

УДК 539.125.5

ФИЗИЧЕСКОЕ ОБОСНОВАНИЕ И МОДЕЛИРОВАНИЕ КОНСТРУКЦИИ УСТАНОВКИ ДЛЯ ТРАНСМУТАЦИИ ОТДЕЛЬНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ РАО С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ТЕРМОЯДЕРНЫХ НЕЙТРОНОВ

Е.В. Рудычев, Р.П. Слабоспицкий, М.А. Хажмурадов

Національний Науковий Центр «Харківський Фізико-техніческий інститут»

ул. Академическая, 1, Харьков, Украина, 61108. Тел. (057)335-68-46

e-mail: khazhm@kipt.kharkov.ua

Поступила в редакцию 20 августа 2008 г.

Рассматриваются два варианта системы трансмутации радиоактивных отходов (РАО) с помощью термоядерных нейтронов. В одном варианте трансуранные элементы и продукты деления не отделены друг от друга, в другом – облучаются раздельно. Проанализированы преимущества и недостатки каждого из вариантов. Выполнено моделирование систем трансмутации РАО. Проанализирована эффективность трансмутации РАО для каждого из вариантов. Подготовлено физическое обоснование для схемы трансмутации РАО термоядерными нейтронами.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: отработанное ядерное топливо (ОЯТ), трансмутация, РАО, математическое моделирование, метод Монте-Карло

К 2010 г. из мирового парка энергетических ядерных реакторов общей мощностью около 400 ГВт должно быть удалено более 300 тыс. т отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Состав и количество ядерных отходов, наработанных в реакторах Украины, приведены в таблице 1. В России количество накопившихся к 2003 году ядерных отходов составляет 8740 т ($1,739 \times 10^{20}$ Бк). В таблице 2 приведены сведения о составе и характеристиках долгоживущих продуктов деления LWR (ВВЭР) реактора после 40 лет работы.

Таблица 1. Состав и количество ядерных отходов, наработанных в реакторах Украины

| Элемент | Содержание, % | Количество за год, т | Количество за 40 лет, т |
|------------------|---------------|----------------------|-------------------------|
| Уран | 94,771 | 264,536 | 10581,420 |
| Нептуний | 0,059 | 0,165 | 6,165 |
| Плутоний | 0,951 | 2,663 | 106,512 |
| Америций | 0,092 | 0,257 | 10,304 |
| Кюрий | 0,00217 | 0,006 | 0,243 |
| Продукты деления | 4,124 | 11,547 | 461,888 |

Таблица 2. Состав и характеристики долгоживущих продуктов деления стандартного LWR после 40 лет работы

| Элемент | Нач. масса, Кг | Период полураспада, лет | I _{рез} , барн | Транс-мут. элемент | Период полураспада | Кон. элемент | Активность, Ки | Объем захор., м ³ |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------|--------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------|------------------------------|
| ⁹⁹ Tc | 843 | $2,11 \cdot 10^5$ | 310 | ¹⁰⁰ Tc | 15 с | ¹⁰⁰ Ru | 14455 | 48181 |
| ¹²⁹ I ¹²⁷ I | 196,0 59,4 | $1,57 \cdot 10^7$ Стаб. | 26,5 149 | ¹³⁰ I ¹²⁸ I | 12,36 ч. 25 мин. | ¹³⁰ Xe ¹²⁸ Xe | 34,7 | 4327 |
| ⁹³ Zr ⁹⁰ Zr ⁹¹ Zr ⁹² Zr ⁹⁴ Zr ⁹⁶ Zr | 810,4 257,8 670,4 724,6 838,4 896,8 | $1,53 \cdot 10^6$ Стаб. Стаб. Стаб. Стаб. Стаб. | 15,2 0,17 6,8 0,68 15,4 5,8 | ⁹⁴ Zr ⁹¹ Zr ⁹² Zr ⁹³ Zr ⁹⁵ Zr ⁹⁷ Zr | Стаб. Стаб. Стаб. $1,5 \cdot 10^6$ г. 64,02 дн. 16,9 ч. | ⁹⁴ Zr ⁹¹ Zr ⁹² Zr ⁹⁴ Zr ⁹⁵ Mo ⁹⁷ Mo | 2040 | 583 |
| ¹³⁵ Cs ¹³³ Cs ¹³⁷ Cs | 442,2 1228 832,2 | $2,3 \cdot 10^6$ Стаб. 30,1 | 60,2 393 0,616 | ¹³⁶ Cs ¹³⁴ Cs ¹³⁸ Cs | 13,2 дн. 2,06 г. 32,2 мин. | ¹³⁶ Ba ¹³⁴ Ba ¹³⁸ Ba | 510,1 | 510 |
| ¹²⁶ Sn | 29,48 | $1,0 \cdot 10^5$ | 0,139 | ¹²⁷ Sn | 2,1 ч. | ¹²⁷ I | 838,1 | 239 |
| ⁷⁹ Se | 6,57 | $6,5 \cdot 10^4$ | 56 | ⁸⁰ Se | Стаб. | ⁸⁰ Se | 458,6 | 131 |

В настоящее время в ряде стран мира (Россия, Франция и др.) разрабатываются интенсивные источники термоядерных нейтронов с использованием реакциидейтерий + тритий (ДТ), которые могут быть использованы для трансмутации трансурановых элементов (ТРУ) и продуктов деления (ПД). Трансурановые элементы и продукты деления имеют большие периоды полураспада (десятки и сотни лет) и, безусловно, перед захоронением их необходимо трансмутировать, т.е. перевести в короткоживущие или в стабильные изотопы. Трансмутация является крайне актуальной проблемой для Украины [1-6].

Цель работы - исследование трансмутации РАО термоядерными нейтронами методами математического моделирования. Анализ полученных результатов и оптимизация вариантов трансмутации для максимальной эффективной трансмутации трансурановых элементов и продуктов деления.

КОНЦЕПЦИЯ ТРАНСМУТАЦИИ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Рассматриваются два варианта схемы трансмутации радиоактивных отходов с помощью термоядерных нейтронов. В одном – трансурановые элементы и продукты деления не отделены друг от друга, в другом варианте облучаются раздельно. То есть внешними нейтронами облучаются только трансурановые элементы, а продукты деления облучаются спектром нейтронов, прошедших через ТРУ (рис. 1).

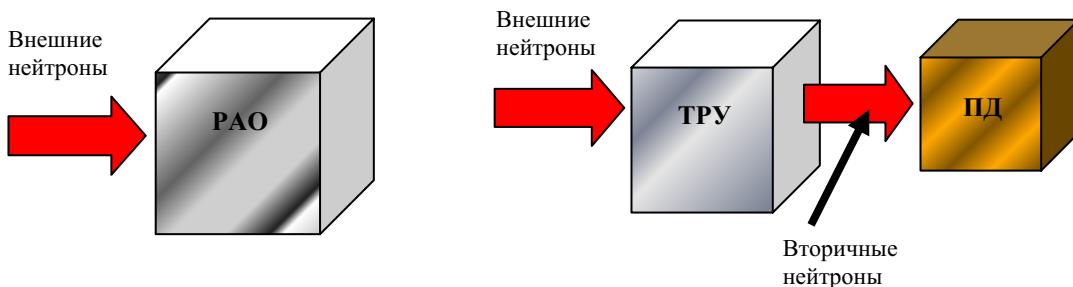


Рис. 1. Основные варианты концепции трансмутации РАО внешними нейтронами

МЕТОДИКА МОДЕЛИРОВАНИЯ ПРОЦЕССОВ ТРАНСМУТАЦИИ

При проведении моделирования процессов трансмутации и активации различных элементов одной из главных задач является нахождение потока частиц, индуцирующих трансмутационные или активационные процессы. К сожалению, современные действующие и проектируемые установки для трансмутации и активации являются сложными трехмерными объектами, чаще всего с сильно гетерогенной структурой (аппаратура, элементы конструкции, различные радиоактивные материалы, которые неравномерно распределены по объему установки). Таким образом, аналитических или численных методов может быть недостаточно для определения потоков частиц, индуцирующих интересующие нас процессы. Поэтому для решения данной задачи необходимо использовать прямое моделирование с использованием метода Монте-Карло. В качестве инструмента для моделирования были выбраны программные коды типа GEANT4 и MCNPX, которые обеспечивают адекватное моделирование всех физических процессов и имеют возможность реализаций реальных трехмерных геометрий объектов исследований практически любой сложности [7-8].

В данной работе рассматривается физическое обоснование схемы трансмутации РАО, то есть фактически концептуальный проект без детального моделирования готовых конструкторских решений установок. Исходя из этого, была выбрана упрощенная геометрическая модель установки с учетом нескольких допущений:

- распределение материалов по геометрическим элементам установки является гомогенным;
- все геометрические элементы установки представляют собой цилиндры различных материалов.

При оптимизации установки трансмутации РАО моделирование потоков нейтронов проводится методом Монте-Карло в реальном трехмерном пространстве с учетом всех физических процессов, которые возможны в материале при облучении внешним источником нейтронов. Поэтому на первом этапе необходимо определить граничные объемы всех элементов для проведения моделирования. Критерием отбора является распределение потока нейтронов в объеме материала. На рис. 2 приведены результаты моделирования распределения потока нейтронов в ТРУ (в виде твердого раствора следующих изотопов ^{237}Np – 44,5%, ^{241}Am – 48,6%, ^{243}Am – 6,9%) для случая цилиндрического пучка нейтронов с энергией 14 МэВ и диаметром пучка 6,9 см.

Из расчетов видно, что 99 % потока нейтронов лежит в области ограниченной радиусом 25 см. Таким образом, при варьировании толщины материала, ограничение материалов радиусом 25 см не приводит к существенному изменению потоков нейтронов. Естественно, что при моделировании реальной установки для трансмутации РАО, будут учитываться вариации конструкторских параметров.

Таким образом, в дальнейшем все расчеты и моделирование проводились в объемах ограниченных радиально 25 см.

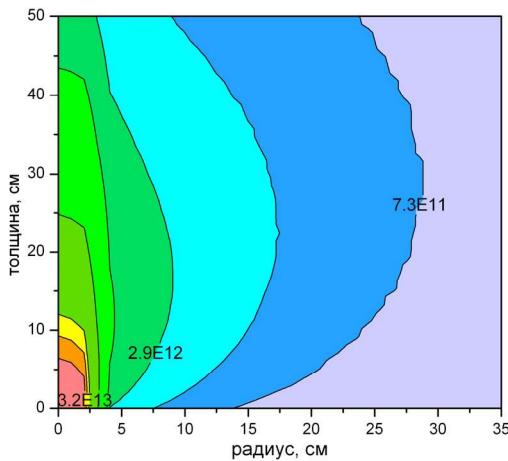


Рис. 2. Распределение потока нейтронов при облучении ТРУ 14 МэВ нейтронами:
интегральный поток – 1×10^{15} нейтронов в секунду, диаметр пучка – 6,9 см

ФИЗИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ ТРАНСМУТАЦИИ

Процедуру трансмутации элементов можно разделить на две основные группы: трансмутация ядер трансурановых элементов; трансмутация ядер продуктов деления РАО.

Трансурановые элементы

Трансмутация ядер трансурановых элементов осуществляется путем реакции деления (n,f) на пучках нейтронов [9]. На рис. 3 приведены сечения деления (σ_f) для плутония и младших актинидов (^{237}Np , ^{241}Am , ^{244}Cm) в зависимости от энергии нейтронов, а на рис. 4 приведены сечения захвата для младших актинидов.

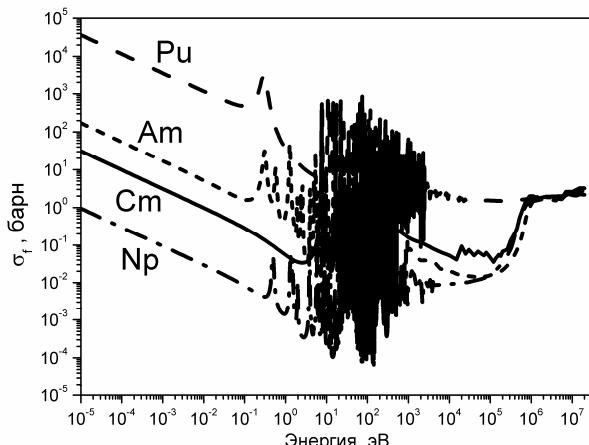


Рис. 3. Сечения деления (σ_f) для плутония (^{239}Pu) и младших актинидов (^{237}Np , ^{241}Am , ^{244}Cm),

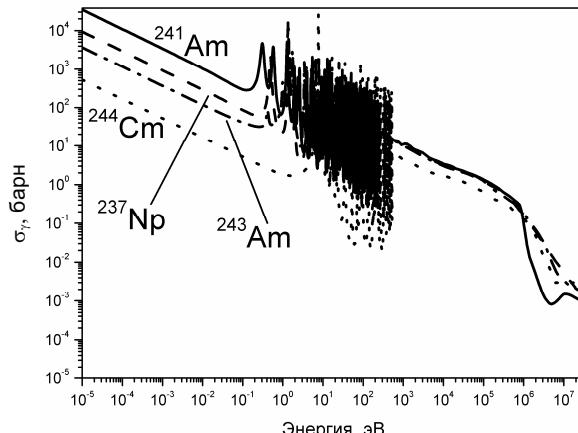


Рис.4. Сечения захвата (σ_γ) для младших актинидов

Графики построены на основании баз данных Брукхевенской Национальной Лаборатории и Международного Агентства по Атомной Энергии (МАГАТЭ) [10]. Из приведенных зависимостей видно, что сечения деления при энергиях нейтронов 1÷15 МэВ имеют заметную величину (несколько барн), затем с замедлением нейтронов несколько уменьшаются, а при энергиях нейтронов меньше нескольких кэВ вновь сильно возрастают и наблюдается резонансный захват нейтронов. Следовательно, трансурановые элементы можно трансмутировать как при облучении их быстрыми нейтронами, в частности термоядерными нейтронами с энергией 14 МэВ из реакциидейтерий + тритий, так и нейтронами, замедленными до резонансных энергий.

Продукты деления

Как видно из таблиц 1 и 2 продукты деления вносят заметный вклад в радиоактивные отходы, имеют очень большие периоды полураспада (^{99}Tc , ^{129}I , ^{93}Zr , ^{135}Cs) и, безусловно, их необходимо трансмутировать.

Захоранивать продукты деления в геологических формациях не очень хорошо, так как они требуют большого (особенно технеций и йод) объема захоронения. Трансмутировать их при облучении нейтронами возможно. Например, технеций имеет один изотоп и легко выделяется для трансмутации. Изотоп ^{129}I можно

трансмутировать без изотопного разделения, хотя наличие ^{127}I несколько увеличит расход нейтронов (23%) по сравнению с изотопно-чистым ^{129}I . Изотопная сепарация ^{135}Cs в условиях высокой активности является в настоящее время сложной проблемой. Не исключена возможность трансмутации ^{135}Cs после достаточного уменьшения активности ^{137}Cs . Продукты деления можно трансмутировать в коротко живущие или стабильные изотопы только с помощью (n, γ) -реакций, поскольку они не делятся при облучении их любыми частицами. Зависимости сечений (n, γ) -реакций на ядрах ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs от энергии нейтронов, построенные на основании баз данных [10], приведены на рис. 5.

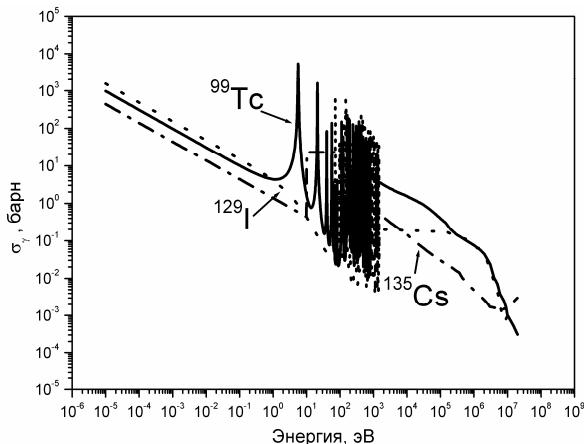


Рис. 5. Сечения захвата (σ_γ) для некоторых продуктов деления

Видно, что трансмутировать продукты деления нейtronами с энергией 14 МэВ практически невозможно из-за малых сечений в данном диапазоне энергий, т.е. такие нейтроны можно использовать только после их замедления до энергий $E_n \approx 10 \div 3000$ эВ, при которых осуществляется резонансный захват. Следовательно, необходимо использовать методы замедления нейтронов.

МЕТОДИКА ЗАМЕДЛЕНИЯ НЕЙТРОНОВ ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ МАССИВНОЙ СВИНЦОВОЙ МИШЕНИ

Метод трансмутации, основанный на использовании резонансного захвата нейтронов ядрами при адиабатическом снижении энергии нейтронов, именуемый TARC (Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing), позволяет значительно увеличить эффективность захвата нейтронов [11]. В этом случае вероятность захвата нейтронов ядрами пропорциональна резонансному интегралу

$$I_{\text{рез}}(E_{\min}, E_{\max}) = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \sigma(n\gamma) E^{-1} dE.$$

Величины резонансных интегралов для ряда ядер приведены в таблице 2. Резонансный интеграл захвата нейтронов ядрами ^{99}Tc составляет 310 барн, тогда как поперечное сечение захвата тепловых нейтронов – около 20 барн. Нейтроны, захваченные ^{99}Tc ($T_{1/2} = 2,1 \cdot 10^5$ лет), производят ^{100}Tc ($T_{1/2} = 15,8$ с), который распадается в стабильный ^{100}Ru .

Резонансные интегралы захвата нейтронов ядрами ^{129}I , ^{135}Cs также значительно превышают обычные сечения захвата нейтронов. Нейтроны, захваченные ^{129}I ($T_{1/2} = 1,57 \cdot 10^5$ лет), производят ^{130}I ($T_{1/2} = 12$ ч), который переходит в стабильный ^{130}Xe . Нейтроны захваченные ^{135}Cs , производят ^{136}Cs ($T_{1/2} = 13$ дн.), который переходит в стабильный ^{136}Ba . Таким образом, трансмутация с использованием метода TARC при которой практически все нейтроны лежат в области резонансных энергий оказывается очень эффективной.

Для адиабатического снижения энергии нейтронов в конце 1996 года в ЦЕРН был проведен эксперимент с использованием высокогенеретического пучка протонов и массивной свинцовой мишени. Мишень представляла собой высокочистый свинец общей массой 334 тонны.

В данном эксперименте для получения нейтронов использовался высокогенеретический пучок протонов 900 МэВ \div 3,5 ГэВ. Нейтроны в результате реакций (p, n) и (p, xn) имеют характерный спектр расщепления с максимумом около 3 МэВ. Наблюдается соответствующее смягчение данного спектра после взаимодействия с массивной свинцовой мишенью. Спектр нейтронов, полученных в результате данного эксперимента, позволяет эффективно трансмутировать ПД [11, 12].

В нашем случае мы изначально предполагаем облучение материалов 14 МэВ нейтронами. Следовательно, нами было проведено моделирование облучения массивной свинцовой мишени потоком моноэнергетических нейтронов. Схема моделирования приведена на рис. 6.

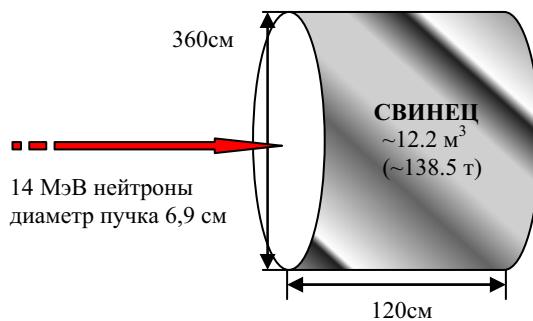


Рис.6. Схема моделирования облучения свинцовой мишени пучком 14 МэВ нейтронов

В результате моделирования были получены спектральные распределения нейтронов после взаимодействия со свинцовой мишенью (рис. 7). Как видно из представленных на рис. 7а распределений, в случае взаимодействия 14 МэВ нейтронов со свинцом, спектр нейтронов условно возможно разделить на 3 области:

- 1 – нейтроны с энергией около 14 МэВ;
- 2 – нейтроны в диапазоне энергий 10 кэВ ÷ 5 МэВ. Данная область максимальна по потоку нейтронов и является результатом реакций (n, n') и (n, xn) ;
- 3 – зона дальнейшего замедления, которое происходит в результате упругих взаимодействий, и является аналогом основной доли нейтронов для эксперимента TARC.

Очевидно, при данном подходе получим, что доля нейтронов резонансной области имеет малую интенсивность относительно первичного потока. Эффективность адиабатического замедления существенно ниже при уменьшении объема мишени (рис. 7б.)

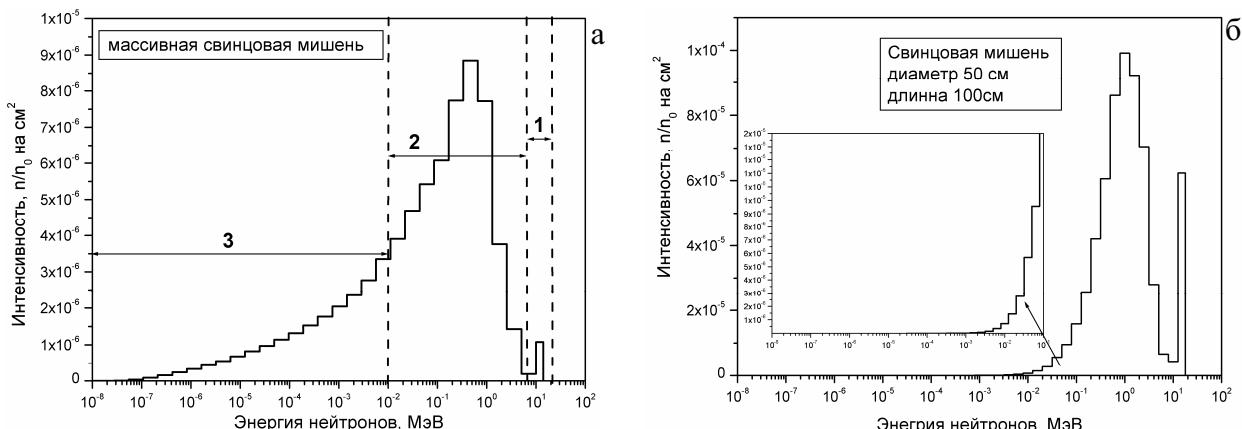


Рис. 7 Спектр нейтронов свинцовой мишени: а) массивная мишень объем ~1200 л, масса более 138 тонн б) мишень соответствующая геометрии моделирования, при трансмутации РАО: объем ~200 л, масса ~2200 кг

МОДЕЛИРОВАНИЕ УСТАНОВКИ ТРАНСМУТАЦИИ ПРИ СОВМЕСТНОМ ОБЛУЧЕНИИ ПД И ТРУ В СОСТАВЕ РАО

Рассмотрим вариант трансмутации, в котором ТРУ и ПД облучаются совместно (рис. 8).

При рассматриваемом варианте трансмутации РАО материалом является смесь ТРУ + ПД, равномерно распределенная по свинцовой матрице. На рис. 9, 10 представлены схема моделирования облучения ТРУ + ПД в свинцовой матрице и пространственное распределение потоков вторичных нейтронов. Композиционный изотопный состав ТРУ и ПД для рассматриваемых элементов соответствует изотопному составу отработанного ядерного топлива реактора ВВЭР 1000. Для расчета трансмутации РАО был выбран композиционный состав РАО в свинцовой матрице: 20% ТРУ; 10% ПД 70% свинец.

Спектры нейтронов после взаимодействия с РАО в свинцовой матрице представлены на рис. 11, 12. Анализ спектральных зависимостей нейтронного потока показывает, что наряду с процессами, аналогичными процессам в 100% свинцовой мишени, мы имеем заметный вклад в спектр нейтронов в результате реакции (n, f) на трансуранных элементах. В данных условиях за счет деления ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am обеспечивается высокая плотность потока. Количество нейтронов деления, образованных каскадом делений превышает количество первичных 14 МэВ нейтронов в более чем 9 раз. Таким образом, эффективность трансмутации ПД определяется спектром деления и соответствующей плотностью потока.

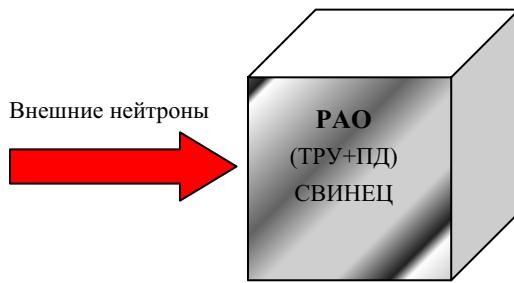


Рис. 8. Концепция трансмутации РАО, при которой ТРУ и ПД облучаются совместно

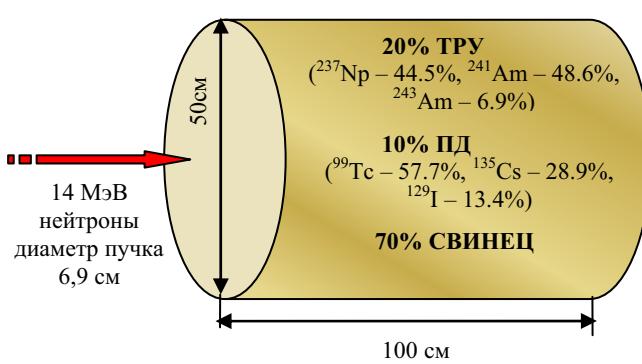


Рис. 9. Схема моделирования облучения РАО

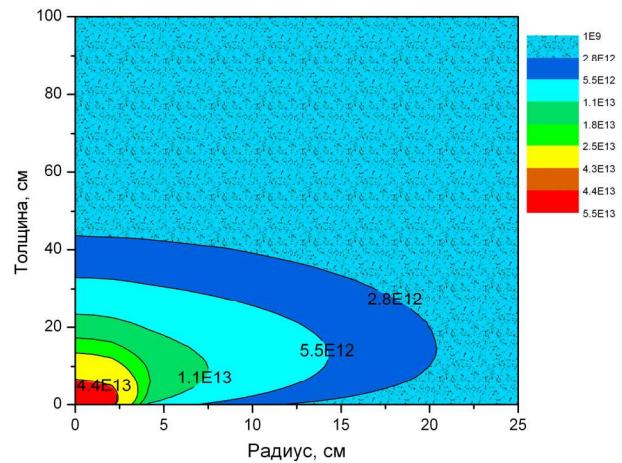
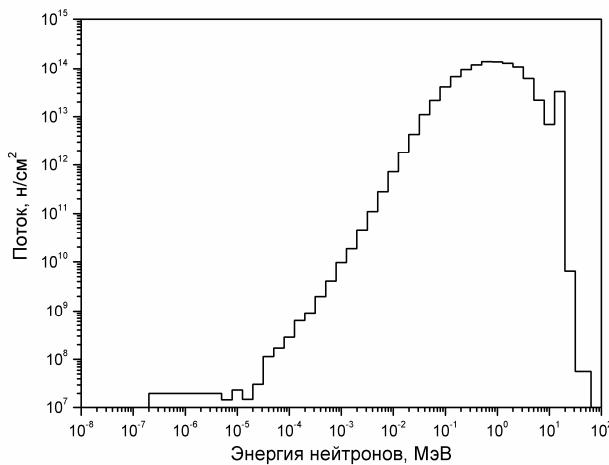
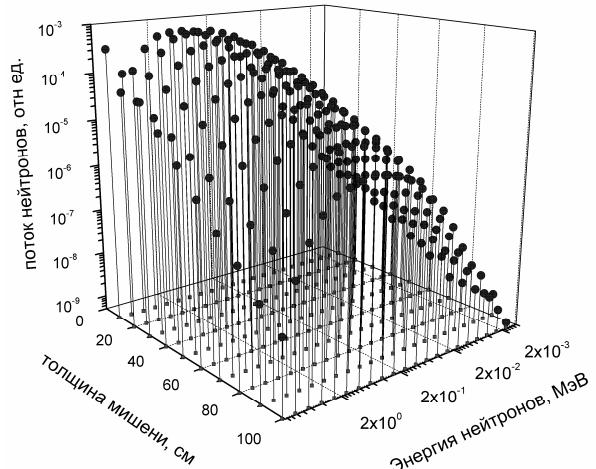
Рис.10. Пространственное распределение вторичных нейтронов. Нормировано на поток первичных частиц 1×10^{15} нейтронов в секундуРис. 11. Усредненный по объему спектр нейтронов с плотностью потока 1×10^{15} н/см²/с, при облучении свинцовой ячейки с РАО (20% ТРУ + 10% ПД + 70% Pb) 14 МэВ нейtronами

Рис.12. Спектр нейтронов, распределенный по толщине мишени, при облучении свинцовой ячейки с РАО (20% ТРУ + 10% ПД + 70% Pb) 14 МэВ нейtronами

Как уже было отмечено ранее, моделирование проводится для гомогенного распределения элементов в материале матрицы. Следовательно, для расчета эффективности трансмутации используется усредненный по объему материала спектр нейтронов с плотностью потока 1×10^{15} н/см²/с. При данной геометрии мишени и фиксированном составе РАО (20% ТРУ + 10% ПД) необходимо обеспечивать интегральный поток первичных 14 МэВ нейтронов на уровне 5.68×10^{17} н/с. Данная нормировка фиксирована для всех дальнейших расчетов.

Для расчета трансмутации была применена система FISPACT [13]. Она основана на решении кинетических уравнений $\frac{\partial C}{\partial t}$, где С – концентрация изотопа, с использованием итерационных методов на основе современных баз данных для активационных процессов с учетом сечений реакций и процессов распада.

В результате моделирования облучения, с заданным спектром нейтронов учитывалось более 790 изотопов, которые получались в результате взаимодействия нейтронного потока с РАО. Зависимости изменения концентрации рассматриваемых изотопов в зависимости от времени облучения, полученные в результате моделирования кодом FISPACT, представлены на рис. 13.

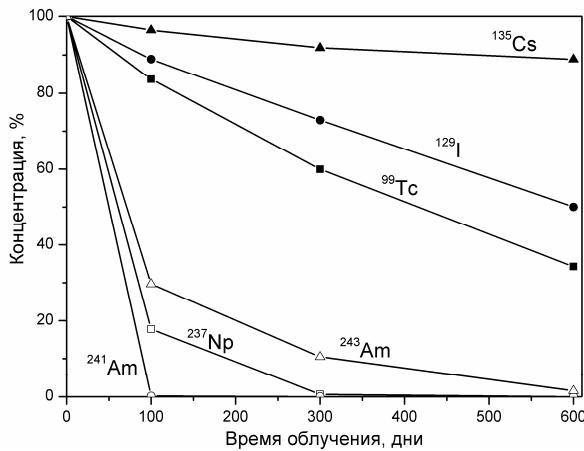


Рис. 13. Изменение концентрации некоторых изотопов от времени облучения

Анализ данных зависимостей позволяет сделать вывод о том, что при облучении 14 МэВ нейtronами свинцовой ячейки с РАО, доля резонансных нейтронов в спектре недостаточна для трансмутации продуктов типа ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs . Наряду с этим происходят процессы трансмутации для трансурановых элементов типа ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am . Очевидно, что данный подход при трансмутации РАО неэффективен для трансмутации долгоживущих и активных продуктов деления типа ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs , однако, он может быть применен для трансмутации ТРУ. Для того чтобы определить, чем обусловлено изменение концентрации ПД при облучении, необходимо сравнить спектры нейтронов для чистого свинца и для различного содержания РАО в свинцовой матрице. В результате моделирования получены усредненные потоки по объему мишени для 100% свинца, 30% РАО + 70% свинца, 10% РАО + 90% свинца. Интегральные потоки составили $3,5 \times 10^{14} \text{ н/см}^2$, $1,0 \times 10^{15} \text{ н/см}^2$, $4,65 \times 10^{14} \text{ н/см}^2$ соответственно. Спектральные характеристики для чистого свинца и различного содержания РАО в свинцовой матрице представлены на рис. 14. С одной стороны наблюдается увеличение потока нейтронов в области 1 кэВ–1 МэВ, что соответствует реакции (n, f) , с другой стороны не наблюдается значительного изменения спектра в резонансной области. Следовательно, объема свинцовой матрицы не достаточно для эффективного замедления нейтронов (рис. 7б и рис. 14).

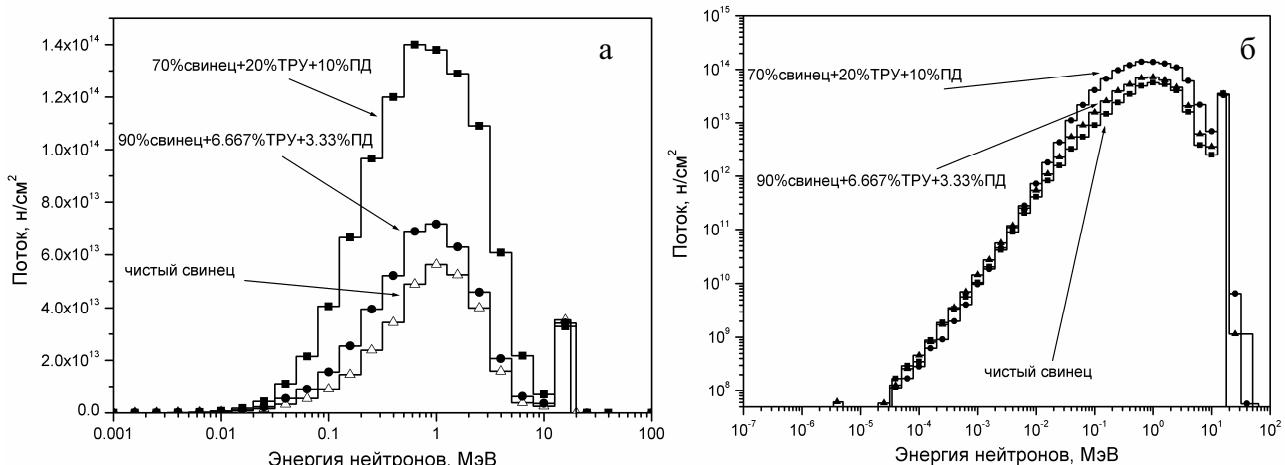
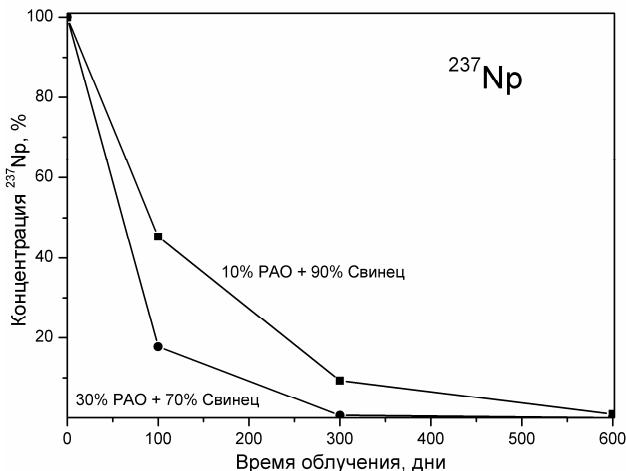
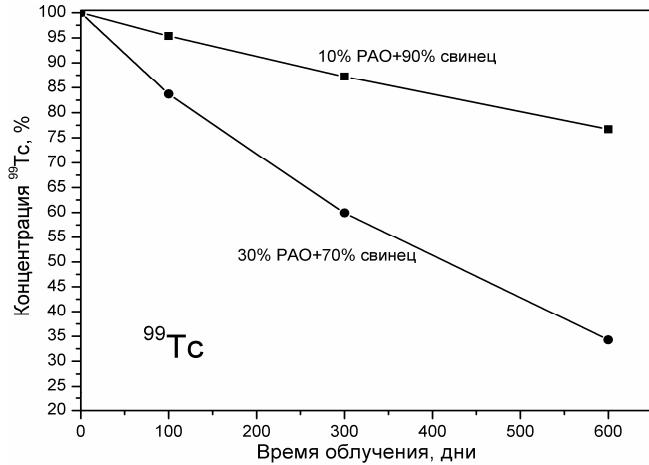


Рис. 14. Свинец и РАО с различным содержанием ТРУ при облучении нейтронами. Спектр усреднен по объему мишени.
а) линейный масштаб, б) логарифмический масштаб

Изменение концентрации изотопов ^{237}Np и ^{99}Tc для 10% РАО и 30% РАО от времени облучения представлены на рис. 15, 16. Анализ зависимостей позволяет сделать вывод, что при использовании свинцовой матрицы эффективность трансмутации определяется содержанием ТРУ в РАО.

Рис. 15. Изменение концентрации для ^{237}Np Рис. 16. Изменение концентрации для ^{99}Tc

Очевидно, что вариант трансмутации РАО без разделения изотопов по фракциям продуктов деления и трансуранных элементов в свинцовой матрице является не эффективным по отношению к трансмутации долгоживущих ПД. Необходимо замедление нейтронов до резонансной области. Для осуществления эффективного замедления нейтронов может служить углерод. Были проведены расчеты для облучения РАО в углеродной матрице. Распределение потока нейтронов для 70% углеродной матрицы и 70% свинцовой матрицы представлены на рис. 17. Из рисунка видно, что при использовании углеродной матрицы доля резонансных нейтронов относительно мала – около 0,01%. Наблюдается увеличение доли нейтронов в области 1 кэВ \div 1 МэВ, которое связано с повышением эффективности деления ТРУ. Плотность потока увеличилась до $1,67 \times 10^{15} \text{ н/см}^2/\text{с}$. Следовательно, использование углеродной матрицы увеличивает эффективность трансмутации ТРУ.

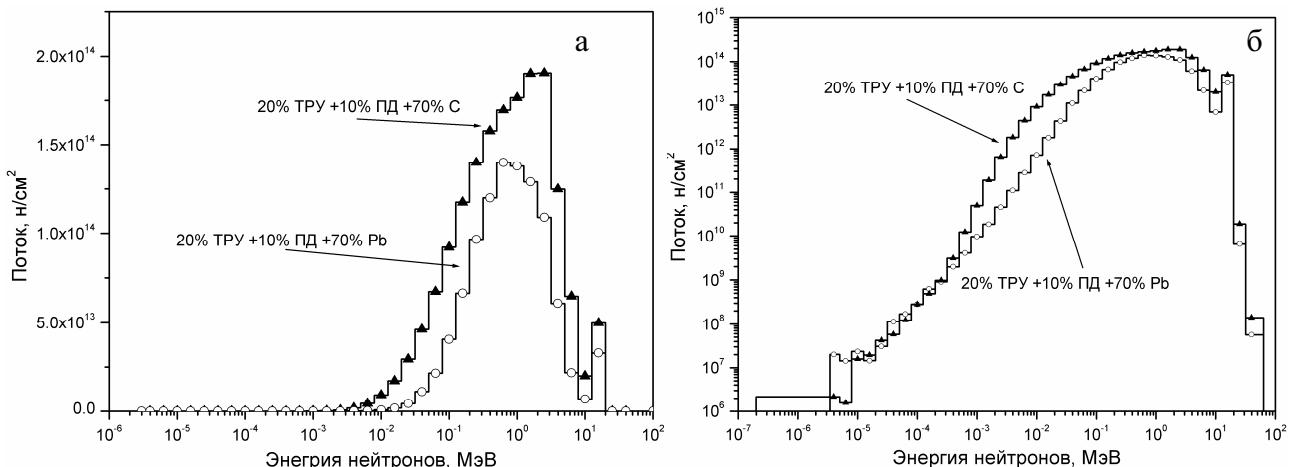


Рис. 17. Спектры нейтронов для (20% ТРУ + 10% ПД + 70% С) и (20% ТРУ + 10% ПД + 70% Pb). Спектры усреднены по объему мишений

а) линейный масштаб, б) логарифмический масштаб

Так как спектр нейтронов в углеродной матрице не претерпел изменений в резонансной области, был проведен анализ эффективности трансмутации ПД в зависимости от плотности углеродной матрицы и проведено сравнение с эффективностью трансмутации ПД для свинцовой матрицы. Изменение концентрации для ^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs для различных матриц при облучении РАО приведены на рис. 18, 19, 20.

Для ^{99}Tc эффективность трансмутации сравнима со свинцовой матрицей уже для 30% углерода. При дальнейшем повышении концентрации углеродной матрицы эффективность трансмутации возрастает и для 70% углерода при 300 днях облучения разница достигает 25%. Для ^{129}I , при использовании углеродной матрицы, не наблюдается заметного увеличения эффективности трансмутации (рис. 19), для ^{135}Cs наблюдается

уменьшение эффективности трансмутации и для 70% углерода эффективность приблизительно на 2% меньше, чем для 70% свинцовой матрицы.

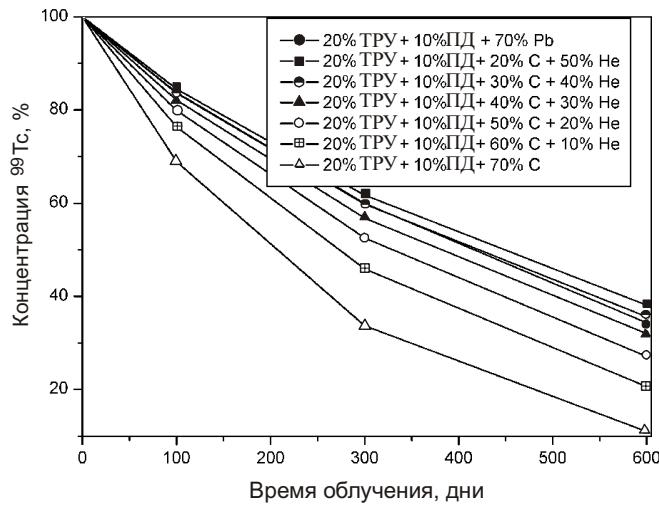


Рис. 18. Изменение концентрации для ^{99}Tc в зависимости от времени облучения для различных матриц

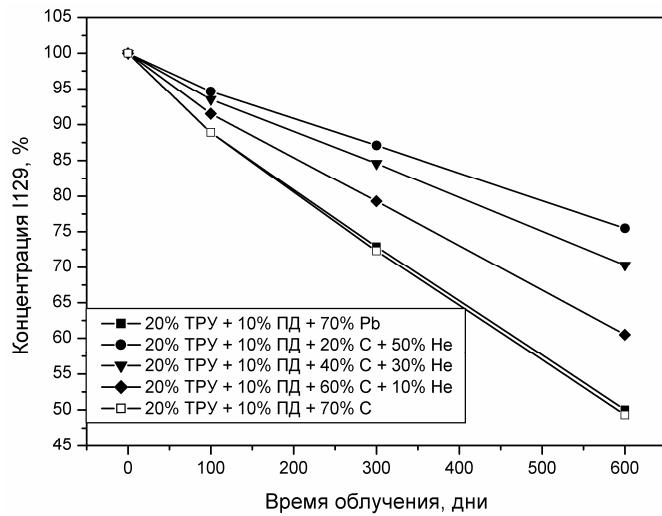


Рис. 19. Изменение концентрации для ^{129}I в зависимости от времени облучения для различных матриц

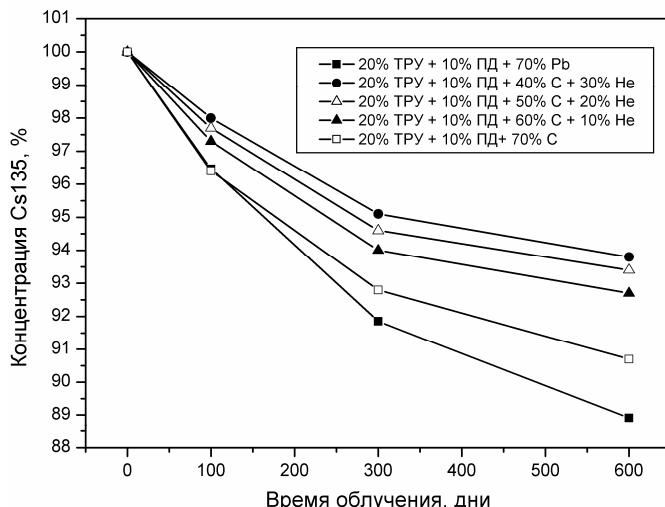


Рис. 20. Изменение концентрации для ^{135}Cs в зависимости от времени облучения для различных матриц

Поэтому для увеличения эффективности трансмутации ПД необходимо дальнейшее замедление нейтронов, которое возможно при раздельном облучении ТРУ и ПД с использованием промежуточного замедлителя.

В процессе трансмутации РАО при облучении нейтронным потоком образуется большое количество промежуточных короткоживущих изотопов, поэтому при разработке проекта трансмутационной установки необходимо учитывать влияние данных изотопов с точки зрения радиационной безопасности. В таблице 3 представлены 20 наиболее активных изотопов, нарабатываемых в процессе облучения РАО в свинцовой матрице с составом: 20% ТРУ (^{237}Np – 44,5%, ^{241}Am – 48,6%, ^{243}Am – 6,9%) + 10% ПД (^{99}Tc – 57,7%, ^{135}Cs – 28,9%, ^{129}I – 13,4%) + 70% свинец после 100 дней облучения нейтронами. Например, количество ^{238}Np после 100 дней составляет 0,7% по отношению к начальному количеству ^{237}Np , однако из-за высокой удельной активности данный изотоп составляет более 10% общей активности облучаемого РАО (данные активности представлены из расчета на 1 кг материала).

Таблица 3. Активности некоторых короткоживущих изотопов, наработанных в процессе облучения РАО

| Изотоп | Активность, (Bq) | Период полураспада | | Процент Активности |
|---------------------------|------------------|--------------------|--------|--------------------|
| Np^{238} | 7,67E+15 | 50,808 | часов | 11,70 |
| Tc^{100} | 5,35E+15 | 15,8 | секунд | 8,12 |
| Cm^{242} | 5,35E+15 | 162,94 | дней | 8,12 |
| Am^{244}m | 2,77E+15 | 26 | минут | 4,20 |
| Pu^{243} | 2,07E+15 | 4,959 | часов | 3,14 |
| Tc^{103} | 6,31E+14 | 50 | секунд | 0,96 |
| Tc^{102} | 6,29E+14 | 5,28 | секунд | 0,96 |
| Mo^{102} | 6,27E+14 | 11,2 | минут | 0,95 |
| I^{134} | 6,13E+14 | 52,6 | минут | 0,93 |
| Cs^{138} | 6,06E+14 | 32,2 | минут | 0,92 |
| Tc^{101} | 6,06E+14 | 14,2 | минут | 0,92 |
| I^{133} | 6,05E+14 | 20,8 | часов | 0,92 |
| Mo^{101} | 6,04E+14 | 14,6 | минут | 0,92 |
| Tc^{104} | 5,99E+14 | 18,4 | минут | 0,91 |
| Mo^{103} | 5,93E+14 | 67,9 | секунд | 0,90 |
| Xe^{133} | 5,92E+14 | 5,243 | дней | 0,90 |
| Ba^{139} | 5,76E+14 | 1,3844 | часов | 0,88 |
| Xe^{137} | 5,58E+14 | 3,8183 | минут | 0,85 |
| I^{135} | 5,42E+14 | 6,61 | часов | 0,82 |
| Ru^{105} | 5,32E+14 | 4,4389 | часов | 0,81 |
| Остальные | 3,37E+16 | | | 51,23 |

Таким образом, при разработке проекта трансмутации элементов необходим детальный анализ различных факторов типа радиационной безопасности для постановки многокритериальной задачи оптимизации системы.

ТРАНСМУТАЦИЯ РАО С РАЗДЕЛЕНИЕМ ИЗОТОПОВ ТРУ И ПД И ПРОМЕЖУТОЧНЫМ ЗАМЕДЛЕНИЕМ НЕЙТРОНОВ

Предложена модификация второго варианта установки для трансмутации РАО, в котором между ТРУ и ПД установлен замедлитель, соответствующая схема установки представлена на рис. 21. В данном случае композиционный состав и толщины ячеек являются параметрами оптимизации для получения наибольшей эффективности трансмутации РАО.

Как видно из предыдущих расчетов, ТРУ возможно трансмутировать при облучении высокоэнергетическими нейтронами с энергией 14 МэВ. Однако, даже при замедлении в массивной мишени, доли нейтронов резонансной области не достаточно для эффективной трансмутации продуктов деления. Поэтому для замедления нейтронов предлагается ячейку с ТРУ изготовить на основе углеродной матрицы. Кроме этого, исходя из экономических и конструкционных соображений, необходимо уменьшить геометрические размеры по сравнению со свинцовой ячейкой с РАО. В первом варианте объем свинцовой ячейки с РАО составлял около 200 литров. Соответственно, общая масса материалов мишени была около 2,5 т. Общий объем системы ячеек при втором варианте составил около 120 литров и общая масса – около 400 кг. Геометрические размеры ячейки с ТРУ на основе углеродной матрицы были следующими: диаметр ячейки –

50 см, толщина ячейки – 10 см. Композиционный состав ячейки 10% ТРУ +10% углерод + 80% Не. Гелий в ячейке используется для охлаждения при процессах деления.

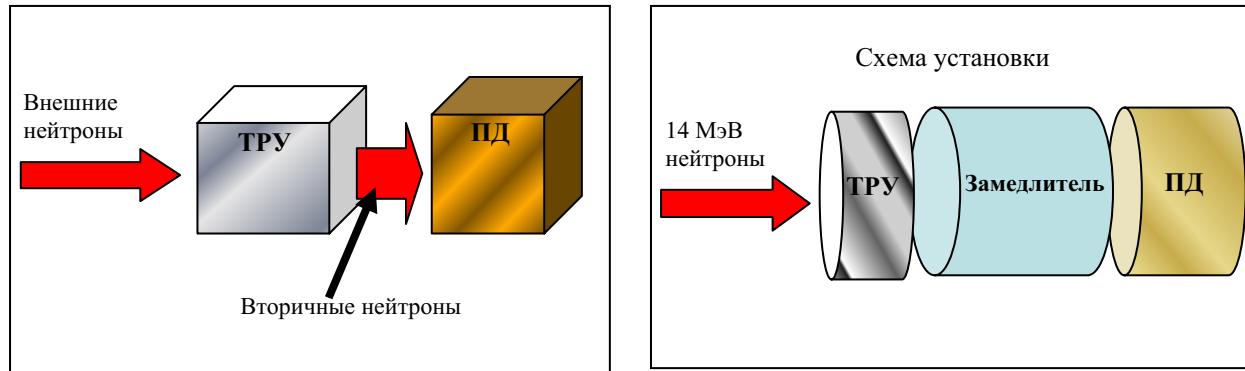


Рис. 21. Концептуальная схема трансмутации РАО с разделением ТРУ и ПД и промежуточным замедлением нейтронов

Нейтронные спектры после прохождения 14 МэВ нейтронов через ТРУ и композиционный замедлитель представлены на рис. 22. За счет каскадов деления и бериллия, который играет роль отражателя, поток на выходе из ячейки с ТРУ увеличился в 2 раза по сравнению с первичным.

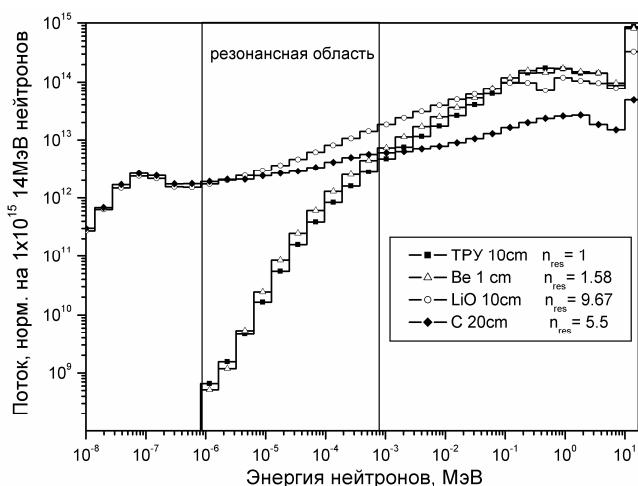


Рис. 22. Спектры нейтронов после прохождения композиционного замедлителя

Из приведенного распределения для ТРУ следует, что доля нейтронов в резонансной области составляет 0,6% (данная величина была взята за единицу), и следовательно, для эффективной трансмутации ПД необходимо дальнейшее замедление. Для осуществления замедления используется ячейка, называемая замедлитель. Замедлитель является композитным и состоит из нескольких слоев различных материалов:

– слой бериллия толщиной 1 см для замедления и дополнительного увеличения потока нейтронов, благодаря реакции $(n,2n)$. Кроме этого бериллий является отражателем и повышает эффективность реакции деления. При данной толщине бериллия наблюдается увеличение потока на 1,5%. Доля резонансных нейтронов, нормированная на долю из ячейки с ТРУ, составляет 1,58.

– слой диоксида лития толщиной 10 см для дальнейшего замедления и возможной наработки трития. Наблюдается уменьшение интегрального потока за счет поглощения нейтронов в литии, тем не менее, поток на 36% больше начального. Доля резонансных нейтронов существенно возрастает и составляет 9,66 по отношению к ТРУ.

– слой углерода толщиной 20 см для дальнейшего замедления нейтронов до диапазона резонансной области, после которого доля резонансных нейтронов составляет 5,5. Поток составляет 30% от начального потока 14 МэВ нейтронов.

Очевидно значительное улучшение спектра, который обеспечивает достаточно высокую интенсивность нейтронного потока в области 10 эВ÷10 кэВ. Следовательно, возможно ожидать увеличение эффективности трансмутации ПД данным спектром нейтронов.

После прохождения замедлителя нейтроны облучают ячейку, содержащую продукты деления. Эта ячейка так же на основе углеродной матрицы диаметром 50 см и толщиной 20 см, состоящая из 80% продуктов

деления, 10% углерода и 10% гелия. Для данной системы было проведено моделирование трансмутации РАО при помощи кода FISPACT. В связи тем, что материал гомогенизирован по объему мишени, моделирование трансмутации ПД осуществляется для усредненного по объему ячейки нейтронного спектра. Спектр нейтронов, усредненный по объему данной ячейки, представлен на рис. 23. Видно, что в области 10 эВ÷10 кэВ плотность потока составляет $10^{10}÷10^{11}$ н/см²/с на всем интервале. Если сравнить с первым вариантом (рис. 14.), то в начале интервала в области 10 кэВ потоки примерно равны, но при уменьшении энергии нейтронов при совместном облучении ТРУ и ПД поток резко падает до 10^7 н/см²/с. Однако в диапазоне энергий 10 кэВ÷1 МэВ, наблюдается увеличение потока в первом варианте из-за реакции деления до значения 10^{14} н/см²/с.

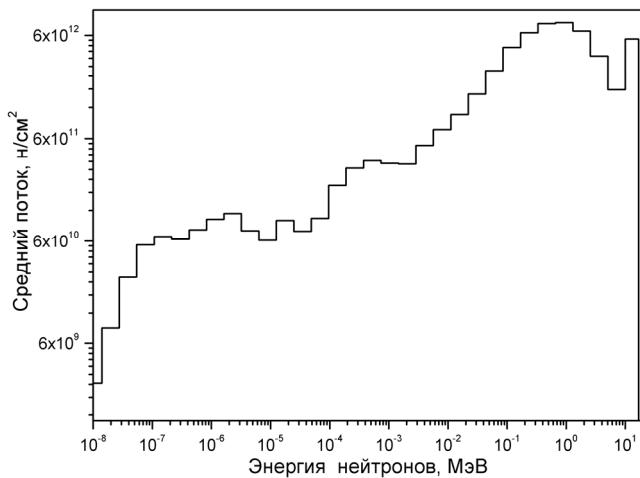


Рис. 23. Нейтронний спектр в углеродной ячейке с ПД, усредненный по объему ячейки

По результатам моделирования проведена оценка эффективности трансмутации ТРУ и ПД в РАО для двух вариантов установки при одинаковых плотностях потоков (1×10^{15} н/см² в секунду). Изменение концентрации ПД для обоих вариантов установки для трансмутации представлены на рис. 24. Видно, что в случае раздельного облучения, ПД трансмутируются более эффективно. Таким образом, в случае раздельного облучения ТРУ и ПД, мы получаем уменьшение общей массы используемых материалов от 4 тонн на 240 литров объема в первом варианте установки до 400 кг на 120 литров объема во втором варианте. Относительная эффективность трансмутации для продуктов деления возрастает от 10 до 30% в зависимости от рассматриваемого изотопа. Кроме этого, нарабатывается тритий при прохождении нейтронов через литиевую ячейку. Однако, несмотря на примерно одинаковые потоки в резонансной области для обоих вариантов, в случае трансмутации ПД + ТРУ, поток в области 1 кэВ÷1 МэВ значительно превышает поток в случае раздельного облучения в связи с отсутствием реакции деления для ПД. Таким образом, общий поток для ПД падает по сравнению с первым вариантом до значения 5×10^{13} н/см² в секунду.

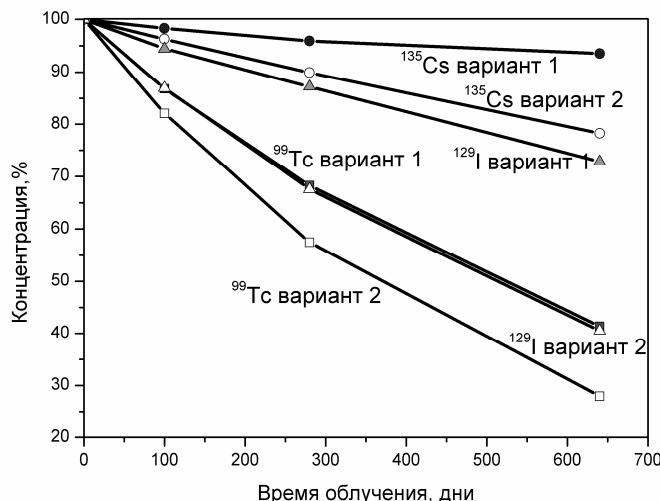


Рис. 24. Изменение концентрации ПД в зависимости от времени облучения для первого и для второго вариантов установки для трансмутации

С учетом нормировки на соответствующие плотности потоков ситуация с эффективностью меняется. Изменение концентрации продуктов деления для различных матриц, представлены на рис. 25, 26, 27.

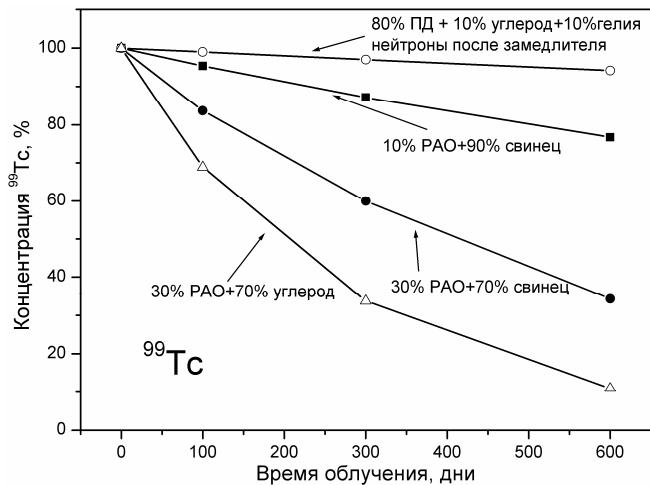


Рис. 25. Изменение концентрации для ^{99}Tc в зависимости от времени облучения для различных матриц

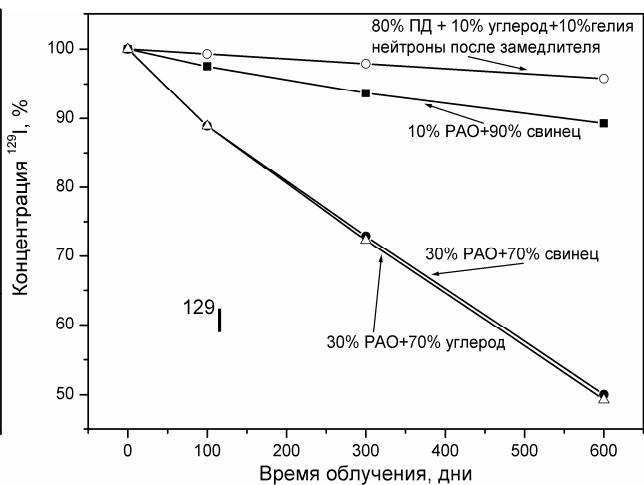


Рис. 26. Изменение концентрации для ^{129}I в зависимости от времени облучения для различных матриц

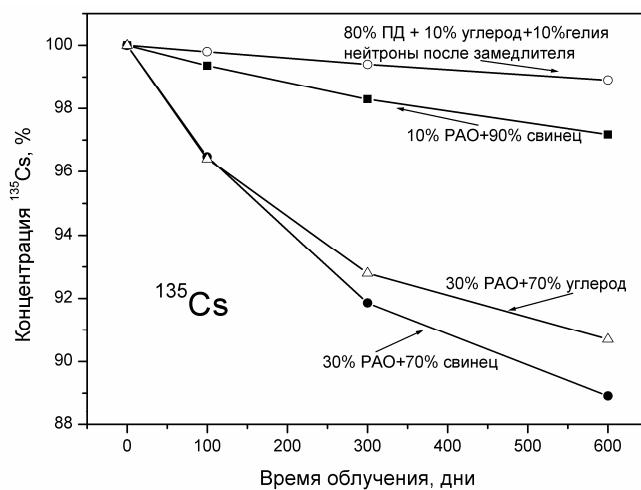


Рис. 27. Изменение концентрации для ^{135}Cs в зависимости от времени облучения для различных матриц

ФИЗИЧЕСКОЕ ОБОСНОВАНИЕ СХЕМЫ ТРАНСМУТАЦИИ РАО

Анализ полученных данных позволил сделать следующие выводы. При трансмутации РАО в смешанном виде (ТРУ + ПД) эффективность трансмутации определяется потоками нейтронов в объеме материала. Таким образом, при повышении концентрации ТРУ в матрице, увеличивается количество вторичных нейтронов связанных с реакцией (n, f) и, следовательно, увеличивается эффективность трансмутации как ТРУ, так и ПД. При одинаковых потоках нейтронов эффективность трансмутации после промежуточного замедления выше, чем при совместной трансмутации. Однако, в связи с наличием замедлителя существенно ослаблен поток нейтронов при облучении ячейки с ПД. Расчеты позволили сделать вывод что, несмотря на существенную разницу в сечениях при различных энергиях, данной разницы недостаточно, чтобы скомпенсировать ослабление потока нейтронов. Следовательно, наблюдается ухудшение эффективности трансмутации ПД при использовании промежуточного замедлителя. Необходимо отметить, что в связи со статическим характером расчетов (в процессе определения эффективности трансмутации спектр и поток не менялись со временем облучения), данные об эффективности трансмутации могут быть завышены. Однако, и в случае использования промежуточного замедлителя, так же использовался стационарный поток и постоянный спектр, поэтому и в этом случае данные будут завышены. Возможно, градиенты изменения потоков будут различны, что может привести к изменению результатов. Поэтому при детальной разработке модели трансмутационной установки необходимо модернизировать методику с учетом динамического изменения спектра и потока нейтронов в процессе облучения. Данная модернизация принципиально не изменит методику и она может быть произведена добавлением итерационной последовательности расчетов с обратной связью.

ЗАКЛЮЧЕННЯ

Розробана методика моделювання індукованої зовнішнім потоком нейтронів трансмутації елементів. На основі розробленої методики проведено моделювання трансмутації конкретно до РАО. Ісходя з результатів моделювання, можна зробити висновки про те, що концептуально можливо використання 14 МэВ нейтронів з метою трансмутації РАО. Показано, що трансмутація РАО сильно залежить від початкової концентрації ТРУ в ній. При достатньо великих концентраціях ТРУ трансмутація визначається вторинними нейтронами деління та відповідними потоками цих нейтронів. При однакових потоках нейтронів більш ефективна трансмутація при окремому варіанті облучення трансуранових елементів та продуктів деління через те, що нейтрони, проходя через замедлювач, смигчують та формують більшу долю в резонансній області. Однак, наявність замедлювача дещо зменшує потік нейтронів та поганяє зростання ефективності трансмутації.

При виборі варіантів установок для трансмутації, виходячи з передбачуваних техніко-економіческих параметрів, можна буде проводити оптимізацію системи, та здійснювати окончательний вибір характеристик установки. Результати моделювання ефективності трансмутації можуть бути завищенні через використання статичної моделі. В наступному, при детальній розробці конструкції, необхідно модернізувати систему розрахунків, використовуючи ітераційну послідовність промежуточних розрахунків з урахуванням динамічного змінення спектрального складу та потоків нейтронів. Також необхідно враховувати детальну гетерогенну геометрію, весь комплекс нарахуваних в процесі роботи ізотопів, енерговиділення, інтенсивність нейтронних та гамма-полів в межах конструкційних елементів установки та інші параметри. Оптимізація конструкції залежною від одного параметру (ефективність трансмутації РАО) може привести до недопустимих значень параметрів ядерної та радіаційної безпеки чи недопустимих техніко-економіческих характеристиках.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Богословский А.В. Уничтожение радиоактивных отходов с помощью быстрых нейтронов как альтернатива геологическому захоронению / История вопроса и проект К. Руббия. Обзор // Атомная техника за рубежом. – 1998. – №1. – С. 3-10.
2. Дмитриевский В.П. Электроядерный метод получения энергии // Дубна: ЭЧАЯ. – 1997. – Т. 28. – С. 815-836.
3. Бомко В.А., Карнаухов И.М., Лапшин В.И. Усилитель мощности – основа ядерной энергетики XXI века. Обзор. – Харьков: ННЦ ХФТИ, 2001. – 52 с.
4. Бронников В.А. Новые исследования ядерных характеристик некоторых продуктов деления. Обзор // Атомная техника за рубежом. – 2003. – №12. – С. 3-6.
5. Махова В.А., Соколова И.Д., Шульга Н.А. Исследования по фракционированию и трансмутации долгоживущих радионуклидов. Обзор // Атомная техника за рубежом. – 2003. – №3. – С. 3-10.
6. Бзнуни С.А., Барашенков В.С., Жамкочян В.М., Соснин А.Н., Полянски А., Худавердян А.Г. Перспективные электроядерные системы // Дубна: ЭЧАЯ, 2003. – Т. 34. – С. 977-1030.
7. Breismeyer J.F., ed. MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code. LA-13709-M. Los Alamos National Laboratory: Los Alamos, NM, 2000.
8. GEANT4 Physics Reference Manual, GEANT4 Working Group CERN, June 21, 2004.
9. Слабоспіцкий Р.П., Хажмурадов М.А. Розрахунок трансмутації основних елементів радіоактивних відходів під дією термоядерних нейтронів // Сборник наукових праць СНІЯЕП. – 2007. – 4(24). – С. 207-215.
10. <http://www.nea.fr/html/dbdata/eva/evaret.cgi>.
11. European Commission, Neutron-Driven Nuclear Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing (TARC), EUR 19117 EN, Nuclear Science and Technology series. European Commission, Luxembourg, 1999.
12. Andriamonje S. et al. Proposal: Experimental Study of the Phenomenology of Spallation Neutrons in a Large Lead Block, CERN/SPSLC 95-17, SPSLC/P291, 5 May, 1995.
13. Forrest R.A. "FISPACT-2003: User manual", UKAEA FUS 485, 2002.

PHYSICAL BACKGROUND AND MODELING OF FACILITY CONSTRUCTION FOR TRANSMUTATION OF SOME ELEMENTS OF RADIOACTIVE WASTE USING THERMONUCLEAR NEUTRONS

Y.V. Rudychev, R.P. Slabospitskij, M.A. Khazhmuradov
*National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology",
 Akademicheskaya Str. 1, 61108 Kharkov, Ukraine*

Two variants of radioactive waste transmutation systems using of thermonuclear neutrons are considered. In first one the transuranium elements and the fission products are irradiated together, in second one they are irradiated separately. Advantages and disadvantages of these variants are analyzed. Both systems are simulated. Efficiency of each variant of radioactive waste transmutation is analyzed. Physical background of radioactive waste transmutation by thermonuclear neutrons is arranged.

KEY WORDS: spent fuel, radioactive waste, transmutation, simulation, Monte-Carlo method.