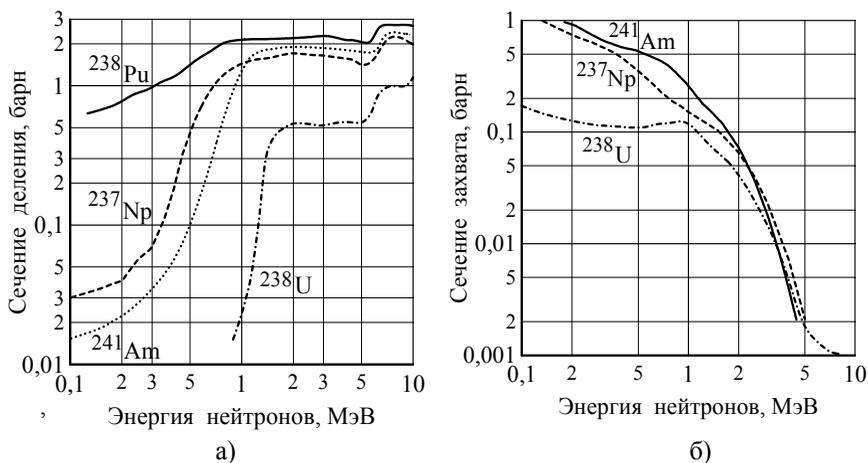


Рис. П.2.1. Зависимость сечения деления (а) и сечения захвата (б) от энергии нейтронов для нуклидов МА

Отсюда вывод – для эффективного выжигания этих нуклидов можно использовать быстрые реакторы, а также электроядерные и термоядерные установки, в blankets которых формируется жесткий спектр нейтронов. Наиболее продвинутыми и промышленно освоенными, безусловно, являются быстрые реакторы. Однако ха-

рактеристики безопасности этих реакторов резко ухудшаются при загрузке в них МА.

### П.2.3.2. О запаздывающих нейтронах, появляющихся при делении МА

Доля запаздывающих нейтронов важна с точки зрения безопасности и управляемости ядерных реакторов. При делении нуклидов МА она невелика и менее известна, чем для традиционно используемых делящихся материалов –  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . Некоторые данные по выходу запаздывающих нейтронов представлены в табл. П.2.4.

Таблица П.2.4

**Выход запаздывающих нейтронов при делении МА, тория, урана и плутония**

Нуклид	Выход запаздывающих нейтронов (на один нейтрон деления)	
	Деление тепловыми нейтронами	Деление быстрыми нейтронами
$^{232}\text{Th}$	-	0,024
$^{233}\text{U}$	0,0038	0,0033
$^{235}\text{U}$	0,0065	0,0065
$^{238}\text{U}$	-	0,018
$^{239}\text{Pu}$	0,0026	0,0026
$^{237}\text{Np}$	-	0,0045
$^{241}\text{Am}$	-	0,0015
$^{243}\text{Am}$	-	0,0023
$^{244}\text{Cm}$	-	0,0012
$^{245}\text{Cm}$	0,0018	-

Как видно из этой таблицы, доля запаздывающих нейтронов при делении МА меньше, чем при делении  $^{239}\text{Pu}$  (за исключением  $^{237}\text{Np}$ ). Кроме того, как известно, спектр запаздывающих нейтронов

мягче спектра мгновенных нейтронов деления, и поэтому запаздывающие нейтроны будут оказывать меньшее влияние на развитие цепной реакции деления в зоне с загруженными МА. Иными словами, эффективная доля запаздывающих нейтронов в этом случае будет еще ниже. Ослабить этот недостаток можно добавлением в МА некоторого количества традиционных делящихся нуклидов с повышенной долей запаздывающих нейтронов, например  $^{235}\text{U}$ . Однако скорость сжигания МА в таком реакторе существенно снизится.

#### **П.2.4. О физике быстрого реактора-выжигателя МА**

По своим физическим характеристикам такой реактор заметно отличается от энергетических реакторов на традиционных видах топлива.

Критичность реактора. В составе МА большая часть нуклидов характеризуется тем, что сечение деления существенно уменьшается при энергии ниже 0,5-1 МэВ. Это означает, что в такой активной зоне спектр критического реактора должен быть очень жесткий даже по сравнению со спектром нейтронов энергетических быстрых реакторов. Введение разбавителей в активную зону может заметно ухудшить размножающие свойства МА.

Эффекты реактивности. Существует много причин, обуславливающих изменение критичности реактора. Среди них важное место занимает эффект реактивности при изменении количества теплоносителя, например из-за изменения его температуры.

Как уже отмечалось, особенностью реактора-выжигателя МА является увеличение сечения деления с увеличением энергии нейтронов в области 0,5–1 МэВ. Это означает, что при снижении содержания теплоносителя, например его плотности при перегреве, спектр нейтронов будет становиться более жестким. В таком спектре будут улучшаться размножающие свойства активной зоны и повышаться  $K_{эф}$  реактора. Иными словами, при разогреве теплоносителя такой реактор может разгоняться (положительный эффект реактивности по теплоносителю), если, конечно, отсутствуют конкурирующие физические процессы, обуславливающие снижение

реактивности. Таким конкурирующим физическим процессом может быть утечка нейтронов из активной зоны в экран, где ценность нейтронов по отношению к цепной реакции мала. Поэтому в таком реакторе характерные размеры активной зоны или топливных областей должны быть выбраны небольшими, чтобы превалировал эффект, связанный с утечкой нейтронов.

Это важно еще и потому, что в системах с жестким спектром нейтронов мало влияние на реактивность эффекта Доплера (уширение резонансов при увеличении температуры), так как плотность потока нейтронов в области резонансов мала. Этот быстрый отрицательный эффект реактивности играет важную роль в безопасности энергетических реакторов.

Другая важная особенность, связанная с характером зависимости сечения деления от энергии нейтронов, состоит в том, что при введении замедлителя в активную зону ее критичность падает. Эта ситуация противоположная той, что наблюдается в существующих реакторах на быстрых нейтронах. В них тщательным образом следят, чтобы замедлитель ни в коем случае не попал в активную зону, в противном случае это может вызвать всплеск реактивности и серьезные последствия. А в реакторе-выжигателе МА даже аварийная защита может быть выполнена из материала, содержащего замедлитель. В существующих быстрых реакторах карбид бора  $B_4C$  используется для прерывания цепной реакции вследствие захвата нейтронов изотопом  $^{10}B$ . В реакторе с МА-топливом реакция будет прекращаться не столько благодаря захвату нейтронов в  $^{10}B$ , сколько за счет замедления на всех легких элементах в составе карбида бора. Поэтому предпочтительнее выполнить экран вокруг активной зоны из материалов, содержащих замедлитель, что будет способствовать повышению безопасности реактора, а также увеличению эффективности трансмутации продуктов деления, размещенных в экране. Эффективная трансмутация может также осуществляться и в устройствах типа «нейтронных ловушек», размещенных в активной зоне.

Таким образом, для безопасности быстрого реактора-выжигателя МА, нужно, во-первых, чтобы он имел весьма малые размеры и, во-вторых, содержание МА в топливе должно быть ограничен-

ным. Последнее необходимо для сохранения достаточно большой эффективной доли запаздывающих нейтронов. Исследования показали, что этим требованиям можно удовлетворить, если в таком реакторе доля делений на МА не превысит 30–40%, а размеры активной зоны будут соответствовать мощности в несколько сотен МВт.

Иными словами, нейтронно-физические свойства МА не позволяют осуществить безопасное их сжигание в критическом быстром реакторе, содержащем только МА в качестве топливной загрузки. Во избежание неблагоприятного влияния нейтронно-физических свойств МА на безопасность быстрого реактора в настоящее время рассматривается подкритический режим сжигания МА.

## II.2.5. Подкритические системы для сжигания МА

В качестве таких систем могут выступать ЭЛЯУ, в подкритическом blankets которых размещаются МА, или термоядерные установки также с подкритическим blankets. Общим для этих систем является следующее: во-первых, подкритический blankets с МА, ни при каких условиях не достигающий критичности, и, во-вторых, мощный источник нейтронов для поддержания цепной реакции.

В настоящее время считается, что слабоподкритический blankets, характеризующийся величиной эффективного коэффициента размножения  $K_{эф} \cong 0,95$ , достаточно безопасен с точки зрения реактивных аварий. Наиболее продвинутым направлением в исследованиях является ЭЛЯУ со слабоподкритическим blankets, подпитываемым нейтронами, рождающимися в мишени в результате каскадного процесса при бомбардировке ее ускоренными протонами.

Оценим мощность протонного ускорителя, необходимую для поддержания цепной реакции в таком blankets. Для этого запишем в квазикритическом приближении интегральный баланс процессов в таком blankets:

$$-L - \Sigma_{cf} \cdot \Phi \cdot V + \frac{1}{K_{эф}} \cdot \nu_f \cdot \Sigma_f \cdot \Phi \cdot V = 0,$$

где  $L$  – утечка нейтронов из blankets;  $\Sigma_{cf} \cdot \Phi \cdot V$  – поглощение нейтронов благодаря захвату и делению;  $\nu_f \cdot \Sigma_f \cdot \Phi \cdot V$  – рождение нейтронов в объеме blankets;  $\Phi$  – средняя плотность потока нейтронов blankets.

Так как blanket подкритический, то делением на  $K_{эф} < 1$  источника нейтронов деления в этом уравнении обеспечивается стационарное поддержание цепной реакции. Представим член источника нейтронов в виде двух слагаемых:

$$\frac{1}{K_{эф}} \cdot \nu_f \cdot \Sigma_f \cdot \Phi \cdot V = \nu_f \cdot \Sigma_f \cdot \Phi \cdot V + \frac{1 - K_{эф}}{K_{эф}} \cdot \nu_f \cdot \Sigma_f \cdot \Phi \cdot V .$$

Тогда уравнение баланса может быть переписано в виде

$$-L - \Sigma_{cf} \cdot \Phi \cdot V + \nu_f \cdot \Sigma_f \cdot \Phi \cdot V + \frac{1 - K_{эф}}{K_{эф}} \cdot \nu_f \cdot \Sigma_f \cdot \Phi \cdot V = 0 .$$

Первые три слагаемых – это скорости реальных процессов, происходящих в blankets, а последнее слагаемое в левой части уравнения имеет смысл тех дополнительных нейтронов, которые обеспечивают поддержание стационарного баланса процессов в подкритическом blankets. То есть – это слагаемое в определенном смысле и определяет источник нейтронов ( $J_{ист}$ ), поступающих в blankets из мишени:

$$J_{ист} = \frac{1 - K_{эф}}{K_{эф}} \cdot \nu_f \cdot \Sigma_f \cdot \Phi \cdot V .$$

Величина  $(\Sigma_f \cdot \Phi \cdot V)$  является скоростью делений в blankets, что пропорционально мощности blankets. Поэтому соотношение между интенсивностью источника нейтронов в мишени и скоростью делений в blankets выглядит следующим образом:

$$\frac{J_{\text{ист}}}{\Sigma_f \cdot \Phi \cdot V} = \frac{1 - K_{\text{эф}}}{K_{\text{эф}}} \cdot \nu_f \cdot$$

Зная выход нейтронов из мишени в расчете на один ускоренный протон  $C_n$ , нетрудно получить оценку соотношения между мощностью пучка ускорителя  $W_{\text{уск.}}$  и мощностью, выделяющейся в blankets  $W_{\text{бл.}}$ :

$$\begin{aligned} \frac{W_{\text{уск.}}}{W_{\text{бл.}}} &= \frac{e_p}{e_f \cdot \eta_{th}} \cdot \frac{1}{\tilde{N}n} \cdot \frac{J_{\text{ист}}}{\Sigma_f \cdot \Phi \cdot V} = \\ &= \frac{e_p}{e_f \cdot \eta_{th}} \cdot \frac{1}{\tilde{N}n} \cdot \frac{1 - K_{\text{эф}}}{K_{\text{эф}}} \cdot \nu_f \cdot \end{aligned}$$

Рассмотрим в качестве примера ЭЛЯУ, в blankets которой сжигаются МА от энергетических реакторов, а мощность пучка ускоренных протонов составляет 100 МВт. Такого порядка уровень энерговыделения в мишени рассматривается в качестве приемлемого для организации теплоотвода от нее. Тогда для подкритического blankets с  $K_{\text{эф}} \cong 0,95$  и  $\nu_f = 2,8$  его мощность  $W_{\text{бл.}} \cong \cong 1200$  МВт(эл.). Как было отмечено выше, при работе одного легководного реактора мощностью 1 ГВт(эл.) на урановом топливе ежегодно выгружается около 25 кг МА. Тогда в одной ЭЛЯУ с подкритическим blankets мощностью около 1200 МВт(эл.) можно будет сжигать МА, которые накапливаются при работе 48 легководных реакторов. Если же легководные реакторы будут переведены на МОХ-топливо с накоплением  $\sim 60$  кгМА/(ГВт(эл.)·год), то в одной ЭЛЯУ можно было бы сжигать МА от легководных реакторов суммарной мощностью 20 ГВт(эл.).

Однако нужно заметить, что в этом случае сжигаемые МА будут в основном содержать кюриеую фракцию, что потребует использования необычно сильно разбавленного топлива.

#### Пример концепции blankets для сжигания кюриеовой фракции МА

В силу значительного тепловыделения при  $\alpha$ -распаде  $^{244}\text{Cm}$  затруднительно в концентрированном виде использовать топливо на

основе кюрия, т.е. необходимо сильно разбавленное топливо. Поэтому приемлемым может оказаться топливо на основе микротвэлов, разработанных для высокотемпературных газографитовых реакторов. Микрочастицы топлива диспергированы в графитовой матрице, твэл представляет собой, например, графитовый шар, центральной частью которого является графитовая матрица с диспергированными в ней микротвэлами.

Типичное соотношение между количеством ядер графита и ядер тяжелых нуклидов в шаровых твэлах высокотемпературных газографитовых реакторов составляет 250–400, что соответствует атомной доле кюрия 0,0025–0,004. Типичное значение диаметра шарового элемента 6 см. Если предположить, что атомная доля  $^{244}\text{Cm}$  в таком твэле равна 0,0025, то тепловыделение его  $\alpha$ -распада в отдельном шаровом твэле составит  $\sim 30$  Вт. Такое выделение тепла не может служить препятствием при изготовлении, особенно если учесть, что технология изготовления графитовых твэлов с микротопливом по сути предполагает выполнение операций при высоких температурах. Бланкет представляет собой засыпку из тысяч таких твэлов.

Среди изотопов кюрия хорошо делящимся является изотоп  $^{245}\text{Cm}$ , размножающие свойства которого превосходят таковые для  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . В тепловой точке ( $E_n = 0,025$  эВ)  $^{245}\text{Cm}$  характеризуется следующими свойствами:

$$\begin{aligned} \sigma_f &= 2030 \text{ барн}, & \sigma_c &= 350 \text{ барн}, & \alpha &= \sigma_c / \sigma_f = 0,173, \\ \nu_f &= 3,82, & \nu_{\text{эф}} &= 3,25. \end{aligned}$$

Эти свойства заметно лучше, чем соответствующие свойства  $^{239}\text{Pu}$  в спектре нейтронов быстрого реактора. Поэтому теоретически на тепловых нейтронах можно было бы осуществлять бридинг кюриевого топлива, если бы в природе существовали его запасы.

Доля запаздывающих нейтронов при делении  $^{245}\text{Cm}$  в 1,5 раза меньше, чем для  $^{239}\text{Pu}$  (см. таблицу П.2.4). Это значит, что создание критического реактора на кюриии может столкнуться с трудностью обеспечения его безопасности. Однако пока вопрос о физике активных зон на кюриевом топливе не исследован.

В силу указанных обстоятельств использование подкритической системы, например, в виде ЭЛЯУ с бланкетом для сжигания кюрия было бы радикальным средством для исключения любых неблагоприятных эффектов реактивности.

Для надежного отвода тепла радиоактивного распада  $^{244}\text{Cm}$ , которое будет постоянно выделяться, бланкет ЭЛЯУ может представлять собой баковую конструкцию, заполненную, например, расплавленным свинцом. Причем в центральной части свинец используется как материал мишени, где генерируются нейтроны для подсветки бланкета, а собственно бланкет, окружающий мишень, содержит засыпку графитовых твэлов с кюриевым топливом, погруженных в расплавленный свинец, который выполняет роль теплоносителя. Не исключается и применение цилиндрических графитовых элементов, содержащих микрочастицы кюриевого топлива.

В легководных реакторах на МОХ-топливе накопление кюрия может достигать 40 кг/(ГВт(эл.)·год) с учетом превращения  $^{243}\text{Am}$  в  $^{244}\text{Cm}$  путем захвата нейтронов. Тогда в одной ЭЛЯУ с бланкетом мощностью 1200 МВт(эл.) мог бы сжигаться кюрий, накапливаемый при работе легководных реакторов суммарной мощностью 30 ГВт(эл.).

### П.3. ОБ УМЕНЬШЕНИИ АКТИВАЦИИ КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ, ПРИМЕНЯЕМЫХ В ЯЭУ

Наряду с накоплением продуктов деления в ЯЭУ под воздействием нейтронного облучения происходит также активация используемых конструкционных материалов. Так, например, в легководных реакторах – это циркониевые сплавы, используемые в качестве материала оболочек твэлов и чехлов ТВС, в быстрых реакторах – нержавеющие стали. В рассматриваемых перспективных ЭЛЯУ наряду с активацией конструкционных материалов интенсивной бомбардировке как первичного пучка частиц ускорителя, так и частиц, рождающихся в результате внутриядерного и межъядерного каскада, активируется материал мишени. В установках термоядерного синтеза – это активация материала первой стенки в результате бомбардировки жесткими термоядерными нейтронами.

Активированные конструкционные материалы могут содержать как долгоживущие радионуклиды, так и сравнительно короткоживущие, которые распадутся после недолгой выдержки. Что касается долгоживущих радионуклидов, то, вообще говоря, их обезвреживание путем трансмутации нейтронами потребует дополнительного и немалого расхода нейтронов (да к тому же возможно «высокопоточных» нейтронов).

В то же время в отношении конструкционных материалов, используемых в ЯЭУ, существует и иная возможность уменьшения наведенной активности наряду с применением новых малоактивируемых материалов. Эта возможность связана с формированием изотопного состава конструкционных материалов перед их использованием в ЯЭУ. Очевидное преимущество такого подхода связано с тем, что при этом операция изотопного разделения будет осуществляться в отношении стабильных (а не радиоактивных) нуклидов, что много проще и безопаснее.

Ниже рассматриваются два примера: предварительное обогащение природного циркония перед его использованием в легководных реакторах и формирование изотопного состава компонентов стали НТ-9 для снижения ее активации в бланкете термоядерной установки.

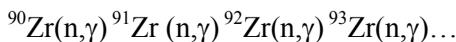
### Обращение с облученными конструкционными материалами

Здесь имеются в виду в первую очередь конструкционные материалы (КМ), используемые в активных зонах энергетических ядерных реакторов. В настоящее время переработка ОЯТ начинается с отделения КМ, которые затем спрессовываются и захораниваются. Применительно к крупномасштабной ЯЭ рассматривается возможность рециклирования КМ в топливном цикле. При этом, конечно, усложнятся операции по переплавке активированных КМ и коррекции их элементного состава. Но будут достигаться две важных цели: во-первых, удержание радионуклидов КМ в топливном цикле ЯЭ, и, во-вторых, экономия в расходе КМ.

Снижение активации КМ может быть достигнуто изменением их элементного состава за счет исключения легкоактивируемых элементов. Однако возможности такого подхода ограничены, т.к. изменение элементного состава может привести к ухудшению прочностных или нейтронно-физических свойств КМ. Например, в энергетических легководных реакторах цирконий является практически единственным широко используемым элементом КМ. Так как при облучении он становится радиоактивным, то отказ от его использования означал бы переход на другой конструкционный материал. Поэтому в настоящее время считается, что более перспективным или единственно возможным способом решения этой проблемы могло бы оказаться изменение не элементного, а изотопного состава некоторых КМ.

Долгоживущая активность облученного циркония связана только с радионуклидом  $^{93}\text{Zr}$  ( $T_{1/2} = 1,5 \cdot 10^6$  лет), который является  $\beta$ -излучателем, практически не сопровождающимся испусканием  $\gamma$ -квантов (если осуществлять периодическую очистку от  $^{93}\text{Nb}$  – дочернего продукта распада). Российские нормы радиационной безопасности допускают применение твердых  $\beta$ -эмиттеров с удельной активностью не выше 2 мКи/кг без каких-либо ограничений. Расчетные оценки показывают, что активность облученного циркония (3 года в реакторе плюс 5 лет выдержки)  $\sim 480$  мКи/кг, т.е. более чем в 200 раз выше допустимой нормы.

Радионуклид  $^{93}\text{Zr}$  образуется (и выгорает) в результате захвата нейтронов стабильными изотопами  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{91}\text{Zr}$  и  $^{92}\text{Zr}$  в соответствии с цепочкой реакций



Однако если обогатить природный цирконий изотопом  $^{90}\text{Zr}$  с соответствующим снижением содержания непосредственных предшественников  $^{93}\text{Zr}$ , изотопов  $^{91}\text{Zr}$  и  $^{92}\text{Zr}$ , то накопление  $^{93}\text{Zr}$  может быть существенно снижено. Так, если природный цирконий, содержащий 51%  $^{90}\text{Zr}$ , сделать на 100% состоящим из этого изотопа, 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 рециклировать с целью использования в качестве КМ легководных реакторов. Если же природный цирконий обогатить изотопом  $^{90}\text{Zr}$  до 99%, то после облучения его удельная активность будет в пределах допустимых норм, т.е. такой цирконий можно было бы один раз использовать в цикле облучения ядерного реактора, а затем, например, передать в неядерные отрасли промышленности для практически неограниченного применения.

Другой пример подхода к снижению активации КМ за счет изменения изотопного состава их элементов касается возможности снижения активации ферритной нержавеющей стали марки НТ-9 при использовании ее в качестве КМ термоядерного реактора. Расчетные оценки показали, что долгоживущая активность стали на 99% обусловлена радионуклидами  $^{93}\text{Mo}$  ( $T_{1/2}=3,5 \cdot 10^3$  лет),  $^{94}\text{Nb}$  ( $T_{1/2}=2,0 \cdot 10^4$  лет),  $^{99}\text{Tc}$  ( $T_{1/2}=2,1 \cdot 10^5$  лет), которые являются продуктами нейтронных реакций на стабильных изотопах молибдена  $^{92}\text{Mo}$ ,  $^{94}\text{Mo}$ ,  $^{98}\text{Mo}$ ,  $^{100}\text{Mo}$ . Нержавеющая сталь марки НТ-9 содержит лишь 1% природного молибдена, но именно с ним, в основном, и связана ее активность. Для снижения этой активности можно изменить изотопный состав молибдена с помощью технологии плазменного обогащения, а именно: снизить содержание изотопов-предшественников радионуклидов:  $^{92}\text{Mo}$  и  $^{94}\text{Mo}$  в 25 раз,  $^{98}\text{Mo}$  и  $^{100}\text{Mo}$  в 15 раз. В результате содержание изотопов-предшественников снизится с 57% (в природном молибдене) до 7% (в обогащенном). Соответственно, примерно на порядок снижается активность образующихся радионуклидов, а облученная сталь переходит в более низкую категорию РАО и становится пригодной для приповерхностного хранения. По-видимому, аналогичный подход может быть использован и для снижения активации нержавеющей сталей, являющихся КМ быстрых реакторов.

В целом нужно признать, что в настоящее время исследования по рециклу КМ, по подбору их элементных и изотопных составов находятся еще в самом начале.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Физические величины: Справочник/Под ред. Григорьева И.С., Мейлихова Е.З. М.: Энергоатомиздат. 1991.
2. Синев Н.М. Экономика ядерной энергетики. М.: Энергоатомиздат, 1987.
3. Адамов Е.О., Ганев И.Х., Лопаткин А.В., Муратов В.Г., Орлов В.В. Трансмутационный топливный цикл в крупномасштабной ядерной энергетике России. М.: ГУП НИКИЭТ, 1999.
4. Апсэ В.А., Синцов А.Е., Шмелев А.Н., Куликов Г.Г., Саито М., Артисюк В.В. Радиоактивные отходы: пути обезвреживания // Инженерная физика. 2001. №4.
5. CURE: Clean Use of Reactor Energy. WHP-EP-0268, USA, May 1990.
6. Пшакин Г.М., Гераскин Н.И., Апсэ В.А. и др. Ядерное нераспространение: Учебное пособие. М.: МИФИ, 2004.
7. Апсэ В.А., Шмелев А.Н. Основы безопасного обращения с радиоактивными отходами: Учебное пособие. М.: МИФИ, 2006.