

УДК 539.125.5

АНАЛИЗ ОСОБЕННОСТЕЙ РАЗЛИЧНЫХ МЕТОДОВ ТРАНСМУТАЦИИ РАО**Р.П. Слабоспицкий***Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»**ул. Академическая, 1, г. Харьков, 61108, Украина**E-mail: labospitskiy@kipt.kharkov.ua*

Поступила в редакцию 20 марта 2011 г.

Используя результаты ранее проведенных нами исследований трансмутации основных элементов радиоактивных отходов (РАО) под воздействием быстрых и резонансных нейтронов проведен анализ особенностей различных методов трансмутации. Изучены особенности трансмутации РАО в быстрых реакторах, в электроядерных системах (ЭЯС), состоящих из быстрого реактора и ускорителя заряженных частиц (протонов или электронов) и установок с D-T синтезом при энергии нейтронов 14 МэВ. Проанализированы возможности этих установок для трансмутации как трансуранических элементов (ТРУ), так и продуктов деления (ПД). Определены преимущества и недостатки использования этих установок для трансмутации ТРУ и ПД в случае как совместного их облучения, так и при раздельном облучении ТРУ и ПД. В качестве наиболее перспективных на сегодняшний момент можно считать гибридные системы, состоящие из ЭЯС (с жестким нейтронным спектром) и тепловых реакторов (с мягким нейтронным спектром), поскольку в них можно эффективно трансмутировать и трансуранические элементы, и продукты деления, т.е. весь спектр ядерных отходов.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: трансмутация, радиоактивные отходы, быстрый реактор, электроядерные системы

ANALYSIS OF THE FEATURES OF DIFFERENT METHODS OF RADIOACTIVE WASTE TRANSMUTATION**R.P. Slabospitskiy***National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"**1, Academicheskaya St., Kharkov, Ukraine, 61108*

Using the results of our earlier studies of the transmutation of radioactive waste main elements irradiated with fast and epithermal neutron effectiveness of different transmutation methods is analyzed. It is studied the features of radioactive waste transmutation in the fast reactors, the accelerator driven systems (ADS), consisting from the fast reactor and charged particles (protons or electrons) accelerator and facilities with D-T fusion for neutron energy 14 MeV. Possible using of these facilities for transmutation of both transuranic elements and fission products is analyzed. The advantages and disadvantages of these facilities for transmutation of transuranic elements and fission products in the cases of their simultaneous and separate irradiation are discussed. Hybrid systems consisting of ADS with hard neutron spectrum and thermal reactors with soft neutron spectrum are the most promising systems, as they can be used for transmutation of both the transuranic elements and fission products, i.e. the entire spectrum of nuclear waste.

KEY WORDS: transmutation, radioactive wastes, fast reactor, electro-nuclear system

АНАЛІЗ ОСОБЛИВОСТЕЙ РІЗНИХ МЕТОДІВ ТРАНСМУТАЦІЇ РАВ**Р.П. Слабоспіцький***Національний науковий центр «Харківський фізико-технічний інститут»**вул. Академічна, 1, м. Харків, 61108, Україна*

Використовуючи результати раніше проведених нами досліджень трансмутатії основних елементів радіоактивних відходів (РАВ) під впливом швидких і резонансних нейтронів проведено аналіз особливостей різних методів трансмутатії. Вивчено особливості трансмутатії РАВ у швидких реакторах, в електроядерних системах (ЕЯС), що складаються з швидкого реактора і прискорювача заряджених частинок (протонів або електронів) і установок з D-T синтезом при енергії нейтронів 14 Мев. Проаналізовано можливості цих установок для трансмутатії як трансураничних елементів (ТРУ), так і продуктів ділення (ПД). Визначено переваги і недоліки використання цих установок для трансмутатії ТРУ і ПД у разі як сумісного їх опромінювання, так і при роздільному опромінюванні ТРУ і ПД. Як найбільш перспективними на сьогоднішній момент вважаються гібридні системи, що складаються з ЕЯС (з жорстким нейтронним спектром) і теплових реакторів (з м'яким нейтронним спектром), оскільки в них можна ефективно трансмутовувати і трансураничні елементи, і продукти ділення, тобто весь спектр ядерних відходів.

КЛЮЧОВІ СЛОВА: трансмутатія, радіоактивні відходи, швидкий реактор, електроядерні системи

К 2012 г. из мирового парка реакторов с урановым топливом общей мощностью 400 ГВт должно быть удалено 300 тыс. т отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Это топливо содержит уран (95% от общей массы с 1,1% ^{235}U), 3000 т Pu, 140 т ^{235}Np (количество которого увеличивается до 500 т из-за распада ^{241}Pu и ^{241}Am), около 120 т америция и другие трансуранические элементы. Общее содержание трансуранических элементов (ТРУ) составляет около 1% общей массы отходов. Кроме того, в ОЯТ содержится около 4% продуктов деления (ПД) с долгоживущими радионуклидами: 250 т ^{99}Tc , 90 т ^{135}Cs , около 60 т ^{129}I и др. Все, что остается после выделения урана, для дальнейшего использования на АЭС, относится к радиоактивным отходам. Растущее накопление ОЯТ является исключительно сложной проблемой и поискам путей ликвидации радиоактивных отходов, в том числе и трансмутации, уделяется огромное внимание, что находит отражение в многочисленных работах, в том числе и в наших публикациях [1-5].

Целью данной работы является анализ особенностей различных методов трансмутации.

ОБРАЩЕНИЕ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ

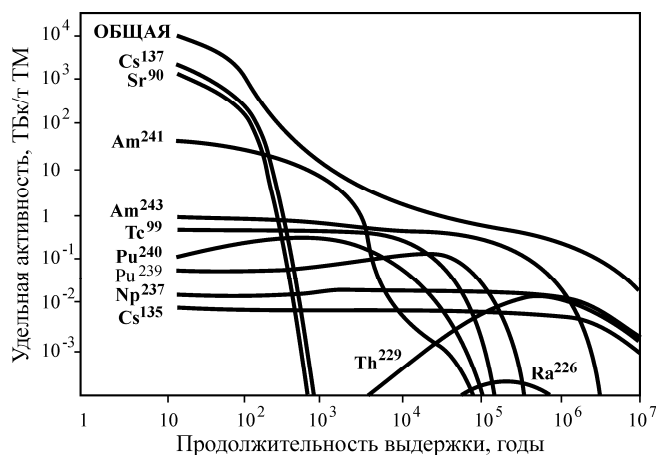


Рис. 1. Изменение удельной активности элементов во времени

Беспокойство значительным накоплением радиоактивных отходов связано с большой удельной активностью радиоактивных элементов и длительным периодом их полураспада (рис. 1) и поэтому разрабатываются различные сложные методы обращения с РАО.

Детально технические и экономические аспекты обращения с РАО описаны в обстоятельном обзоре, выполненном сотрудниками ННЦ ХФТИ [6] и опубликованном в 2006 году под редакцией академика И.М. Неклюдова. В обзоре приведены также многочисленные ссылки на публикации по данной тематике. Разработки различных организаций Минатома России опубликованы в работе [7]. Оригинальные предложения по обращению с РАО представлены в работах [8-11]. В Украине, также как и во многих странах мира (Франция, Англия, Япония, Россия) ядерную энергетику планируется [6] развивать в

рамках замкнутого ядерного топливного цикла (ЯТЦ), который предусматривает целый ряд мероприятий, в том числе и разделение отработанного топлива на фракции. Радионуклиды, входящие во фракции, могут быть [7] эффективно использованы в энергетических реакторах для получения дополнительной энергии и в других областях промышленности, техники и науки. Только те элементы, которые не могут быть эффективно использованы, подлежат захоронению в геологических формациях.

Выделенные фракции долгоживущих радионуклидов концентрируются в относительно небольших объемах и могут быть иммобилизованы в индивидуальные, специфические для данной фракции матрицы (остекловывание, керамизация, композиция СИНРОК и др.) в целях их утилизации, трансмутации или глубинного захоронения. Все процедуры по селективному извлечению и их иммобилизации производятся на специально созданных радиохимических заводах. В России на РТ-1 ПО «Маяк» (г. Озерск) перерабатывается около 500 т отходов в год, а во всем мире примерно в 10 раз больше. Строительство в России второго завода РТ-2 на Горнохимическом комбинате (г. Железногорск) позволит в 2-3 раза увеличить количество перерабатываемых отходов с лучшим качеством разделения по фракциям. При рассмотрении вопросов утилизации, трансмутации и глубинного захоронения необходимо учитывать требования МАГАТЭ об эквивалентности радиационной нагрузки от размещения в геологических формациях радионуклидов из отходов с радиационной нагрузкой от природного урана, извлеченного из земли и выгоревшего в реакторе с образованием соответствующего количества радионуклидов. Проведенный в работе [7] анализ показывает, что из-за значительной удельной активности и большого времени полураспада (рис. 1) актиниды и продукты деления можно захоранивать в очень ограниченном количестве. Выделенные актиниды, особенно америций, можно помещать в реакторы, сжигать их там и получать дополнительную энергию. Продукты деления, которые не удастся использовать, можно также помещать в реакторы и трансмутировать в короткоживущие или стабильные изотопы.

ОПТИМАЛЬНЫЕ УСЛОВИЯ ТРАНСМУТАЦИИ

Актуальность работ по трансмутации актинидов и продуктов деления требуют всестороннего анализа и поисков оптимальных условий трансмутации, которые до настоящего времени окончательно не определены, поскольку каждый из предлагаемых методов имеет свои преимущества и недостатки. К настоящему времени предложено ряд методов и установок для трансмутации РАО:

- быстрые реакторы [6, 7];
- электроядерные установки, состоящие из быстрого реактора и ускорителя протонов [8-9];
- гибридные установки, основанные на D-T синтезе [10];
- установки, использующие ядерные релятивистские технологии, состоящие из быстрого реактора и ускорителя протонов с энергией 20 ГэВ (ЯРТ) [11].

В данной работе мы попытаемся провести анализ особенностей различных методов трансмутации, используя результаты ранее проведенных нами исследований [1-5].

Предложенные для трансмутации ТРУ и ПД системы выбраны исходя из спектров нейтронов, получаемых в этих системах, а также сечений деления ядер нейтронами и сечений захвата нейтронов ядрами, которые необходимо трансмутировать.

Спектры нейтронов в быстрых реакторах с Pb-Bi охлаждением, электроядерных системах (spallation, $E_{\text{средн.}}=1,32$ МэВ), термоядерных системах (D-T синтез) приведены на рис. 2. Видно, что в энергетическом спектре нейтронов из быстрых реакторов максимум наблюдается при 0,5-0,6 МэВ, в spallation спектре при 1,1-1,4 МэВ, а в установках с D-T синтезом при энергии нейтронов 14 МэВ. В системах, основанных на ядерных

релятивистских технологиях, используются нейтроны с энергией выше 20 МэВ.

На рис. 3 в качестве примера приведены сечения для трансмутации ядер ^{241}Am с помощью реакции деления (n,f) и ядер ^{99}Tc с помощью реакций захвата (n,γ) нейтронов. Подобные зависимости сечений от энергии нейтронов наблюдаются и для других ТРУ и ПД. Видно, что трансмутацию ТРУ можно осуществлять, в основном, быстрыми нейтронами с энергией 0,1 МэВ и выше, а для трансмутации ПД энергию нейтронов необходимо снизить до нескольких кэВ и ниже (резонансные нейтроны).

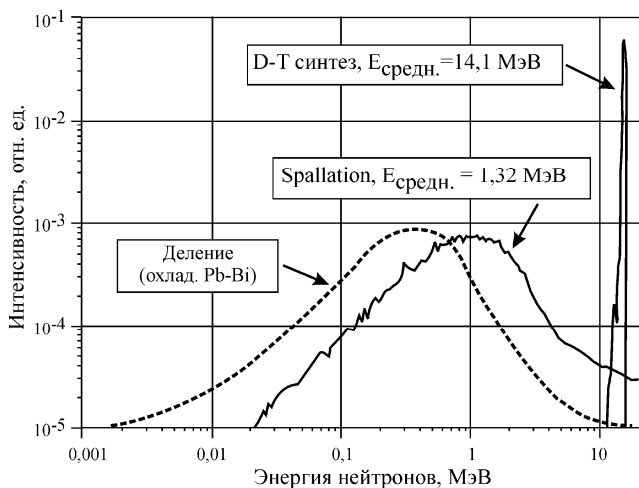


Рис. 2. Спектры нейтронов из реакторов деления, ЭЯС источников и установок с D-T синтезом

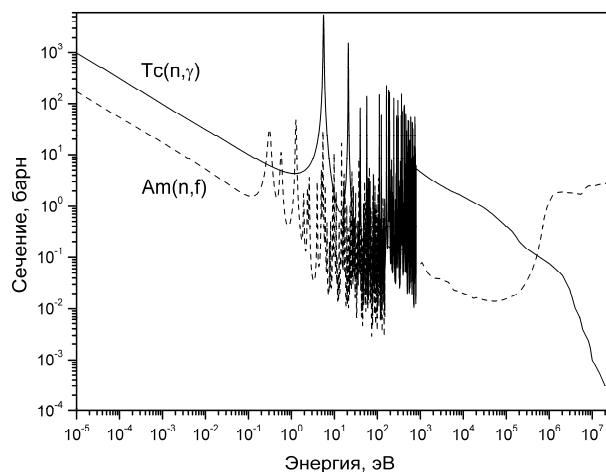


Рис. 3. Зависимости сечения деления нейтронами ядер ^{241}Am и сечения захвата нейтронов ядрами ^{99}Tc от энергии нейтронов

Разумеется, если трансмутировать не просто отдельные ядра, а большие объемы ТРУ и ПД, да еще помещенные для облучения в определенные среды, то спектры будут существенно меняться, становясь менее жесткими.

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ЗАМЕДЛЕНИЯ НЕЙТРОНОВ И ТРАНСМУТАЦИИ ТРУ И ПД

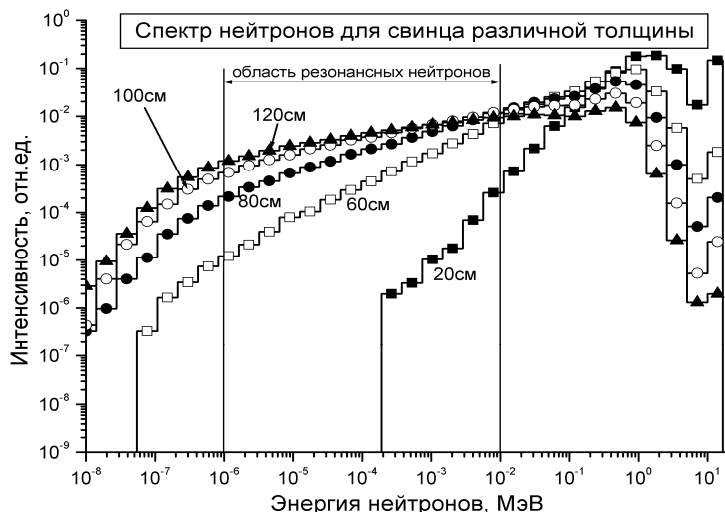


Рис. 4. Спектр нейтронов, прошедших через слой свинца различной толщины

ет отдать предпочтение разделному облучению ТРУ и ПД, поместив между объемами, где они располагаются, дополнительно замедлитель.

Приведенные на рис. 4 спектры нейтронов, прошедших через слой свинца различной толщины 20-120 см, показывают, что свинец является очень удобным замедлителем, поскольку замедление нейтронов происходит в основном за счет упругого рассеяния. Чтобы замедлиться от энергии несколько МэВ до тепловой энергии (0,025 эВ) нейтрон в течение 3 мс претерпевает 1800 столкновений с общей протяженностью пробега 60 м. Из рис. 4 также видно, что с увеличением толщины свинца от 20 до 120 см энергетические спектры становятся менее жесткими. Толщины 100 см достаточно, так как увеличение толщины свинца до 120 см не приводит уже к заметному увеличению количества нейтронов в резонансной области. Видно также, что количество нейтронов в

Мы провели моделирование процессов замедления нейтронов в различных средах, используя метод Монте-Карло и программные коды GEANT и MCNPX. Результаты опубликованы в работах [2-5] и частично представлены на рис. 4 (замедлитель свинец) и на рис. 5 (замедлитель углерод). Здесь представлены результаты для случая, когда на мишени падают термоядерные нейтроны с энергией 14 МэВ. Такие же расчеты были выполнены для нейтронов с энергией 1 МэВ. Нами были просчитаны варианты, когда ТРУ и ПД облучаются совместно и когда ТРУ и ПД облучаются раздельно, и было сделано заключение, что из рассмотренных двух вариантов трансмутации следует

резонансной области при любой толщине свинца меньше, чем в области быстрых нейтронов и это сказывается, как будет отмечено далее, на различной эффективности трансмутации ТРУ и ПД.

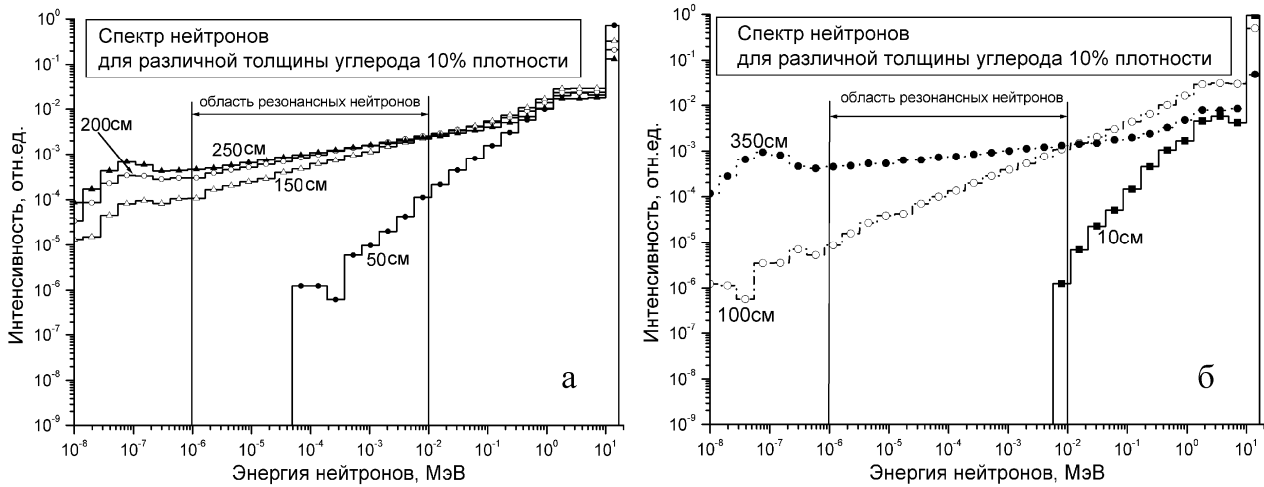


Рис. 5. Спектр нейтронов, прошедших через слой углерода с 10%-й плотностью: а – толщиной 50, 150, 200, 250 см; б – толщиной 10, 100, 350 см

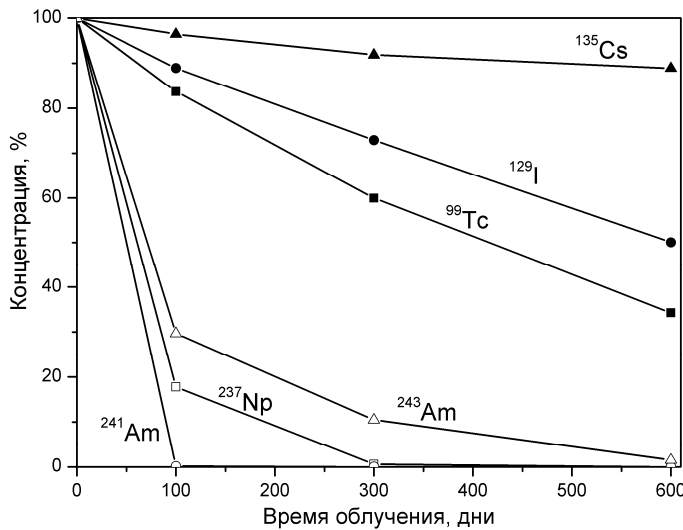


Рис. 6. Изменение концентрации некоторых изотопов от времени облучения

могут эффективно делиться, в то время как в спектре тепловых реакторов (ВВЭР или PWR) многие ТРУ не делятся, а накапливаются как отходы. Это хорошо видно на рис. 7, где представлены вероятности деления ТРУ для теплового и быстрого нейтронных потоков.

Возможность сжигания ТРУ (актинилов) в быстрых реакторах позволяет сжигать актиниды, накопившиеся в РАО за многие годы работы тепловых реакторов.

Однако при загрузке значительного количества актинидов в работе быстрого реактора возникают проблемы. Поскольку сечение деления урана нейтронами с энергией 1 МэВ не превышает 2 барн, то для осуществления цепной реакции на быстрых нейтронах необходима значительная концентрация делящегося вещества в активной зоне – в десять раз больше, чем в активной зоне реактора на тепловых нейтронах. В этом случае быстрый реактор успешно работает, так как в активной зоне испускается в 1,5 раза больше нейтронов деления, чем в активной зоне реактора на тепловых нейтронах. Если же в быстрый реактор загрузить значительное количество ТРУ, то запаздывающих нейтронов будет не хватать для устойчивой работы реактора. Это связано с тем, что число запаздывающих нейтронов, образующихся при делении ядер плутония и малых актинидов, значительно меньше, чем при делении ядер ^{235}U . Так при делении ^{239}Pu это число будет составлять 0,4 по отношению к делению ^{235}U ; для $^{237}\text{Np} \sim 0,7$; $^{241}\text{Am} \sim 0,24$; $^{242}\text{Am} \sim 0,35$; $^{243}\text{Am} \sim 0,54$; $^{244}\text{Cm} \sim 0,2$; $^{245}\text{Cm} \sim 0,3$ и, конечно, при значительной загрузке (15-20%) актинидов коэффициент размножения нейтронов в системе будет меньше единицы ($k \sim 0,98$). Отметим также, что при введении до 10% актинидов реактор устойчиво работает, но тепловыделяющие сборки (ТВС) с актинидами лучше располагать на периферии активной зоны реактора, что естественно ограничивает возможности быстрого реактора по сжиганию актинидов.

Проведенный нами анализ изменения концентрации облучаемых изотопов от времени облучения, выполненный с применением системы FISPACT и представленный на рис. 6, показал, что трансурановые элементы (^{241}Am , ^{237}Np , ^{243}Am) трансмутируются эффективней, чем продукты деления (^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs). Это очень важно, поскольку, как это видно на рис. 1, долговременная радиотоксичность РАО обусловлена, в основном, трансурановыми элементами (актинидами).

СРАВНЕНИЕ ВОЗМОЖНОСТЕЙ РАЗЛИЧНЫХ МЕТОДОВ ТРАНСМУТАЦИИ

Рассмотрим последовательно предложенные к настоящему времени методы трансмутации радиоактивных отходов.

Быстрые реакторы. В быстрых реакторах почти все трансурановые элементы

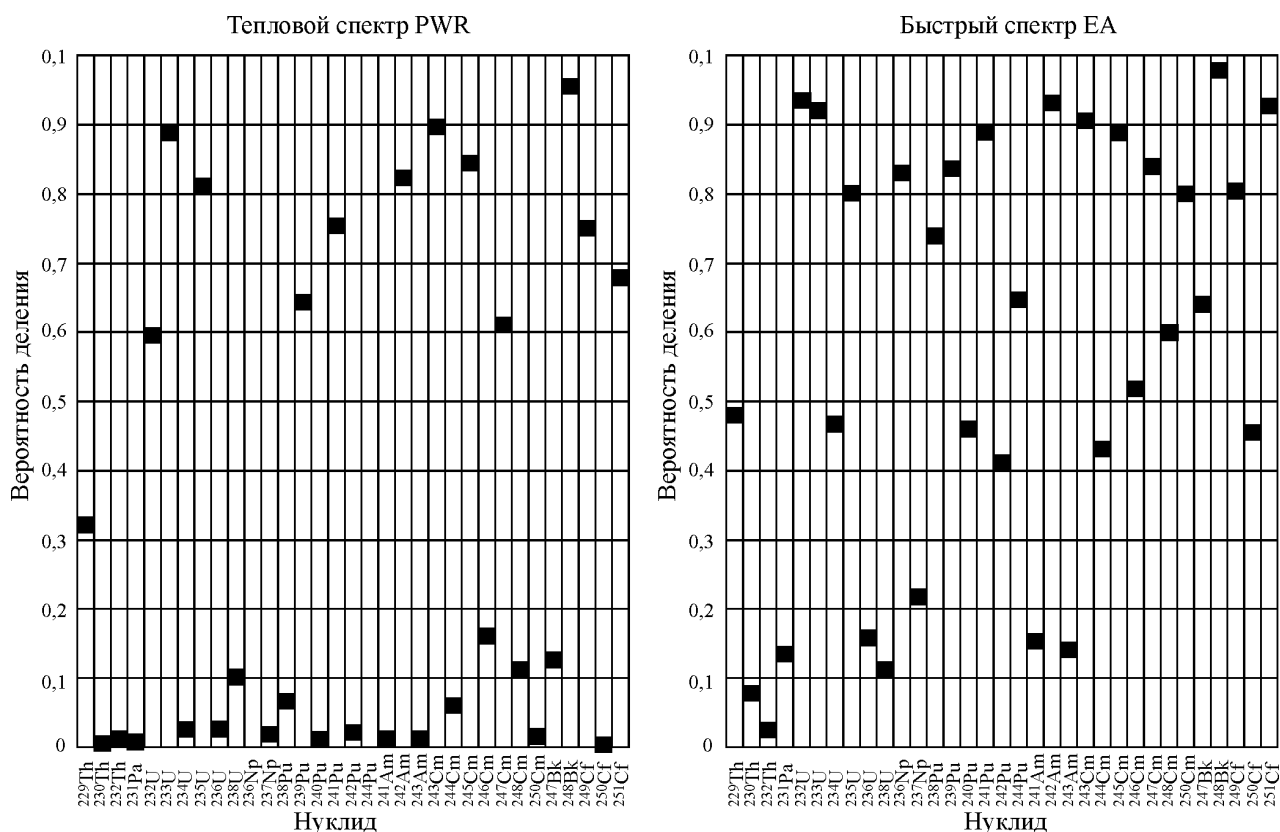


Рис. 7. Вероятности деления актинидов потоками тепловых и быстрых нейтронов. В отличие от теплового нейтронного потока в быстром потоке все ТРУ могут делиться с достаточной эффективностью

Для устойчивой работы реактора в надкритическом режиме необходимо в быстрый реактор с загруженными актинидами вводить дополнительное число нейтронов. Это как раз и делается в электроядерной системе.

Электроядерные системы. В ЭЯС дополнительные нейтроны вводятся при облучении подкритического реактора пучком протонов с последующим образованием нейтронов за счет (p,n)-реакции. Пучок протонов с энергией около 1 ГэВ вводится непосредственно в центр быстрого реактора.

В ряде стран мира в настоящее время разрабатываются электроядерные системы, состоящие из быстрого реактора и ускорителя протонов. Современное состояние разработок ЭЯС и их использование для сжигания и трансмутации ТРУ и ПД описано в работах [8, 9]. Отмечается, что электроядерные системы позволяют сжигать не только свои собственные радиоактивные отходы, но и принять на себя уничтожение таких отходов от других АЭС, затратив на это лишь небольшую часть (до 10%) производимой ими энергии.

В электроядерных системах, как уже отмечалось, спектр нейтронов достаточно жесткий, максимум при 1,1-1,4 МэВ, и это позволяет эффективно сжигать трансураниевые элементы, в то время как продукты деления эффективно (рис. 3) трансмутируются только резонансными нейтронами (0,1 эВ-1 кэВ). Наиболее жесткий спектр нейтронов наблюдается в центре ЭЯС, где образуются нейтроны из (p,n)-реакции. По мере прохождения слоя свинца от центра к периферии спектры нейтронов, как это видно из наших расчетов (рис. 4), становятся менее жесткими, попадая в область резонансных энергий нейтронов. Поэтому размещая продукты деления в приповерхностных слоях ЭЯС можно трансмутировать ПД. Конечно, как это видно из рис. 4, интенсивность потока нейтронов здесь будет меньше чем в центре.

В ЦЕРНе предлагается также гибридная система [9], состоящая из ЭЯС и расположенной вокруг нее камеры, наполненной продуктами деления. В эту камеру из ЭЯС попадают нейтроны резонансных энергий и там происходит эффективная трансмутация ПД. В такой гибридной системе эффективно будут сжигаться актиниды и трансмутироваться продукты деления.

Термоядерный реактор. Весьма перспективными для трансмутации РАО являются предложенные еще две системы. В одной из них [10] планируется совместить термоядерный реактор, дающий нейтроны с энергией 14 МэВ, и расположенный вокруг него обычный ядерный реактор в который помещаются трансураниевые отходы легководных АЭС. В такой гибридной системе будет использоваться термоядерный реактор типа токамак, как и флагманский международный реактор ИТЕР. Разрабатываемые реакторы будут малые по размеру, однако, с высокой мощностью (100 МВт) и, соответственно, очень плотным потоком нейтронов. Планируется, что разрабатываемая в США гибридная система будет способна справиться с отработанным топливом от 10-15 легководных реакторов обычных АЭС.

Ядерные релятивистские технологии. В другой системе [11], развиваемой в России, предлагается в электроядерной системе увеличить энергию протонного пучка до 20 ГэВ. Это позволит увеличить в (p,n) -реакции количество нейтронов с энергией 20 МэВ и выше, учесть роль мезообразования в создании высокоэнергетичных нейтронов, т.е. перейти к ядерным релятивистским технологиям. В ЯРТ используется более жесткий, чем делительный спектр нейтронов и можно эффективно пережигать все актиниды, а также трансформировать долгоживущие продукты деления в короткоживущие.

Эти две системы, вероятно, являются весьма перспективными, но на сегодняшний день требуют глубокой проработки таких вопросов как создание самого термоядерного реактора и создание экономически выгодного ускорителя протонов на 20 ГэВ и др.

Многие из обсуждаемых в статье вопросов детально рассмотрены в обзоре [12], где особо подчеркнута актуальность работ по разделению и трансмутации радиоактивных отходов.

ВЫВОДЫ

Используя результаты ранее проведенных нами исследований трансмутации актинидов и продуктов деления, проведен анализ различных методов и установок для трансмутации, предложенных к настоящему времени в разных странах мира. Рассмотрены возможности использования быстрых реакторов, электроядерных установок, гибридных установок, основанных на D-T синтезе, и установок, использующих ядерные релятивистские технологии. Проведенный анализ показал, что выделенные на радиохимических заводах актиниды уже сегодня можно в небольших количествах сжигать (трансмутировать) в быстрых реакторах. Для увеличения количества сжигаемых актинидов их необходимо загружать в электроядерные системы. Такие ЭЯС в настоящее время интенсивно разрабатываются в разных странах и в ближайшие годы будут введены в действие. Продукты деления будут трансмутироваться в приповерхностных слоях электроядерных систем и особенно эффективно, если ПД разместить в специальные камеры, расположенные вокруг электроядерной системы.

Гибридные установки, основанные на D-T синтезе и установки, использующие ядерные релятивистские технологии также являются весьма перспективными для трансмутации РАО, но на сегодняшний день требуют глубокой проработки. Не исключено, что в ближайшие годы могут быть предложены принципиально новые системы, которые окажутся более дешевыми и более эффективными.

Выражаю благодарность Лукьяновой В.П. за помощь в оформлении статьи.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Slabospickij R.P., Hazhmuradov M.A. Raschet transmutacii osnovnyh jelementov radioaktivnyh othodov pod vozdejstviem termojadernyh nejtronov // Zbirnik naukovih prac' SNUJaEtaP. – Sevastopol': 2007. – Vyp.4(24). – S.207-215.
2. Rudychev E.V., Slabospickij R.P., Hazhmuradov M.A. Fizicheskoe obosnovanie i modelirovanie konstrukcii ustanovki dlja transmutacii otdel'nyh jelementov RAO s ispol'zovaniem termojadernyh nejtronov // Visnik HNU. Seriâ fizična Âdra, častinki, polâ. – 2008. – №823. – S.57-71.
3. Rudychev Y.V., Slabospitskiy R.P., Khazhmuradov M.A. Studies of thermonuclear neutrons usage means for radioactive waste transmutation // Problems of Atomic Science and Technology. Series: Plasma Physics. – 2008. – №6(51). – P.67-69.
4. Rudychev Y.V., Khazhmuradov M.A., Slabospitskiy R.P. Physical ground for radioactive waste transmutation facility using thermonuclear neutrons // Problems of Atomic Science and Technology. Series: Nuclear Physics Investigations. – 2009. – №3(51). – P.61-66.
5. Slabospickij R.P., Rudychev E.V., Hazhmuradov M.A. Transmutacija osnovnyh jelementov radioaktivnyh othodov pod vozdejstviem bystryh nejtronov // Zbirnik naukovih prac' SNUJaEtaP. – Sevastopol': 2009. – Vyp.4 (32). – S.125-134.
6. Jadernaja jenergetika. Obravnenie s otrabotannym jadernym toplivom i radioaktivnymi othodami / Pod redakciej akademika I.M. Nekljudova. – Kiev: Naukova dumka, 2006.
7. Nauchnaja konferencija Minatoma Rossii «Jadernyj toplivnyj cikl». Moskva, ijun' 2000 g. // Atomnaja jenergija. – 2000. – T.89. – Vyp.4. – S.258-308.
8. Bznuni S.A., Barashenkov V.S., Zhamkochjan V.M., Sosnin A.N., Poljanski A., Hudaverjan A.G. Perspektivnyje jelektrojadernye sistemy // Fizika jelementarnyh chastic i atomnogo jadra. – 2003. – T.34. – Vyp.4. – S.976-1032.
9. Rivol' Zh.P. Jelektrojadernaja ustanovka dlja unichtozhenija jadernyh othodov // UFN. – 2003. – T.173, №7. – S.747-755.
10. Gibridnyj reaktor unichtozhit samye opasnye jadernye othody: <http://www.membrana.ru/articles/tecnic/2009/01/29/091200.html>
11. Problemy sozdaniija širokomasshtabnoj jadernoj jenergetiki i jadernye reljativistskie tehnologii (JaRT) <http://tt.www.cftp-aem.ru/Pages/05.html>
12. Gudowski W. Nuclear waste management. Status, prospects and hopes // Nuclear Physics A. – 2005. – Vol.752. – P.623-632.