

Государственная корпорация по атомной энергии «Росатом»
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РФ –
ФИЗИКО – ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ
имени А. И. ЛЕЙПУНСКОГО

ФЭИ—3284

**В. В. Коробейников, В. В. Колесов,
А. М. Терехова, Ю. Е. Каражелевская**

**ИССЛЕДОВАНИЯ ВОЗМОЖНОСТИ ВЫЖИГАНИЯ
И ТРАНСМУТАЦИИ АМ-241 В РЕАКТОРЕ С АМЕРИЦИЕВЫМ
ТОПЛИВОМ**

Обнинск – 2018

В. В. Коробейников, В. В. Колесов, А. М. Терехова, Ю. Е. Каражелевская

Исследования возможности выжигания и трансмутации Am-241 в реакторе с америциевым топливом : Препринт ФЭИ–3284. — Обнинск, ГНЦ РФ–ФЭИ, 2018. — 14 с.

В данной работе исследуется возможность использовать в реакторах топливо из одних только МА, без урана или плутония. Результаты расчёта критических масс показывают, что все интересующие нас минорные актиниды имеют критическую массу, и даже не очень большую. Из результатов сравнения сечений деления и захвата следует, что реактор с топливом в виде Am-241 или Np-237 может быть только на быстрых нейтронах, поскольку в тепловом и промежуточном спектрах сечение захвата существенно превышает сечение деления. Результаты расчётов активных зон модельного быстрого реактора с топливом из одного Am-241 продемонстрировали высокую скорость его трансмутации.

In this paper, we investigate the possibility of using fuel from reactors of minor actinides alone, without uranium or plutonium. The results of the calculation of critical masses show that all the minor actinides of interest to us have a critical mass and even not very large. From the results of the comparison of the fission and capture cross sections, it follows that a reactor with fuel in the form of Am-241 or Np-237 can only be on fast neutrons, since in the thermal and intermediate spectra the capture cross section significantly exceeds the fission cross section. The results of calculations of the cores of a model fast reactor with a fuel from one Am-241 demonstrated a high rate of its transmutation.

ВВЕДЕНИЕ

Обращение с радиоактивными отходами (РАО) ядерной энергетики — один из ключевых вопросов, определяющих приемлемость и масштабы развития этой отрасли энергопроизводства. Отработавшее ядерное топливо (ОЯТ) представляет угрозу для окружающей среды при утечке из хранилищ. В настоящее время проблема надежной изоляции и обезвреживания РАО привлекает большое внимание. Понятно, что полномасштабная демонстрация технологии надежного захоронения РАО на сотни тысяч и миллионы лет 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.

В последние три 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 [1]–[4], так и в перспективных ядерных установках, не доведенных пока до уровня практической реализации (электроядерные [5] и термоядерные [6] установки). В таких установках предполагается использовать достаточно традиционные виды ядерного топлива – урана или/и плутония.

В данной работе исследуется возможность использовать в реакторах топливо из одних только МА, без урана или плутония. Исследуются нейтронно-физические аспекты решения такой задачи.

1. ТРАДИЦИОННЫЕ ПОДХОДЫ К ТРАНСМУТАЦИИ МА

На сегодняшний день долгосрочная стратегия обращения с МА не выбрана ни в одной стране мира. На практике обращение с МА сводится либо к отправке их в хранилища в составе ОЯТ, либо к захоронению в долгосрочных могильниках вместе с продуктами деления. Эти технологии совершенствуются и представляются конкурентоспособным вариантом обращения на обозримое будущее. Вместе с тем развиваются научные подходы и отрабатываются инновационные технологии для конечного этапа ЯТЦ, позволяющие существенно снизить количество радиоактивных отходов, предназначенных для захоронения. Исследуются различные пути решения проблемы безопасного удаления МА на основе фракционирования отходов по времени жизни и разработки стратегий обращения с

каждой из фракций. Имеются две принципиальные возможности физического уничтожения МА: ядерный распад и сжигание/трансмутация.

Трансмутация представляет собой обработку ядерных отходов интенсивным потоком нейтронов реакторов, электроядерных или термоядерных установок с целью превращения трансураниевых радионуклидов, в частности плутония, МА (нептуния, америция и кюрия), в короткоживущие изотопы или стабильные ядра.

Одно из физических обстоятельств, определяющих сложность выбора оптимальной стратегии долгосрочного обращения с МА в вариантах разделения и трансмутации, состоит в том, что с точки зрения избыточного количества нейтронов, которые могут быть использованы для сжигания/трансмутации МА, рассматриваемые системы обладают разным потенциалом.

В реакторах на тепловых нейтронах имеется минимальный избыток нейтронов $\sim 0,1$ сверх нейтронов, идущих на поддержание цепной реакции, на поглощение в конструкционных материалах и утечку. Избыток нейтронов в реакторах на быстрых нейтронах с оксидным топливом составляет $\sim 0,3$.

В подкритических системах с ускорителем избыток нейтронов может достичь 0,7 и более [7]. Проблема состоит в том, что техническая осуществимость и экономика этих систем располагаются в обратном порядке: освоенными являются реакторы на тепловых нейтронах, быстрые реакторы находятся на стадии освоения, подкритические системы – на начальной стадии исследований и демонстраций.

Большой интерес представляет однократное глубокое выжигание актиноидов (до выгорания свыше 90% тяж. ат.) с последующим их захоронением в геологические формации без переработки [8].

Традиционно высокий интерес вызывает трансмутация Am-241 [9]. Америций в основном образуется не в реакторе, а при хранении ОЯТ и в выделенном из него плутонии [10]. Поэтому самым простым способом его выжигания является исключение длительного хранения ОЯТ и использование плутония с высоким содержанием изотопа Pu-241 в качестве топлива быстрых реакторов, где он эффективно делится. В последнее время достаточно много исследований проводится по возможности выжигания минорных актинидов в реакторах на тепловых нейтронах [11].

Как следует из написанного выше, в традиционных подходах ставится задача выбора установки, в которой предполагается провести эффективную трансмутацию МА. Далее возникает задача выбора топлива, к которому будут подмешиваться минорные актиниды, либо места в этих установках, где будут размещаться облучательные устройства с минорными актинидами. Заметим, что минорные актиниды, а также нуклиды, образующиеся в результате захвата ими нейтронов, обладают способностью делиться, поэтому необходимо исследовать, а может ли ядерный реактор работать, если в качестве топлива использовать только их.

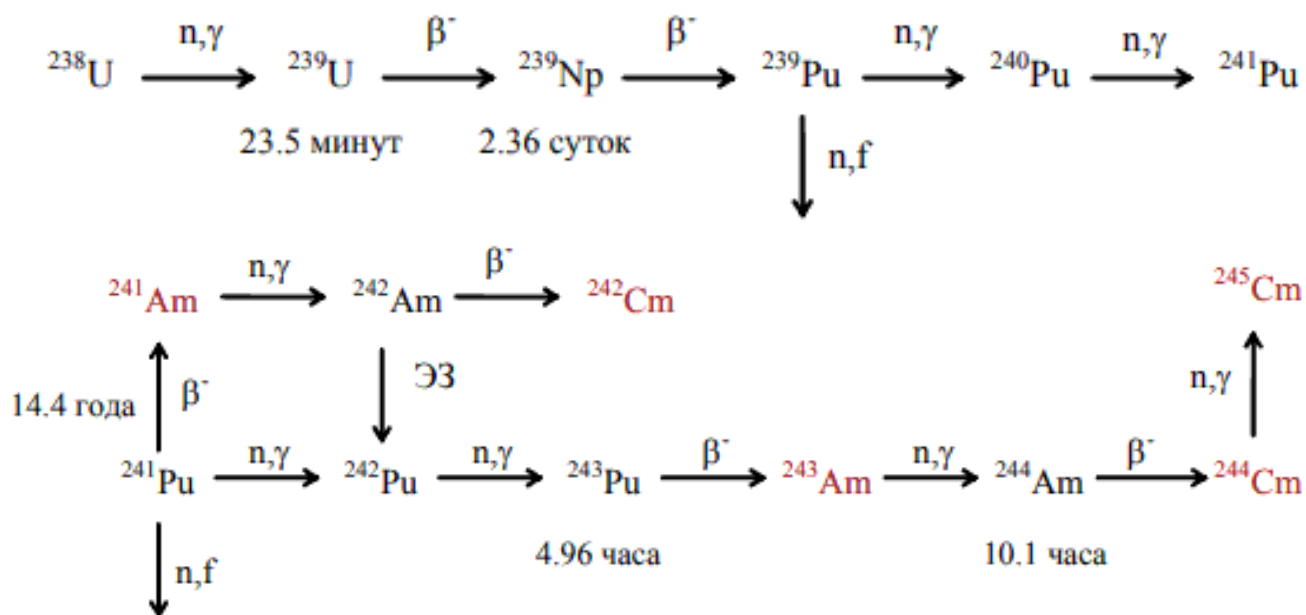
Таблица 1. Критические массы нуклидов

Нуклид	$T_{1/2}$, лет	Тепловыделение (Вт/кг)	Критмасса (кг)
U^{233}	159×10^3	0,281	15,57
U^{235}	700×10^6	6×10^{-5}	46,47
Np^{237}	$2,1 \times 10^6$	0,021	58,97
Pu^{238}	88	560	9,76
Pu^{239}	24×10^3	2,0	9,96
Pu^{240}	$6,54 \times 10^3$	7,0	36,96
Pu^{241}	14,7	6,4	12,77
Pu^{242}	376×10^3	0,12	87,13
Am^{241}	433	115	69,56
Am^{242m}	152	4,5	11,62
Am^{243}	$7,38 \times 10^3$	6,4	144,27
Cm^{242}	163 сут	121228	375,31
Cm^{243}	28,5	1860	12,05
Cm^{244}	18,1	$2,8 \times 10^3$	27,79
Cm^{245}	$8,5 \times 10^3$	5,7	12,59
Cm^{246}	$4,7 \times 10^3$	10	48,61

2. НЕЙТРОННО-ФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА МА И ИХ КРИТМАССЫ

Авторы данной работы рассмотрели детально свойства самих минорных актинидов, связанные, прежде всего, с возможностью образования критической массы, содержащей данные нуклиды. Приведённая в таблице 1 информация показывает, что все интересующие нас минорные актиниды имеют критическую массу, и даже не очень большую. Это наводит на мысль об их использовании в качестве топлива ядерных реакторов. Преимущества реализации такого подхода к трансмутации по сравнению с традиционными достаточно очевидны. Так, если использовать, например, реактор с урановым или МОХ-топливом для трансмутации, то, кроме выжигания «чужих» минорных актинидов, он дополнительно наработает «свои». В случае топлива из одних минорных актинидов он будет выжигать только «свои». На данном этапе мы не будем вникать в задачу, как решить проблемы с высоким тепловыделением радиоактивностью и др. при использовании топлива на основе МА. Прежде всего, рассмотрим цепочки радиоактивных превращений, интересных с точки зрения трансмутации, а также как зависят сечения интересующих нас актинидов от энергии.

Изотопы америция Am-241, Am-243 и изотопы кюрия Cm-242, Cm-244 и Cm-245 нарабатываются на изотопах урана U-238 или плутония по следующим цепочкам:



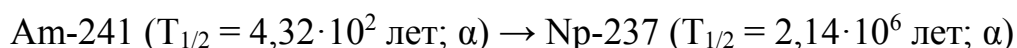
Америций

Am-241

В ОЯТ Am-241 является доминирующим изотопом америция, хотя там есть также

Am-242, Am-242m и Am-243

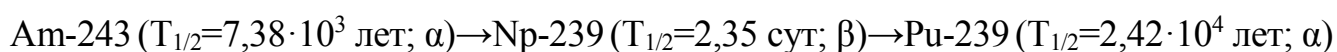
Схема распада Am-241 до ближайшего долгоживущего дочернего ядра имеет вид:



Так как $T_{1/2}(\text{Am-241}) \ll T_{1/2}(\text{Np-237})$, то радиационные характеристики процесса определяются исключительно параметрами распада собственно Am-241.

Am-243

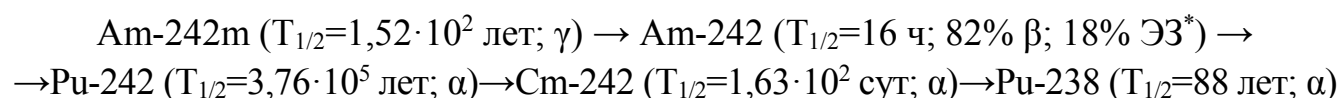
Схема распада Am-243 до ближайшего долгоживущего дочернего ядра имеет вид:



Am-243 и Np-239 находятся в радиационном равновесии и их активности равны.

Am-242m

В реакторах на тепловых нейтронах нарабатывается также долгоживущий изомер Am-242m:



В радиоактивность материала, содержащего Am-242m, дают вклад следующие радионуклиды: Am-242m, Am-242, Cm-242.

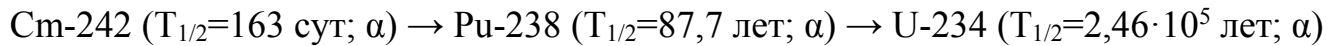
Америций является основным вкладчиком гамма-активности и радиотоксичности ОЯТ приблизительно через 500 лет после выгрузки, когда вклад продуктов деления уменьшается на несколько порядков.

* Электронный захват.

Кюрий

См-242

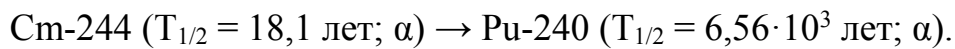
Схема распада См-242 имеет вид:



Активность См-242 быстро падает, при этом активность Pu-238 увеличивается и, довольно быстро, за ≈ 3.4 года, активности Pu-238 и См-242 сравниваются, при этом, активность См-242 уменьшается приблизительно в 200 раз по сравнению с первоначальным уровнем.

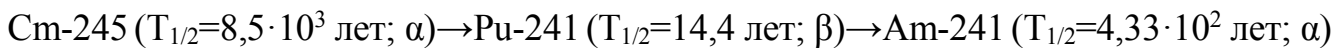
См-244

Схема распада См-244 имеет вид:



См-245

Схема распада См-245 имеет вид:



При $t \gg T_{1/2}(\text{Pu-241})$ активность Pu-241 находится в равновесии с активностью См-245.

Рассмотрим теперь, как зависят от энергии сечения деления и захвата интересующих нас нуклидов. На рисунках 1–3 приведены сечения деления и захвата в зависимости от энергии для некоторых минорных актинидов. На этих же рисунках приведены зависимости от энергии вероятностей деления. Вероятность деления в нашем случае — это отношение сечения деления к сечению поглощения (сечение деления плюс сечение захвата).

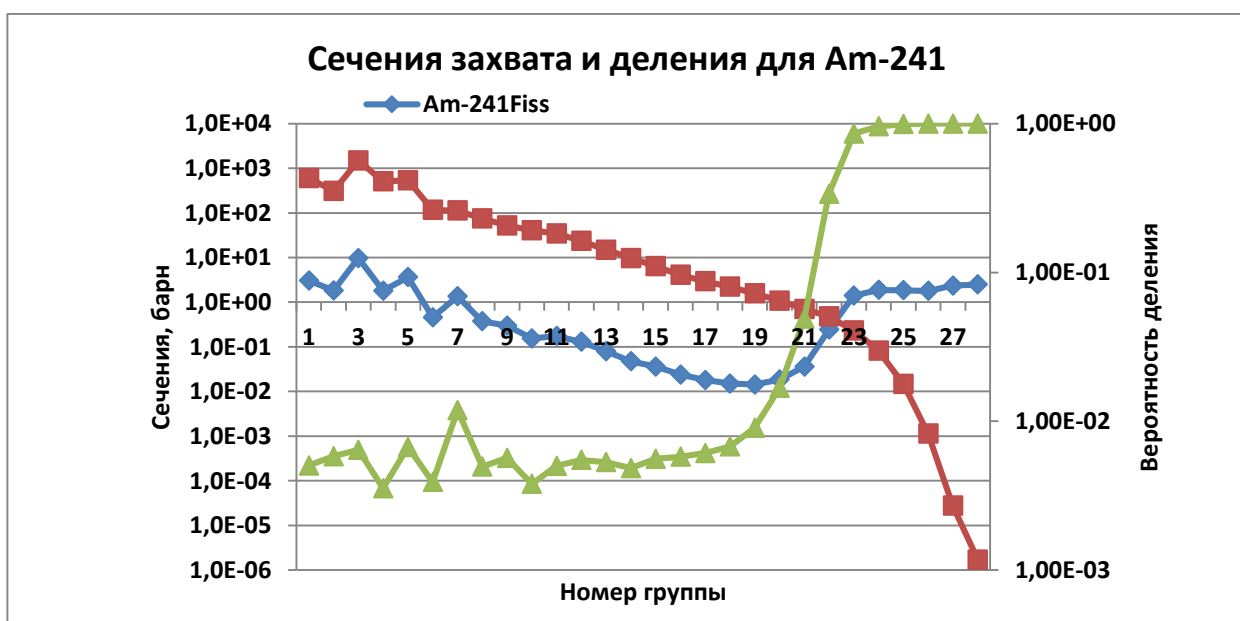


Рис. 1. Зависимость сечения деления и захвата Am-241 от энергии

Из сравнения сечений деления и захвата видно, что реактор с топливом в виде Am-241 или Np-237 может быть только на быстрых нейтронах, поскольку в тепловом и промежуточном спектрах сечение захвата существенно превышает сечение деления.

Если предположить, что для трансмутации чётных изотопов кюрия будет использоваться реактор с топливом из кюрия, то он тоже должен быть на быстрых нейтронах. Для нечётных изотопов ситуация меняется — сечения деления выше сечений захвата во всей области энергий. Для примера на рисунке 3 приведены сечения деления и захвата для Cm-245.

Для расчётных исследований по трансмутации МА использовалась модифицированная зона реактора RBEC [1], в которой объёмная доля топлива – 0,233, стали – 0,116, теплоносителя – 0,625, зазора – 0.028. В ней было заменено уран-плутониевое топливо на Am-241.

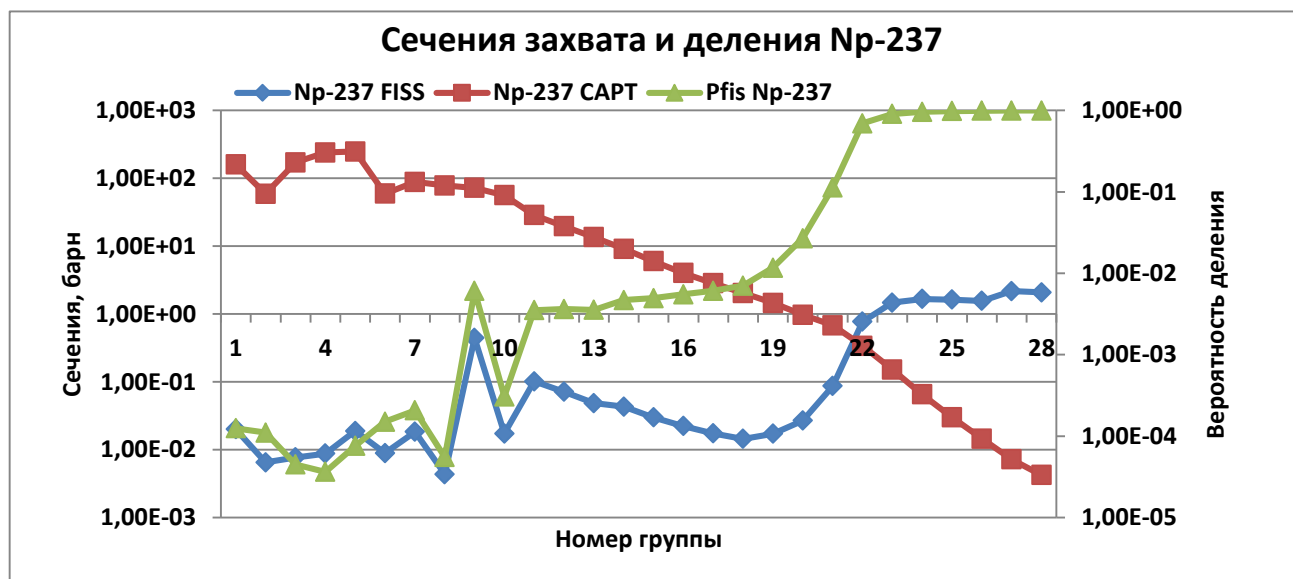


Рис. 2. Зависимость от энергии сечений Np-237

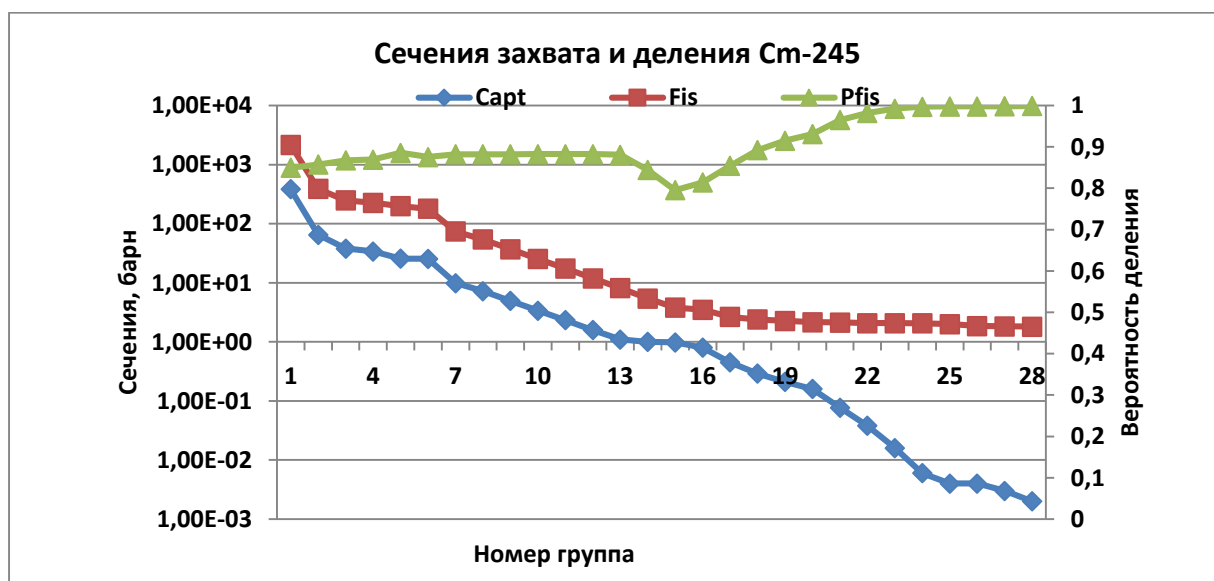


Рис. 3. Зависимость от энергии сечений и вероятности деления для Cm-245

3. РАСЧЁТНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ТРАНСМУТАЦИИ МА В РЕАКТОРЕ С ТОПЛИВОМ АМ-241

В расчётах рассматривались два варианта теплоносителя для модельного реактора с америциевым топливом. В первом варианте в качестве теплоносителя использовался свинец-висмут, во втором — натрий. Для расчётных исследований использовались программные коды, реализующие метод Монте-Карло, SERPENT[13] и MCNP[14]. В обоих кодах реализована возможность учёта изменения изотопного состава топлива в процессе работы ядерного реактора. В таблице 2 приведены результаты расчёта изменения нуклидного состава топлива от времени облучения топлива в реакторе, «стартующего» с топлива Am-241.

Таблица 2. Изменение изотопного состава топлива в процессе его выгорания

Нуклид	0 дней	100 дней	300 дней	500 дней	730 дней	
Np-237		2,757E18	8,108E18	1,325E19	1,891E19	
Pu-238		5,520E18	3,876E19	8,572E19	1,449E20	
Pu-242		6,283E18	1,881E19	3,105E19	4,472E19	
Am-241	6,346E21	6,280E21	6,150E21	6,022E21	5,878E21	
Am-242m		3,207E18	9,386E18	1,523E19	2,152E19	
Cm-242		2,453E19	5,097E19	6,166E19	6,575E19	
Нуклид	2 года	4 года	6 лет	8 лет	10 лет	
U-234	9,213E17	4,563E18	1,065E19	1,868E19	2,822E19	
Np-237	1,891E19	3,520E19	4,918E19	6,107E19	7,106E19	
Pu-238	1,449E20	3,250E20	4,782E20	6,060E20	7,122E20	
Pu-239	1,092E18	5,329E18	1,227E19	2,126E19	3,179E19	
Pu-242	4,472E19	8,519E19	1,217E20	1,549E20	1,850E20	
Am-241	5,878E21	5,447E21	5,049E21	4,680E21	4,336E21	
Am-242m	2,152E19	3,864E19	5,207E19	6,248E19	7,037E19	
Cm-242	6,575E19	6,438E19	6,052E19	5,709E19	5,409E19	
Нуклид	10 лет	15 лет	20 лет	25 лет	30 лет	35 лет
U-234	2,822E19	5,634E19	8,713E19	1,172E20	1,440E20	1,654E20
U-235	4,938E17	1,543E18	3,324E18	5,864E18	9,113E18	1,293E19
Np-237	7,106E19	8,880E19	9,773E19	9,945E19	9,530E19	8,652E19
Pu-238	7,122E20	9,004E20	1,003E21	1,040E21	1,025E21	9,677E20
Pu-239	3,179E19	6,235E19	9,551E19	1,279E20	1,570E20	1,803E20
Pu-240	7,611E17	1,952E18	4,081E18	7,412E18	1,222E19	1,872E19
Pu-242	1,850E20	2,489E20	2,991E20	3,373E20	3,641E20	3,799E20
Am-241	4,336E21	3,566E21	2,902E21	2,325E21	1,823E21	1,388E21
Am-242m	7,037E19	8,154E19	8,385E19	8,016E19	7,245E19	6,221E19
Am-243	6,934E18	1,390E19	2,234E19	3,183E19	4,200E19	5,244E19
Cm-242	5,409E19	4,798E19	4,304E19	3,876E19	3,483E19	3,098E19
Cm-244	4,008E17	1,176E18	2,526E18	4,599E18	7,583E18	1,170E19

На рисунке 4 приведена зависимость сечений захвата и деления в групповом приближении, усреднённых по спектру реактора с америциевым топливом.

На рисунке 5 приведено относительное изменение количества Am-241 в процессе облучения. Если учесть, что начальное количество загруженного Am-241 было около 36 тонн, то через 35 лет его останется примерно 8 тонн, что показывает весьма существенную его трансмутацию. На рисунке 6 приведено изменение Кэфф рассчитываемой системы. Из результатов следует достаточно интересный эффект. Значение Кэфф в начале облучения растёт, а затем падает. Объяснение связано с нарабатываемыми изотопами, которые оказываются более эффективны по вкладу в коэффициент размножения, чем исходный Am-241. Таким образом, возникает эффект воспроизводства нового топлива, которое получается не из специального сырьевого материала типа U-238, а из того же Am-241, который не разделился, а захватил нейтрон, потом распался в Pu-238 и так далее. Этот эффект требует отдельного изучения.

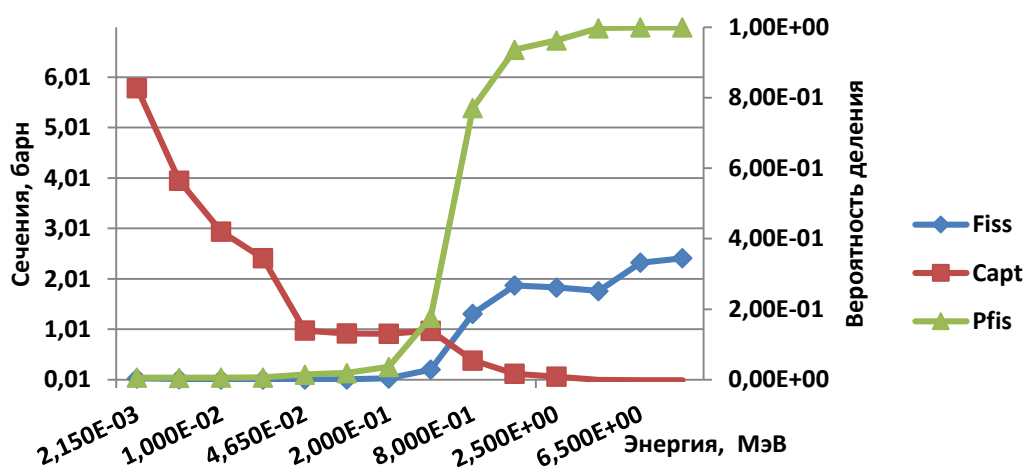


Рис. 4. Групповые сечения Am-241 на спектре реактора

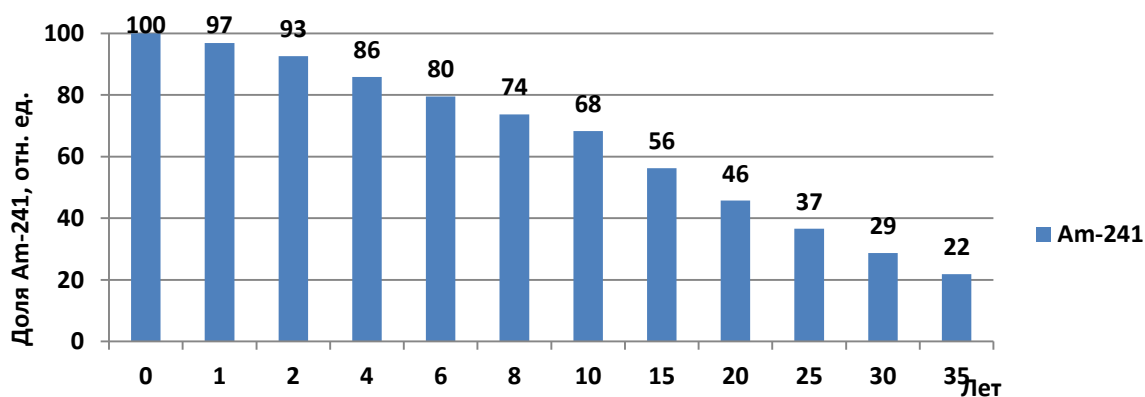


Рис. 5. Изменение ядерной плотности Am-241 в процессе выгорания

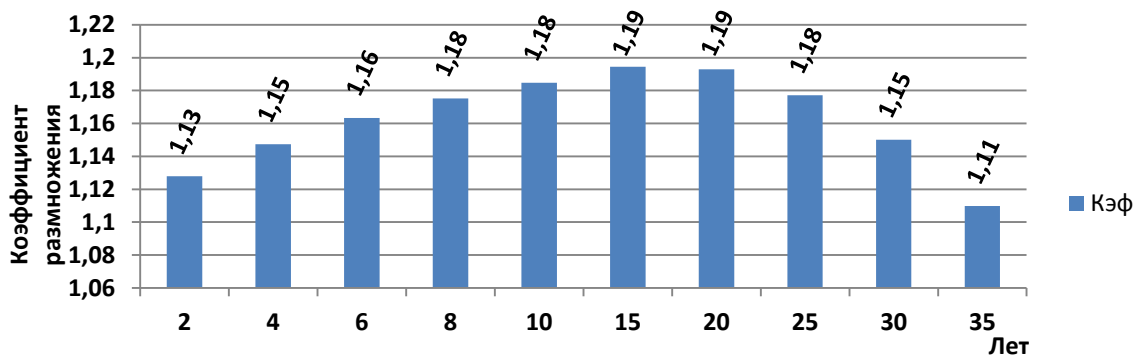


Рис. 6. Изменение Кэфф от времени облучения

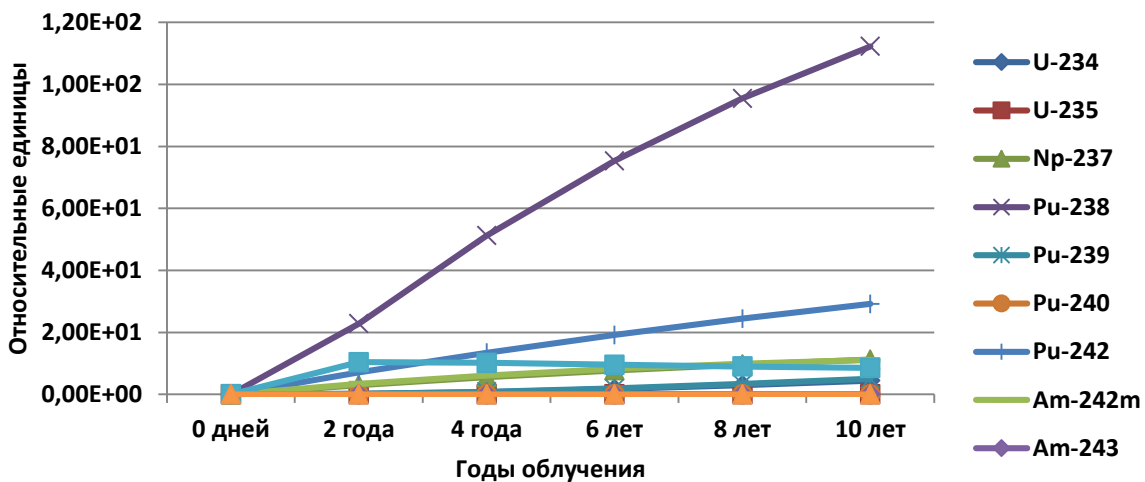


Рис. 7. Накопление нуклидов от времени облучения в реакторе без учёта Am-241

На рисунке 7 показана динамика накопления разных нуклидов в процессе трансмутации Am-241. Виден существенный рост по сравнению с другими Pu-238. Такая ситуация обусловлена достаточно быстрым распадом Cm-242. Следующим по скорости роста становится Pu-239, что также объяснимо захватом нейтрона Pu-238.

Рассмотрим теперь 2-й вариант, в котором в качестве теплоносителя использовался Na. Расчётные исследования реактора с топливом Am-241 с натриевым теплоносителем проводились в том же объёме, что и в предыдущем варианте. Результаты сравнения расчётов изотопного состава через 35 лет для вариантов реактора с Pb+Bi и Na, приведённые на рисунке 8, показывают достаточно похожие результаты.

Изменения эффективного коэффициента размножения для двух вариантов также достаточно похожи (рис. 9).

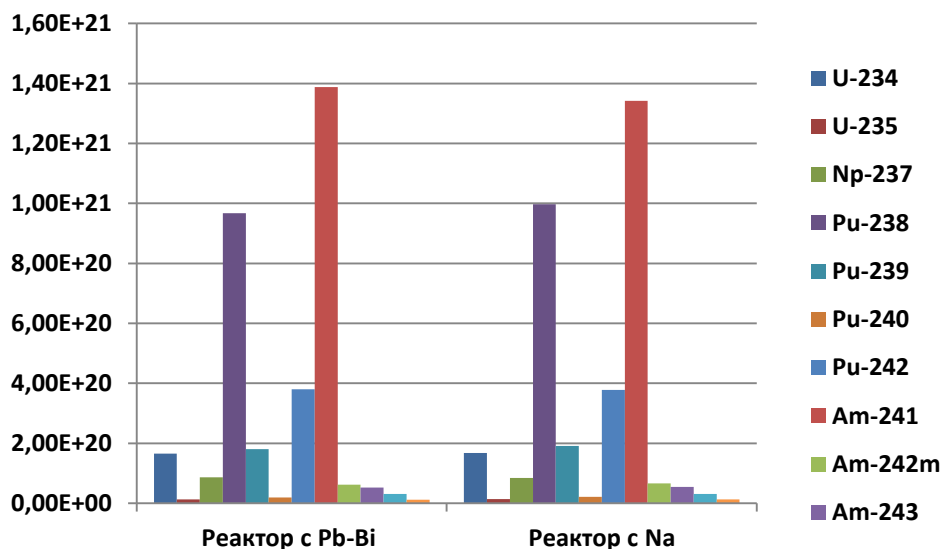


Рис. 8 Сравнение нуклидных составов через 35 лет облучения для реакторов с теплоносителями Pb+Bi и Na

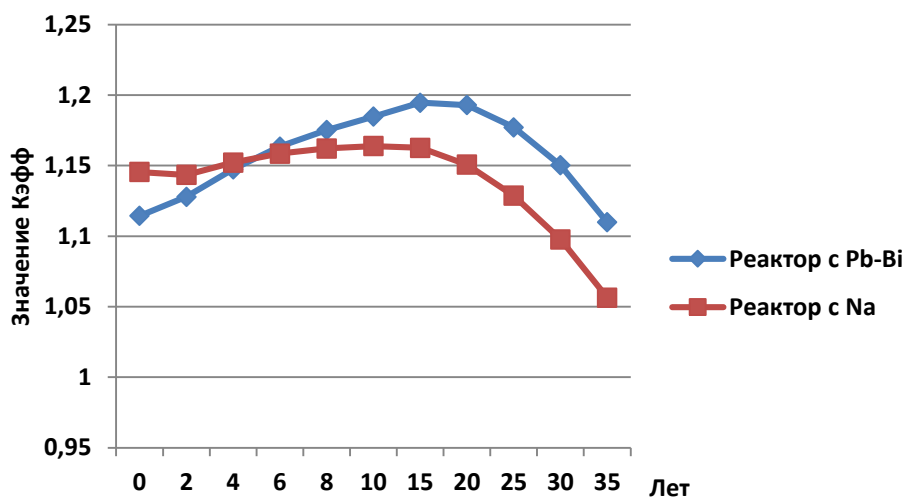


Рис. 9. Сравнение изменения Кэфф от времени облучения для вариантов реакторов с Pb+Bi и Na

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены исследования по трансмутации некоторых минорных актинидов в реакторе с америциевым топливом. Преимущества реализации такого подхода к трансмутации по сравнению с традиционными достаточно очевидны. Так, если использовать, например, реактор с урановым или MOX-топливом для трансмутации, то, кроме выжигания «чужих» минорных актинидов, он дополнительно наработает «свои». В случае топлива из одних минорных актинидов реактор будет выжигать только «свои».

Результаты расчётов показали, что такой реактор может быть только на быстрых нейтронах, что связано с особыми свойствами нейтронных сечений захвата и деления минорных актинидов по сравнению с традиционными топливными нуклидами. Результаты расчётов показали достаточно высокую скорость трансмутации Am-241.

Исследования по трансмутации Am-241 показали довольно интересный эффект. Значение Кэфф в начале облучения растёт, а затем падает. Объяснение связано с нарабатываемыми изотопами, которые оказываются более эффективны по вкладу в коэффициент размножения, чем исходный Am-241.

Важным аргументом в пользу реактора с америциевым топливом является то, что, сжигая долгоживущие отходы, мы получаем электрическую энергию. Усложнение реактора на МОХ-топливе ещё и проблемой трансмутации ухудшает его экономику и его технические параметры.

Открытой остаётся проблема разработки реальной конструкции такого реактора. Необходимо прежде всего решить проблему высокого тепловыделения самого такого топлива.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Use of Fast Reactors for Actinide Transmutation. Proceedings of a Specialists Meeting held in Obninsk. Russian Federation. 22-24 September 1992. IAEA-TECDOC-693. IAEA. 1993.

2. Matveev V.I., Ivanov A.P., Efimenko E.M. Concept of Specialized Fast Reactor for Minor Actinide Burning // In [1], p.114.

3. Гай Е.В., Игнатюк А.В., Работнов Н.С., Шубин Ю.Н. Концепция обращения с долгоживущими ядерными отходами // Известия вузов. Ядерная энергетика. — 1994. — № 1. — С. 17–21.

4. Ганев И.Х., Лопаткин А.В., Орлов В.В. Гетерогенная трансмутация Am, Cm, Np в активной зоне реактора типа БРЕСТ // Атомная энергия. — 2000. — Т. 89, вып. 5. — С. 362–365.

5. Герасимов А.С., Киселёв Г.В. Научно-технические проблемы создания электроядерных установок для трансмутации долгоживущих радиоактивных отходов и одновременного производства энергии (российский опыт) // Физика элементарных частиц и атомного ядра. — 2001. — Т. 32, вып. 1.

6. Попов В.Е., Стребков Ю.С., Сысоев А.Г., Кутеев Б.В., Шпанский Ю.С. Гибридный бланкет термоядерного источника нейтронов и его нейтронно-физические характеристики // Сб. докладов V Междунар. научно-техн. конф. «Инновационные проекты и технологии ядерной энергетика». — 2–5 октября 2018 г., АО «НИКИЭТ», Москва. — М.: АО «НИКИЭТ», 1 CD-ROM. — С. 1056–1062. — URL: <http://istc-2018.nikiyet.ru:8080/apex/f?p=301:1>

7. Salvatores M., Slessarev I., Uematsu M. A Global Physics Approach to Transmutation of Radioactive Nuclei // Nucl. Sci. Eng. — 1994. — 116. — P. 1–18.
8. Елисеев В.А., Поплавская Е.В. Возможности глубокого выжигания америция и нептуния в активной зоне быстрого натриевого реактора // Атомная энергия. — 2004. — Т. 96, вып. 3. — С. 193–199.
9. Поплавский В. М., Чебесков А.Н., Матвеев В.И. Реактор БН-800 как новый этап в развитии технологии быстрых натриевых реакторов // Атомная энергия. — 2004. — Т. 96, вып. 6. — С. 426–432.
10. Декусар В.М., Иванов Р.Э., Деменева И.В., Коробейников В.В. Выбор эффективных сценариев трансмутации МА с учетом экономических затрат / Безопасность АЭС и подготовка кадров: Тезисы докладов XIV международной конференции. — Обнинск, 25–27 ноября 2015. — С. 228–229.
11. Казанский Ю.А., Романов М.И. Трансмутация малых актинидов в спектре нейтронов реактора на тепловых нейтронах // Известия вузов. Ядерная энергетика. — 2014. — №2. — С. 140–146.
12. Алексеев П.Н., Васильев А.В., Микитюк К.О., Субботин С.А., Фомиченко П.А., Щепетина Т.Д. Свинцово-висмутовый быстрый реактор РБЕЦ-М: оптимизация концептуальных решений: Препринт ИАЭ-6229/4. — Москва, 2001.
13. PSG2/SERPENT — A Continious Energy Monte-Carlo Reactor Physics Burnup Calculation Code / Jaakko Leppanen. — Helsinki: VTT Technical Research Centre of Finland, 2015.
14. MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code. Version 5, volume II: user's guide, appendix B / X-5 Monte Carlo Team. — April 2003. — В-2 с.

Подписано к печати 28.01.2018. Формат 60×84 ¹/₁₆. Усл. п. л. 0,6. Уч.-изд. л. 0,7.
Тираж 38 экз. Заказ № 56.

Отпечатано в ОНТИ методом прямого репродуцирования с оригинала авторов.
249033, Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, 1.
ГНЦ РФ – Физико-энергетический институт имени А.И. Лейпунского