

АКЦИОНЕРНОЕ ОБЩЕСТВО
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ —
ФИЗИКО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ
имени А.И. Лейпунского

ФЭИ–3294

Д. А. Косякин, В. В. Коробейников, В. Ю. Стогов

**ИССЛЕДОВАНИЕ ЗАВИСИМОСТИ ЭФФЕКТИВНОСТИ
ТРАНСМУТАЦИИ Am-241 ОТ ЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ СТРУКТУРЫ
ПЛОТНОСТИ НЕЙТРОННОГО ПОТОКА**

Обнинск – 2021

Д. А. Косякин, В. В. Коробейников, В. Ю. Стогов.

Исследование зависимости эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры плотности нейтронного потока: Препринт ФЭИ – 3294, Обнинск, АО «ГНЦ РФ-ФЭИ», 2021. — 38 с.

Ключевые слова: трансмутация, минорные актиниды, отработавшее топливо, радиоактивность, биологическая опасность, хранение отработавшего топлива, спектр нейтронов.

Радикальное сокращения объёмов МА, содержащихся в ОЯТ энергетических реакторов, возможно за счёт их трансмутации — перевода долгоживущих радиоактивных изотопов в короткоживущие или стабильные при их облучении в ядерных реакторах. Однако различие свойств МА, характеристик различных типов ядерных реакторов и способов трансмутации требует проведения комплексной оценки и выбора путей обращения как с отдельными нуклидами — Np-237, Am, Cm, так и выработки общей позиции о способах реализации трансмутации МА.

Особенностью данной работы является исследование зависимости эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры спектра нейтронного потока. Результаты исследования позволяют определить спектральные условия, при которых эффективность трансмутации будет максимальной.

A radical reduction in the MA volumes contained in the SNF of power reactors is possible due to their transmutation — the conversion of long-lived radioactive isotopes into short-lived or stable ones when they are irradiated in nuclear reactors. However, the difference in MA properties, characteristics of various types of nuclear reactors, and transmutation methods requires a comprehensive assessment and selection of ways to handle both individual nuclides — Np-237, Am, Cm, and the development of a common position on the methods of MA transmutation.

A feature of this work is the study of the dependence of the Am-241 transmutation efficiency on the energy structure of the neutron flux spectrum. The results of the study make it possible to determine the spectral conditions under which the efficiency of transmutation will be maximal.

СОДЕРЖАНИЕ

ПЕРЕЧЕНЬ СОКРАЩЕНИЙ И ОБОЗНАЧЕНИЙ	4
ВВЕДЕНИЕ	5
1 Современные направления исследований в области утилизации МА.....	6
1.1 Минорные актиниды и проблемы их обезвреживания.....	6
1.2 Ключевые аспекты процесса трансмутации	9
1.3 Анализ трансмутации МА в действующих ядерных реакторах	10
1.4 Трансмутация МА в перспективных ядерных реакторах.....	14
1.5 Выводы о возможности утилизации МА в действующих и перспективных ядерных реакторах.	16
1.6 Существующие программы НИОКР госкорпорации «Росатом» по направлению дожигания МА	16
1.7 Особенности обращения с различными МА.....	18
2 Исследование зависимости эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры спектра нейтронного потока.....	19
2.1 Цели и задачи исследования.....	19
2.2 Краткое описание используемого программного комплекса ISKRA ...	19
2.3 Описание модели	21
2.4 Результаты расчета.....	21
2.4.1 Эффективность трансмутации Am-241	21
2.4.2 Радиотоксичность образующихся МА.....	30
2.4.3 Выход гелия	31
2.4.4 Методика расчета характеристик Am-241 при трансмутации при облучении на различных спектрах плотности потока нейтронов	32
2.5 Выводы к разделу 2	33
ЗАКЛЮЧЕНИЕ.....	34
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	35

ПЕРЕЧЕНЬ СОКРАЩЕНИЙ И ОБОЗНАЧЕНИЙ

БН	–	реактор на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем
ВАО	–	высокоактивные отходы
ВТГР	–	высокотемпературный газоохлаждаемый реактор
ВВЭР	–	водо-водяной энергетический реактор
ЖСР	–	жидкосолевой реактор
МА	–	младшие актиниды
МОКС-топливо	–	ядерное топливо из оксидов плутония и обедненного урана
ОЯТ	–	отработавшее (облученное) ядерное топливо
РАО	–	радиоактивные отходы
ЯТЦ	–	ядерный топливный цикл
MOSART	–	Molten Salt Actinide Recycler & Transmuter

ВВЕДЕНИЕ

Современная ядерная энергетика базируется на эксплуатации тепловых реакторов в открытом ядерном топливном цикле, что обуславливает ряд присущих ей принципиальных проблем, а именно: прогнозируемый дефицит сырьевой базы и накопление ОЯТ. Первая проблема вызвана малой эффективностью использования энергетического потенциала ресурсов природного урана; вторая — сложностью обращения с ОЯТ и РАО, которое на данный момент является крайне обременительным как с технологической, так и с экономической точек зрения. В рамках существующей ядерно-энергетической системы решить данные проблемы невозможно, поскольку они имеют характер системных недостатков.

Кардинальное решение данных проблем возможно путем формирования ядерной энергетической системы (ЯЭС) с замкнутым топливным циклом и генерирующими мощностями на основе тепловых и быстрых реакторов, получившей название двухкомпонентная ядерная энергетика. В соответствии с утвержденной распоряжением Госкорпорации «Росатом» от 24.05.2018 № 1-1/366-р «Стратегией развития атомной энергетики до 2050 года и перспективой на период до 2100 года» переход к двухкомпонентной структуре ядерной энергетики является ключевым направлением технологического развития России.

Реализация данной концепции требует разработки ядерных технологий нового поколения на базе реакторов на быстрых нейтронах с замкнутым топливным циклом, способных повысить эффективность использования природного урана и обеспечить рентабельность переработки ОЯТ и дальнейшего использования ряда содержащихся в нем нуклидов.

В данной работе представлено исследование в области утилизации минорных актинидов (МА). Радикальное сокращения объёмов МА, содержащихся в ОЯТ энергетических реакторов, возможно за счёт их трансмутации — перевода долгоживущих радиоактивных изотопов в короткоживущие или стабильные при их облучении в ядерных реакторах. Однако различие свойств МА, характеристик различных типов ядерных реакторов и способов трансмутации требует проведения комплексной оценки и выбора путей обращения как с отдельными нуклидами — Np-237, Am, Cm, так и выработки общей позиции о способах реализации трансмутации МА.

Данная работа ставит своей целью исследование зависимости эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры плотности нейтронного потока.

В первом разделе представлено описание характеристик МА и их влияния на обращение с ОЯТ; дано краткое теоретическое описание процесса трансмутации МА; отражены условия трансмутации и предпосылки к раз-

дельному обращению с различными МА, освещены различные подходы к трансмутации и исследования, оценивающие возможность и перспективность трансмутации в тех или иных ядерных установках.

Во втором разделе представлено исследование, посвященное изучению зависимости эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры нейтронного потока.

1 Современные направления исследований в области утилизации МА

1.1 Минорные актиниды и проблемы их обезвреживания

Минорные актиниды — это изотопы америция, кюрия и нептуния, образующиеся в результате работы реактора и оказывающие существенное влияние на способы обращения с ОЯТ и РАО. Это обусловлено тем, что, несмотря на небольшую наработку в реакторах, МА вносят существенный вклад в тепловыделение и радиотоксичность ОЯТ в долгосрочной перспективе. Цепочки наработки минорных актинидов приведены на рисунке 1.

Стоит отдельно отметить, что наработка Am-241 происходит преимущественно не в реакторах, а в хранилищах ОЯТ тепловых реакторов за счет β -распада изотопа Pu-241 [1]. Поэтому замыкание топливного цикла по плутонию является первостепенной задачей в решении проблемы накопления Am-241.

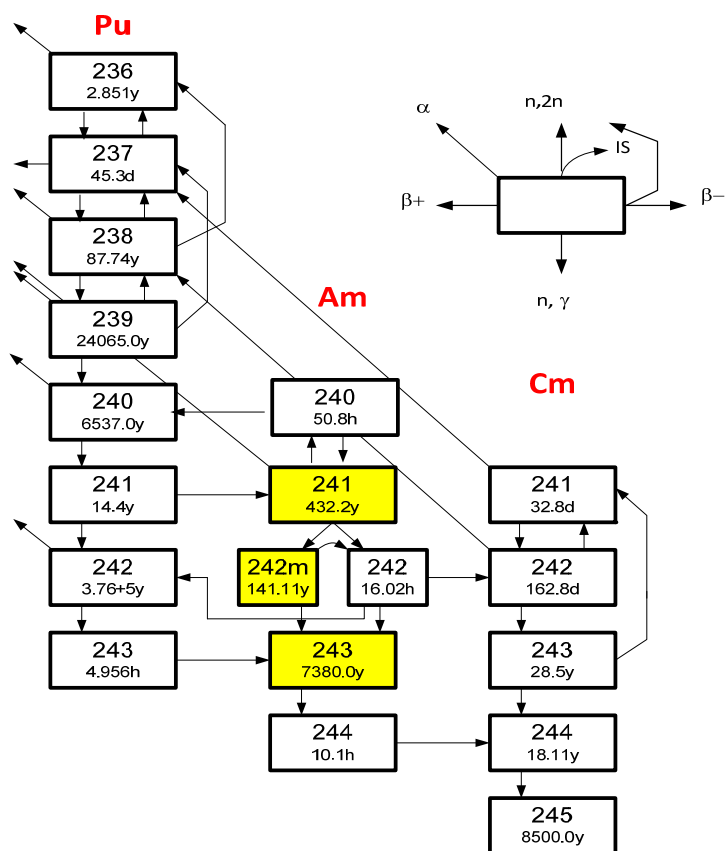


Рис. 1. Цепочки наработки минорных актинидов

Основные характеристики МА приведены в таблице 1.

Таблица 1. Основные характеристики МА, содержащихся в ОЯТ

Изотоп	$T_{1/2}$ годы	Удельная активность Кю/г	Распад
Np-237	2,14E+06	7,04E-04	α -распад
Am-241	4,32E+02	3,43E+00	α -распад
Am-242m	1,41E+02	1,05E+01	99,55% γ -переходы 0,45% α -распад
Am-243	7,37E+03	2,00E-01	α -распад
Cm-242	2,6E-1	5,76E+03	99,71% α -распад 0,29% β -распад
Cm-243	2.91E+1	5,06E+01	α -распад
Cm-244	1,81E+01	8,09E+01	α -распад
Cm-245	8,50E+03	1,72E-01	α -распад
Cm-246	4,76E+03	3,05E-01	99,97% α -распад 0,03% спонтанное деление

Как можно заметить, большинство МА, накапливаемых в ОЯТ, имеют большие периоды полураспада, а основным каналом реакции для них является альфа-распад.

Опасность МА обусловлена тем, что их активность остается высокой на протяжении сотен тысяч и даже миллионов лет (рис. 2). На такой большой срок не представляется возможным гарантировать высокую надежность сохранения целостности могильника с РАО и исключить возможность попадания радионуклидов в окружающую среду даже при их медленной миграции.

Так основной вклад в активность свежевыгруженного ОЯТ легководных реакторов вносит распад ПД, но уже через 150 – 200 лет выдержки определяющую роль начинают играть актиниды. Примерно через 600 лет вклад МА в активность РАО начинает снижаться, перестаёт быть значимым через ~5 000 лет и практически исчезает через ~10 000 лет.

Уровень тепловыделения и радиационная активность являются основными факторами, непосредственно определяющими характер длительного обращения с ядерными отходами. Выделение и отдельное обращение с каждой из фракций в зависимости от их особенностей — периода полураспада, дочерних элементов, ядерно-физических и физико-химических характеристик — позволит обеспечить снижение их влияния на конечные формы

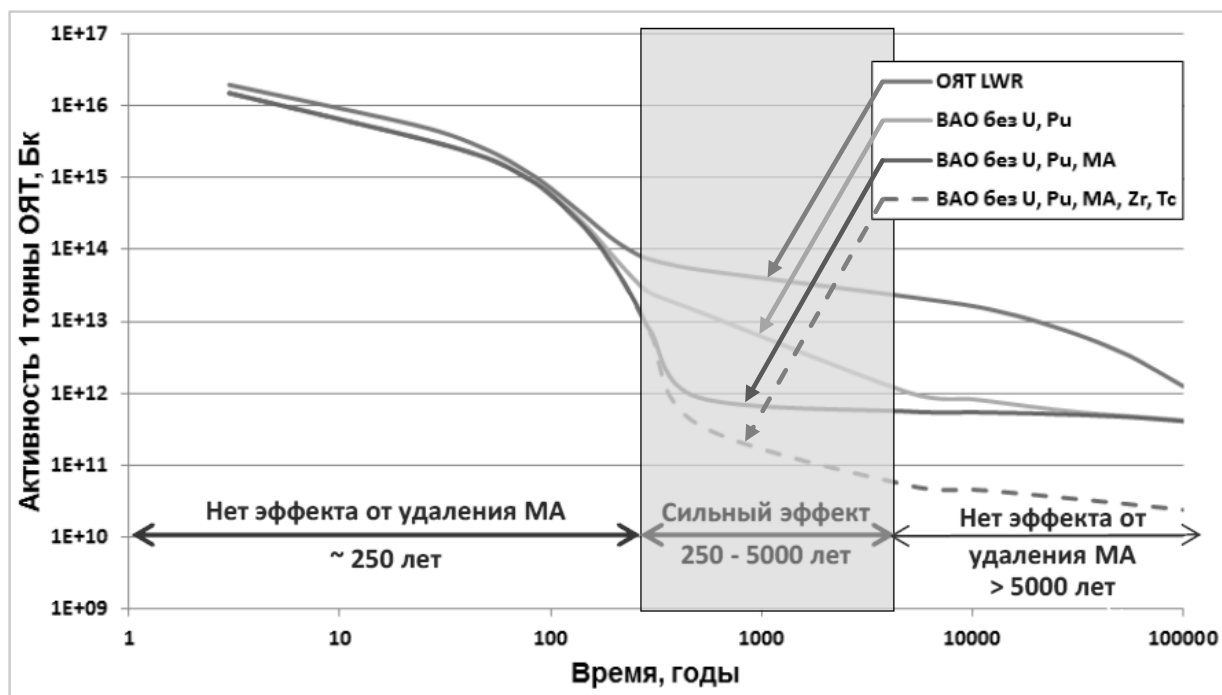


Рис. 2. Зависимость активности 1 тонны ОЯТ/БАО LWR от времени [2]

РАО и уменьшить затраты для их последующего размещения в пунктах окончательной геологической изоляции.

Принятая в России «Стратегия-2018» Госкорпорации «Росатом» предполагает создание замкнутого ЯТЦ, в котором будет осуществляться многократный рецикл Pu из ОЯТ как тепловых, так и быстрых реакторов. В рамках данной концепции планируется извлечение Pu при переработке облучённого топлива, что исключает влияние его изотопов на параметры матриц для иммобилизации РАО и их вклад в тепловыделение при окончательном захоронении БАО. Быстрый возврат Pu в топливный цикл и его использование в топливе ядерных реакторов позволит свести к минимуму дополнительное накопление Am-241.

Среди МА наибольшее влияние на параметры захоронения БАО оказывают изотопы америция (Am-241, Am-243) и кюрия (Cm-242, Cm-243, Cm-244), при больших временах хранения — Np-237.

Часть изотопов кюрия обладают высокой активностью, тепловыделением и относительно короткими периодами полураспада, что делает обоснованным выделение и последующее хранение Cm в перерабатываемой форме на протяжении порядка 100 лет. За это время весь Cm-242, ~90% Cm-243 и ~98% Cm-244 (основной изотоп Cm в ОЯТ) распадутся в изотопы Pu. Организация же дистанционного производства топлива с включением Cm представляется нецелесообразной, так как потребует более мощной биологической защиты, чем для изотопов Am, из-за его большей удельной активности.

Изотоп Np-237 обладает меньшей активностью (меньше, чем у изотопов плутония), наибольшим из рассматриваемых МА периодом полураспада и значительным содержанием в ОЯТ (~50% от массы МА). При длительных временах хранения ВАО, порядка 1 000 лет, возрастает его вклад в общую активность за счёт образования Np-237 при распаде Am-241. Эти факторы делают приемлемым как захоронение Np-237 в пунктах окончательной геологической изоляции, так и его включение в топливо и трансмутацию в реакторах с быстрым спектром нейтронов.

Тепловыделение МА напрямую влияет на физические параметры матриц и глубинных пунктов захоронения.

В итоге, сокращение затрат на сооружение и эксплуатацию объектов окончательной геологической изоляции влечет за собой необходимость фракционирования ВАО и трансмутации МА. Расчёт этих затрат должен включать стоимость выполнения дополнительных НИОКР, выделения МА, фабрикации топлива с добавлением МА и затраты на обращение с ОЯТ после дожигания МА, а также учитывать принятые в конкретной стране временные горизонты и методики оценки рисков естественной деградации и интрузивного вскрытия пунктов захоронения.

Суммируя вышесказанное можно отметить, что если на начальном временном промежутке основной вклад в активность и тепловыделение вносят содержащиеся ПД, то после ~200 лет активность и тепловыделение определяется изотопами Am и Cm. На временных интервалах более 100 000 лет радиоактивность РАО будут определять ультрадолгоживущие радионуклиды, в том числе Np-237.

Удаление МА из образующихся РАО приведёт к уменьшению активности, включаемой в твёрдые инертные матрицы для их последующего захоронения в подземных репозиториях, и сокращению площади пунктов окончательной геологической изоляции за счёт уменьшения тепловыделения конечных ВАО.

1.2 Ключевые аспекты процесса трансмутации

Процесс трансмутации определяется как перевод МА и их дочерних нуклидов в стабильные или короткоживущие продукты деления [3].

В таблице 2 представлена вероятность деления на одно поглощение нейтрона $P_{fis} = \sigma_f / (\sigma_c + \sigma_f)$ в тепловой, промежуточной и быстрой областях энергий, где σ_f и σ_c — микроскопические сечения деления и радиационного захвата нейтронов, соответственно.

Видно, что для всех МА отношения сечения деления к сечению поглощения нейтронов в быстрой области энергий выше, чем в тепловой. Особенно значительно этот показатель возрастает для чётных изотопов Pu и изото-

пов МА, составляющих их основную массу в ОЯТ (Np-237, Am-241, Am-243, Cm-244). Вероятность деления остаётся достаточно низкой для изотопов Np-237, Am-241, Am-243, Cm-244 и в промежуточном спектре нейтронов. Таким образом, для лучшей трансмутации МА необходим жёсткий спектр, характерный для реакторов на быстрых нейтронах, и минимизация замедляющих элементов в активной зоне реактора.

Таблица 2. Число делений на одно поглощение нейтрона в тепловой, промежуточной и быстрой областях энергий для МА, содержащихся в ОЯТ ВВЭР [4]

Нуклид	$P_{fis} (E_n \approx 0,025 \text{ эВ})$	$P_{fis} (E_n \approx 100 \text{ кэВ})$	$P_{fis} (E_n \approx 2 \text{ МэВ})$
Pu-238	0,041	0,5	0,945
Pu-239	0,734	0,818	0,972
Pu-240	$0,125 \cdot 10^{-3}$	0,142	0,942
Pu-241	0,735	0,869	0,958
Pu-242	$0,123 \cdot 10^{-3}$	0,024	0,921
Np-237	$0,113 \cdot 10^{-3}$	0,007	0,932
Am-241	0,005	0,009	0,854
Am-242m	0,849	0,857	0,974
Am-243	0,001	0,007	0,853
Am-244	0,697	0,541	0,915
Cm-242	0,196	0,230	0,911
Cm-243	0,817	0,897	0,973
Cm-244	0,063	0,107	0,937

1.3 Анализ трансмутации МА в действующих ядерных реакторах

Чаще всего рассматривают два варианта трансмутации: гомогенный и гетерогенный.

Гомогенная трансмутация представляет собой включение в топливо стандартных ТВС определенного количества МА. Такой вариант трансмутации привлекает своей простотой, поскольку конструкция топливных ТВС не изменяется.

Концепция гетерогенного выжигания МА предполагает производство отдельных специализированных ТВС и/или сборок бокового экрана (СБЭ) для быстрых реакторов, конструкция которых может значительно отличаться от штатных.

Стоит отметить общую проблему для всех твердотопливных реакторов, связанную с необходимостью переработки и изготовления высокоактивного топлива, содержащего МА. Помимо внедрения автоматизированной линии

по изготовлению топлива с увеличенной биологической защитой, необходима также более продолжительная выдержка ОЯТ после извлечения из реактора, чем для UOX или МОКС-топлива. Это приведёт к увеличению массы МА в топливном цикле и общего удорожания топливной компоненты стоимости электроэнергии.

Оценка возможности утилизации МА в легководных реакторах типа LWR

Привлекательность возможности трансмутации МА в реакторах типа LWR обусловлена большим сечением их радиационного захвата. Наиболее эффективно возможно осуществить утилизацию Am-241, который после поглощения нейтрона переходит в Am-242m с большим сечением деления в тепловом спектре нейтронов [5], [6].

Основные проблемы: снижение запаса реактивности из-за больших сечений поглощения МА, которое возможно скомпенсировать увеличением обогащения топлива [7]; и ухудшение параметров безопасности, что решается путем увеличения водо-уранового соотношения для получения удовлетворительного спектра нейтронов. Это достигается за счёт уменьшения диаметра твэла [8] или за счёт уменьшения плотности топлива при сохранении той же геометрии решетки [9].

Как показывают исследования, в действующем парке ядерных реакторов LWR возможна лишь частичная трансмутация МА.

Оценка возможности утилизации МА в реакторах на тяжелой воде

Другим достаточно распространённым типом ядерных реакторов являются тяжеловодные реакторы. Тяжеловодные реакторы обладают рядом конструктивных преимуществ, способствующих более эффективной, чем в LWR, трансмутации МА.

Обобщенные выводы расчётных исследований различных вариантов утилизации МА в тяжеловодных реакторах представлены в работах [10], [11].

Оценка возможности утилизации МА в быстрых реакторах с натриевым теплоносителем

Среди зарубежных стран наибольший экспериментальный опыт был получен во Франции.

В рамках эксперимента SUPERFACT в 1986 – 1987 годах на реакторе Phénix были получены первые результаты по гомогенной трансмутации Np и Am [12] В 1991 г. во Франции была начата исследовательская программа в области фракционирования и трансмутации [13].

В 2004 году на реакторе Phénix были проведены эксперименты, которые продемонстрировали степень дожигания Am и Cm, близкую к 100%.

Гомогенное дожигание МА (Np, Am, Cm) исследовалось в экспериментах METAPHIX-1, 2, 3.

В экспериментах MATINA исследовались инертные матрицы (MgO , MgAl_2O_4 , Al_2O_3 , $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ и TiN) для гетерогенного дожигания МА [14].

Францией, совместно с Департаментом энергетики США (DOE) и Европейским исследовательским центром Institute for Transuranium Elements, в реакторе Phénix был проведен эксперимент FUTURIX-FTA, где изучалось поведение топливных композиций, рассматриваемых в качестве перспективных для топлива будущих реакторов-утилизаторов МА [15]. В настоящее время ещё продолжаются послереакторные исследования топлива [16], [17].

Возможность гомогенного выжигания МА в металлическом топливе быстрого натриевого реактора была продемонстрирована в США на реакторе EBR-II в ходе эксперимента X501 [17], [18]. В Японии в 2006 году на реакторе Жоуо проводился эксперимент AM-1, в ходе которого было подтверждено, что МОКС-топливо с включением МА не расплавляется. Послереакторные исследования подтвердили отсутствие негативного влияния на МОКС-топливо включения МА в его состав [19].

В России в рамках различных программ НИОКР, реализуемых Госкорпорацией «Росатом», был проведён ряд экспериментов гомогенного и гетерогенного облучения МА в исследовательском быстром натриевом реакторе BOR-60, а также планируется полномасштабная демонстрация дожигания МА в энергетическом реакторе БН-800.

В рамках программы DOVITA в 1992 – 1994 годах в АО «ГНЦ НИИАР» было изготовлено два экспериментальных твэла с виброуплотнённым $(\text{U}, \text{Np})\text{O}_2$ топливом, содержащих до 5% Np-237. Твэлы облучались в активной зоне реактора BOR-60 до достижения выгорания 12,5% и 19,5% тяжёлых ядер. Послереакторные исследования показали, что уменьшение массы Np-237 составило 16,9% и 19,0% от изначальной [20].

С 1998 по 2001 гг. был проведен эксперимент по уточнению ядерно-физических констант, в ходе которого облучалось 8 ампул, содержащих актиниды [21].

Интересным исследованием в части выжигания МА в реакторах типа БН является моделирование работы быстрого натриевого реактора с полностью америциевым топливом. В работе [1] рассматривалась модифицированная зона реактора RBEC, в которой уран-плутониевое топливо было заменено на Am. Моделирование продемонстрировало принципиальную возможность работы ядерного реактора, делящимся изотопом которого является Am-241, без учёта технических сложностей, связанных с изготовлением и обращением с америциевым топливом. Так, при начальной загрузке Am порядка 36 тонн, за 35 лет работы реактора в нём будет трансмутировано по-

рядка 80% от исходной массы. Однако только 60% общего количества трансмутированного Am подвергнется делению, а оставшиеся 40% перейдёт в другие изотопы актинидов, в основном Pu-238 и Pu-240.

В рамках проекта МАГАТЭ «Изучение вариантов перспективных реакторных технологий для эффективной утилизации РАО» [22] в АО «ГНЦ РФ – ФЭИ» с привлечением экспертов АО «Концерн Росэнергоатом» и Госкорпорации «Росатом» проводились расчётные исследования по оценке эффективности различных способов выжигания Am в реакторе БН-800 [23]. Стоит отметить, что ОТВС быстрых реакторов, использовавшиеся для трансмутации МА, характеризуются большим тепловыделением по сравнению с обычными ОТВС, особенно в варианте гетерогенной трансмутации (рис. 3).

В итоге, после гетерогенной трансмутации МА, ОТВС-МА нуждаются в выдержке с охлаждением жидким натрием до приемлемого для переработки уровня тепловыделения (7,5 кВт) в течение порядка 10 лет вместо примерно 150 дней для обычных ОТВС и 1 года для ОТВС после гомогенной трансмутации МА. Таким образом, существующие и разрабатываемые критические реакторы с жидкометаллическим теплоносителем посредством спектра нейтронов и большой плотности потока нейтронов позволяют более эффективно утилизировать как изотопы Np и Am за счёт их деления быстрыми нейтронами, так и Pu. Однако остаётся проблема накопления изотопов Cm, а также ряд сложностей, возникающих при обращении с топливом, включающим МА, таких как необходимость длительной выдержки ОТВС-МА в жидком натрии, что приводит к существенному удорожанию такого проекта.

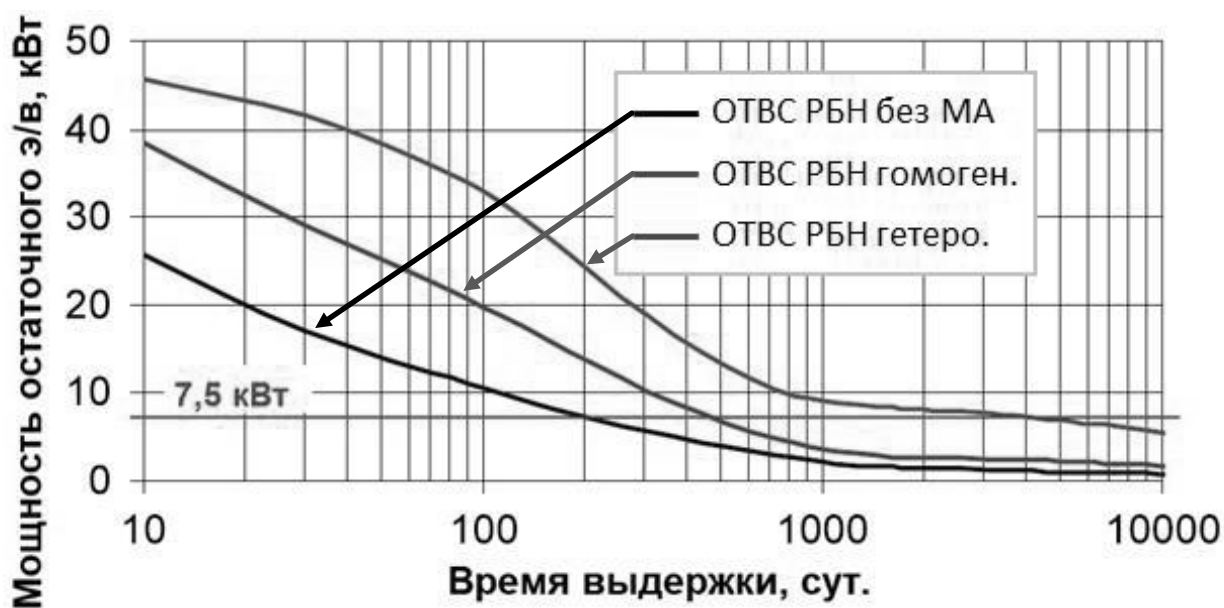


Рис. 3. Мощность остаточного тепловыделения ОТВС РБН в зависимости от длительности охлаждения [23]

1.4 Трансмутация МА в перспективных ядерных реакторах

Оценка возможности утилизации МА в высокотемпературных реакторах с тепловым спектром нейтронов

Изучение различных характеристики двух типов ВТГР с призматическими и сферическими топливными элементами, в том числе и возможность выжигания МА, рассматривалось в рамках проекта PUMA (Plutonium and Minor Actinide Management in Thermal High-Temperature Gas-Cooled Reactors), организованного Европейским сообществом по атомной энергии (EURATOM) и объединившего 14 европейских организаций и одну организацию из США [24].

Расчётные исследования, выполненные в рамках проекта PUMA, рассматривали несколько вариантов топлива с МА. Расчёты показали, что для ВТГР со сферическим топливом PuMA при выгорании 661,3 МВт·сут/кг ТМ достигнуто снижение изначальной массы Np-237 примерно в 4 раза, Am-241 примерно в 10 раз, Am-242m примерно в 3 раза. Но даже при столь значительном выгорании топлива, изначальная масса Am-243 возросла в 2,5 раза.

Схожие тенденции наблюдаются и для других типов сферического топлива: Pu2xMA, IMX, WP, а также и для ВТГР с призматическим топливом [24], [25].

Оценка возможности утилизации МА в быстрых критических реакторах со свинцовым теплоносителем

Одним из перспективным проектов, находящихся на высокой стадии разработки, является быстрый реактор со свинцовым теплоносителем.

Румынией разрабатывается проект ALFRED, инициированный как общеевропейский проект и включающий в себя такие организации, как Румынский исследовательский институт (Romanian Research Institute, INR), итальянскую промышленную компанию ANSALDO и Национальное агентство Италии по новым технологиям, энергетике и экономическим решениям (ENEA) [26]. В 2019 году румынская энергетическая компания Nuclearelectrica подписала меморандум о взаимопонимании с консорциумом ALFRED [27]. Разрабатываемый реактор будет бассейнового типа, тепловой мощностью 300 МВт и электрической — 120 МВт. На начальном этапе будет использоваться МОКС-топливо, но в дальнейшем планируется переход на другие типы топлива, в том числе с включением МА [28].

В США разрабатывается транспортабельный реактор SSTAR (Small Secure Transportable Autonomous Reactor) мощностью 20 МВт(э) (45 МВт(т)), способный работать в автономном режиме в течение 15 – 30 лет на одной загрузке топлива. В качестве топлива должно использоваться TRU нитридное топливо [29]. Однако данная концепция вряд ли подразумевает включение

МА в топливо SSTAR, поскольку это в значительной мере повлияет на экономические показатели за счёт удорожания изготовления топлива.

В рамках Проектного направления «Прорыв» создается опытно-демонстрационный энергетический комплекс (ОДЭК), который будет включать комплекс по фабрикации и рефабрикации нитридного топлива (МФР) и энергоблок с РУ БРЕСТ-ОД-300. Комплекс будет располагаться на территории АО «СХК», г. Северск Томской области. Реактор будет иметь электрическую мощность 300 МВт и тепловую — 700 МВт. Главная задача ОДЭК — продемонстрировать и отработать технологии замыкания ЯТЦ и режимы эксплуатации РУ для дальнейшей реализации в индустриальном масштабе [30].

В рамках проекта «Прорыв» предполагается вовлечение в топливный цикл изотопов Np и Am [30] – [34].

При гомогенной трансмутации МА быстрый свинцовый реактор мощностью 1200 МВт с нитридным топливом способен утилизировать за срок своей эксплуатации порядка 1,5 тонн Np и Am , что равно общему количеству МА, нарабатываемому за 60 лет в реакторе типа ВВЭР. При этом 1 тонна МА будет содержаться в стартовой загрузке реактора и 0,5 тонн в качестве подпитки до перехода реактора в режим работы на U-238 [32].

Трансмутация МА в быстрых реакторах со свинцовым теплоносителем схожа по характеристикам с натриевыми быстрыми реакторами. За время облучения топлива с включением МА снижается изначальная масса изотопов Np-237 , Am-241 , Am-243 , но происходит дополнительное накопление изотопов Cm-244 и Cm-245 [35], [36].

Оценка возможности утилизации МА в жидкосолевых реакторах

Реакторы (ЖСР) рассматриваются в качестве одного из перспективных подходов к трансмутации МА. Особенность этих реакторов заключается в том, что расплавленная соль одновременно является и теплоносителем, и топливом (делящийся материал растворён в соли).

В настоящее время проекты ЖСР развиваются в Китае, Канаде, Великобритании, Индии, США. Стоит отметить, что ЖСР был включен в перечень перспективных реакторных концепций, разрабатываемых в рамках проекта Generation IV.

В России настоящее время в рамках программы ПННТР «Материалы и технологии» ведётся проектирование исследовательского реактора ИЖСР и рассматриваются две концепции ЖСР большой мощности: с FLiBe топливной солью и с FLiNaK топливной солью. Все эти концепции находятся на начальной стадии НИОКР.

На основе проекта MOSART (НИЦ «Курчатовский институт») разрабатывается ЖСР с топливной солью LiF-BeF_2 [37], [38].

1.5 Выводы о возможности утилизации МА в действующих и перспективных ядерных реакторах

Все рассмотренные реакторные системы имеют схожий механизм трансмутации МА, несмотря на различия в части конструкций и нейтронно-физических характеристик.

Жидкосолевые реакторы и электроядерные установки представляются как системы, способные наиболее эффективно решить проблему накопления и утилизации МА. Однако данные установки находятся на ранних этапах разработки и требуют экспериментального подтверждения расчётных темпов утилизации МА.

Существующие и разрабатываемые критические реакторы с жидкометаллическим теплоносителем имеют быстрый спектр нейтронов и большую плотность нейтронного потока, что позволяет более эффективно утилизировать как изотопы Np и Am за счёт их деления быстрыми нейтронами, так и изотопы Pu. Однако остаётся проблема накопления изотопов Cm.

Таким образом, реализация данного способа трансмутации МА потребует переработки облучённых ТВС с МА для повторного возврата оставшихся Np и Am в топливо, а также разработки технологий разделения МА для отделения Cm и направления его на долговременное контролируемое хранение. При небольших темпах утилизации МА и налагаемых ограничениях по их содержанию в топливе, технология реакторов БН является освоенной и может быть встроена в существующую производственную инфраструктуру.

1.6 Существующие программы НИОКР Госкорпорации «Росатом» по направлению дожигания МА

В настоящее время в Госкорпорации «Росатом» ведутся программы НИОКР по направлению дожигания МА, рассматривающие возможность трансмутации МА в четырех реакторных технологиях, которые включены в федеральные проекты комплексной программы «Развитие техники, технологий и научных исследований в области использования атомной энергии в Российской Федерации на период до 2024 года».

Во-первых, в рамках проекта «Разработка технологий двухкомпонентной атомной энергетики с замкнутым ядерным топливным циклом» предполагается включение МА в нитридное топливо реакторов типа БН.

Возможность трансмутации МА за счёт их включения в МОКС-топливо реактора БН и подтверждающие эксперименты на установке БОР-60 предполагались в рамках программы НИОКР направления «Сбалансированный ЯТЦ» по компоненте «Дожигание минорных актинидов в реакторах на быстрых нейтронах», а в программе НИОКР дорожной карты по реализации основных мероприятий развития ПННТР «Топливный цикл с переработкой

ОЯТ и мультирециклированием ЯМ» рассматривалась возможность разработки и обоснования технологии гетерогенного выжигания МА в реакторе на быстрых нейтронах с проведением экспериментального облучения сборок в исследовательском реакторе БОР-60 и энергетическом реакторе БН-800.

Во-вторых, в федеральном проекте «Создание современной экспериментально-стендовой базы для разработки технологий двухкомпонентной атомной энергетики с замкнутым ядерным топливным циклом» предполагается разработка и освоение технологий производства элементов с виброуплотнённым гранулятом, содержащим минорные актиниды Np и Am для их выжигания в реакторе МБИР.

В-третьих, ведется разработка реактора ЖСР, для которого трансмутация МА рассматривается как основная задача. Создание данной технологии осуществляется в федеральном проекте «Разработка новых материалов и технологий для перспективных энергетических систем».

В-четвертых, высокоэффективное дожигание минорных актинидов ставится в качестве одной из задач перед гибридными реакторными системами, разрабатываемыми в рамках федерального проекта «Разработка технологий управляемого термоядерного синтеза и инновационных плазменных технологий».

Приведённый перечень ядерных установок и соответствующих программ НИОКР, связанных как непосредственно с утилизацией МА, так и с сопутствующими направлениями в части переработки ОЯТ и фракционирования ВАО, свидетельствует об актуальности и важности этой задачи, однако в тоже время наталкивает на необходимость выбора критериев оценки и расстановки приоритетов среди рассматриваемых вариантов обращения с МА. При этом наиболее рациональной представляется концепция создания специализированных установок, основной задачей которых будет сокращение объёмов МА, накопленных в ОЯТ других реакторов.

В случае необходимости скорейшей реализации трансмутации МА наиболее привлекательным выглядит вариант дожигания МА в БН. Такой вариант решения задачи требует минимальных затрат ресурсов и времени.

Близким по оценке также является вариант с реактором типа БРЕСТ. Однако обе эти технологии, по сравнению с перспективными типами реакторов, обеспечивают небольшую загрузку внешних МА и низкий темп их утилизации.

Предполагается, что эту проблему смогут решить реакторы типа ЖСР и ГТР. Однако для их внедрения потребуются затраты значительных ресурсов и времени на разработку необходимых технологий и создание подходящих конструкционных материалов.

1.7 Особенности обращения с различными МА

Описанные выше свойства МА и особенности возможных вариантов их утилизации позволяют сделать следующие выводы:

Различие ядерных свойств основных изотопов МА (Np-237, Am, Cm), содержащихся в ОЯТ энергетических реакторов, требует разных подходов к обращению с каждым из них.

Изотоп Np-237, из-за своей схожести по ядерно-физическими свойствами с изотопами Pu, большого периода полураспада и низкой удельной активности, может быть включен в состав уран-плутониевого топлива или остеклован и направлен в подземные репозитории. Основные изотопы Am обладают высокой активностью и тепловыделением на продолжительном временном промежутке, поэтому предпочтительным является их трансмутация в ядерных реакторах. Изотопы Cm, характеризуются наибольшей удельной активностью и нейтронным фоном среди МА образующихся в ОЯТ в значительных количествах, однако имеют относительно короткие периоды полураспада с образованием изотопов Pu, что делает приемлемым выделение и хранение Cm в перерабатываемой форме на протяжении ~100 лет.

Выбор наиболее предпочтительных для трансмутации МА реакторных технологий требует проведения всеобъемлющего анализа с учётом способности дожигания МА, технических особенностей, готовности и необходимых затрат на доработку проектов реакторов.

Попытка проведения такого комплексного анализа технологий, рассматриваемых для дожигания МА в различных программах НИОКР, реализуемых в Госкорпорации «Росатом», показала, что наиболее перспективной технологией для трансмутации на данном этапе является технология БН.

Технологии реакторов ЖСР, потенциально обладающие гораздо большими темпами утилизации МА и лучшими нейтронно-физическими характеристиками, могут быть рассмотрены на будущее, в случае их успешной реализации. Тогда, в случае если эти технологии дойдут до внедрения и подтвердят свою применимость к утилизации МА, они могут стать наиболее приемлемым вариантом трансмутации МА.

Также стоит отметить главное препятствие на пути реализации трансмутации МА — отсутствие в ближайшей перспективе технологий фракционирования и разделения МА на промышленном уровне.

2 Исследование зависимости эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры спектра нейтронного потока

Существующие исследования в области трансмутации МА в основном ставят своей целью оценку возможности и перспективности утилизации минорных актинидов в существующих и проектируемых типах реакторов.

В данной работе использовался другой, более абстрактный подход, исследующий характер трансмутации Am-241 в зависимости от структуры спектра плотности нейтронного потока, что необходимо для определения предпочтительного спектра, обеспечивающего наиболее эффективную трансмутацию МА. Данное исследование должно быть полезно проектировщикам будущих установок и устройств для облучения МА.

В качестве облучаемого нуклида был выбран америций-241, так как он считается наиболее опасным из минорных актинидов по причине его высокой активности, а также из-за его большого количества.

2.1 Цели и задачи исследования

Данная работа ставит своей целью исследование зависимости эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры спектра нейтронного потока.

Для её достижения были поставлены и решены следующие задачи:

- Выбран программный комплекс, обеспечивающий возможность проведения подобного моделирования.
- Разработана расчетная модель.
- Проведено расчетное моделирование.
- Выполнен анализ полученных результатов. Проведенный анализ включает в себя соотнесение результатов расчета с выводами исследований, представленными в первом разделе.

2.2 Краткое описание используемого программного комплекса ISKRA

Расчёты проведены в программном комплексе для расчета радиационных характеристик топлива и конструкционных материалов ISKRA (версия 1.0), разработанным сотрудником АО «ГНЦ РФ – ФЭИ» И. В. Тормышевым [39]. Программный комплекс предназначен для расчёта изменения изотопного состава среды, состоящей из смеси различных нуклидов, с течением времени, в том числе при наличии нейтронного потока. В расчёте учитываются превращения нуклидов в результате нейтронных реакций и радиоактивных распадов.

Математическая модель нуклидной кинетики [40], заложенная в программу, представляет собой систему линейных дифференциальных уравнений первого порядка с постоянными коэффициентами относительно ядерных

концентраций нуклидов, дополненную начальными условиями. Коэффициенты уравнений определяются физикой нейтронно-физических и ядерных процессов.

Набор нуклидов, концентрации которых рассчитываются в процессе решения уравнений изотопной кинетики, ограничен имеющейся информацией о сечениях активации нуклидов под действием нейтронного потока и о способах их радиоактивного распада.

В соответствии с форматом распадных данных, используемым в библиотеке ядерных данных БНАБ-93 [41], набор учитываемых способов радиоактивного распада включает в себя: β^- -распад, β^+ -распад, α -распад, двойной β^- -распад, (β^-, p) -распад, (β^-, α) -распад, (β^-, n) -распад, изомерный переход, изомерный переход с испусканием запаздывающего нейтрона, спонтанное деление.

Набор активационных процессов, учёт которых возможен при наличии ядерных данных, включает: неупругое рассеяние, деление под действием нейтронов, реакции $(n, 2nd)$, $(2, 2n)$, $(n, 3n)$, $(n, n\alpha)$, $(n, n3\alpha)$, $(n, 2n\alpha)$, $(n, 3n\alpha)$, (n, np) , $(n, n2\alpha)$, $(n, 2n2\alpha)$, (n, nd) , (n, nt) , $(n, n3He)$, $(n, nd2\alpha)$, $(n, nt2\alpha)$, $(n, 4n)$, $(n, 2np)$, $(n, 3np)$, $(n, n2p)$, (n, npx) , (n, γ) , (n, p) , (n, d) , (n, t) , $(n, 3He)$, (n, α) , $(n, 2\alpha)$, $(n, 3\alpha)$, $(n, 2p)$, (n, px) , $(n, t2\alpha)$, $(n, d2\alpha)$, (n, pd) , (n, pt) , (n, dx) .

Расчет активности сред производится на базе расчета нуклидного состава облученного материала, дающего в качестве выходных данных количество ядер или ядерные концентрации нуклидов, а также информации о распадных данных нуклидов, содержащейся в соответствующей библиотеке формата БНАБ-93.

При решении задач нуклидной кинетики так же, как и при расчёте характеристик облучённых материалов (активности, остаточного энерговыделения, мощностей и спектров источников ионизирующего излучения), в комплексе программ ISKRA используется точечная модель, т. е. расчёт изотопной кинетики и всех функционалов выполняется в предположении постоянства нейтронного потока, сечений взаимодействия и концентраций изотопов по объёму облучаемого материала.

Распределение нейтронного потока в объёме реакторной установки, пространственная зависимость спектра нейтронов, групповых сечений взаимодействия, различие в стартовых составах облучаемых зон и в скоростях изменения нуклидного состава из-за различного нейтронного потока могут быть учтены путём задания в исходных данных для модуля нуклидной кинетики нескольких облучаемых материалов, в каждом из которых может быть свой стартовый состав, свои групповые сечения взаимодействия с нейтронами облучаемых материалов, свои значения нейтронного потока и свои спектры нейтронов. Таким образом, увеличивая количество расчётных зон, мож-

но с любой требуемой точностью учесть распределение по расчётной области параметров, влияющих на протекание процессов изотопной кинетики.

2.3 Описание модели

Для исследования эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры спектра нейтронного потока одним из принципиальных моментов является задание самой энергетической структуры спектра нейтронного потока. В данной работе он представлен в 28-групповом приближении, который используется в библиотеке ядерных данных БНАБ-93.

Последовательно моделируется облучение Am-241 нейтронами «одногруппового потока» (т. е. все нейтроны испускались из одной конкретной группы) каждой из 28 энергетических групп; при одинаковой интенсивности плотности нейтронного потока величиной $1,8 \cdot 10^{14}$ н/см²·с в течение 4 лет (1460 сут) с последующей двухлетней выдержкой (730 сут) без облучения.

Результатом расчета является нуклидный вектор, по каждому из нуклидов которого выводится информация о массе (г/см³), ядерной концентрации (1/см³) и активности (Бк/кг).

2.4 Результаты расчета

2.4.1 Эффективность трансмутации Am-241

Одним из основных требований, предъявляемых к технологии утилизации МА, является обеспечение высокого уровня трансмутации МА, что требует оценки как эффективности трансмутации МА, так и технических параметров ядерной системы, определяющих её производительность в части дожигания МА.

Оценка эффективности трансмутации МА включает два критерия: средний темп трансмутации МА и эффективность трансмутации МА. Средний темп трансмутации МА показывает усреднённое за срок службы ЯУ количество трансмутированных МА, нормированное на 1 ГВт тепловой мощности реактора. Эффективность трансмутации МА демонстрирует соотношение количества трансмутированных МА к общему количеству МА, загруженных в реактор за весь срок его эксплуатации.

Технические параметры ядерных систем включают в себя следующий набор критериев: срок нахождения топлива в активной зоне реактора, длительность внешнего топливного цикла, средняя энергия нейтронов и средняя плотность потока нейтронов в активной зоне реактора, а также наличие сырьевого изотопа в ядерном топливе. Чем больше срок нахождения топлива с МА в активной зоне за один цикл облучения, тем потенциально большее количество МА будет трансмутировано за этот период, а также будет произведено меньшее количество циклов переработки топлива и изготовления ОЯТ из регенерированных материалов, связанных с потерями МА, за срок

службы ЯР. Длительность внешнего топливного цикла определяет скорость возврата МА обратно в реактор для их дальнейшего облучения, что связано с количеством накапливаемых МА во внешнем топливном цикле, а также с изменением массы и изотопного состава МА за счёт радиоактивного распада элементов. Также на эффективность трансмутации непосредственно влияют средняя энергия нейтронов, определяющая вероятность деления ядер, и средняя плотность потока нейтронов в активной зоне реактора, связанная со скоростью протекания ядерных реакций. Наличие сырьевого изотопа в топливе реактора негативно сказывается на эффективности трансмутации, поскольку на нём происходит поглощение нейтронов, которые могли быть направлены на дожигание МА.

Поскольку данная работа не ставит своей целью привязку к конкретной реакторной установке (не отражает соответствующие параметры в расчетной модели) и ориентирована на исследование принципиальных закономерностей, влияющие на эффективность трансмутации, то и оценка эффективности трансмутации будет проводиться только по ряду критериев, а именно будет оцениваться эффективность трансмутации в зависимости от энергии нейтронов при фиксированной интенсивности плотности потока нейтронов.

В качестве параметра, отражающего эффективность изменения количества конкретного нуклида, принята безразмерная величина $\tau(X)$, которая показывает какая доля (по ядерной концентрации) от изначально загруженного в реактор количества вещества нуклида трансмутировалась, т. е. претерпела захват или деление:

$$\tau_i(X) = 1 - \frac{N_t(X)}{N_0(X)}, \quad (1)$$

где $\tau_i(X)$ — коэффициент эффективности трансмутации нуклида X при облучении его потоком нейтронов i -й энергетической группы;

$N_t(X)$ — концентрация нуклида X в момент времени t ;

$N_0(X)$ — начальная концентрация нуклида X .

По результатам расчета проведен анализ зависимости эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры плотности нейтронного потока (рис. 4). По оси «у» — эффективность трансмутации, определяемая по формуле (1). Чем ближе точка на графике к «1», тем эффективней трансмутация. По оси «х» — энергетическая группа нейтронов, от тепловых (слева), до термоядерных (справа). Представленные графики иллюстрируют долю трансмутировавших ядер Am-241 за 1 и 4 года облучения.

Из графиков видно, что эффективность трансмутации существенно зависит от энергии нейтронов, и увеличивается с уменьшением энергии, что обусловлено характером сечения захвата Am-241 (рис. 5).

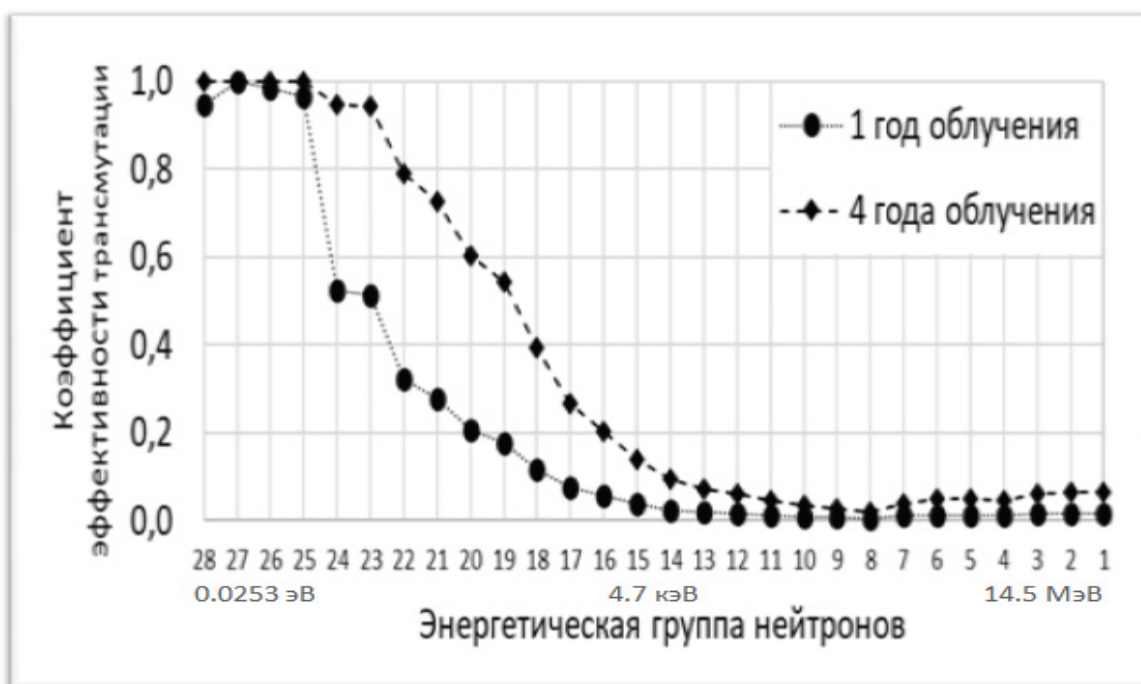


Рис. 4. Зависимость эффективности трансмутации Am-241 от энергетической структуры спектра нейтронного потока

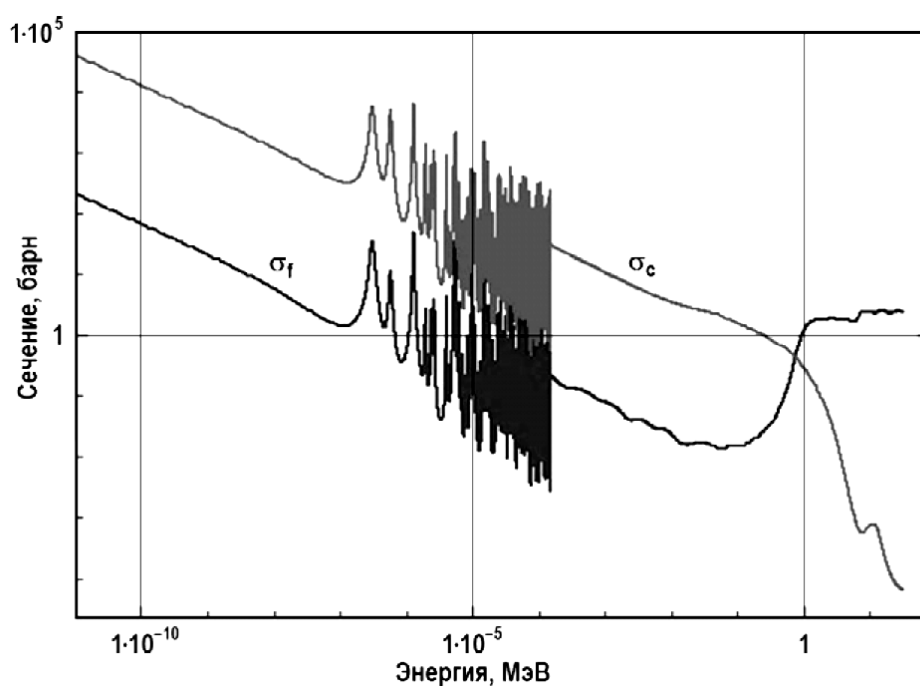


Рис. 5. Зависимость сечения деления (σ_f) и сечения захвата (σ_c) Am-241 от энергии

На рисунках 6–12 приведены энергетические зависимости сечений захвата и деления для ряда нуклидов, влияющих на процесс трансмутации Am-241.

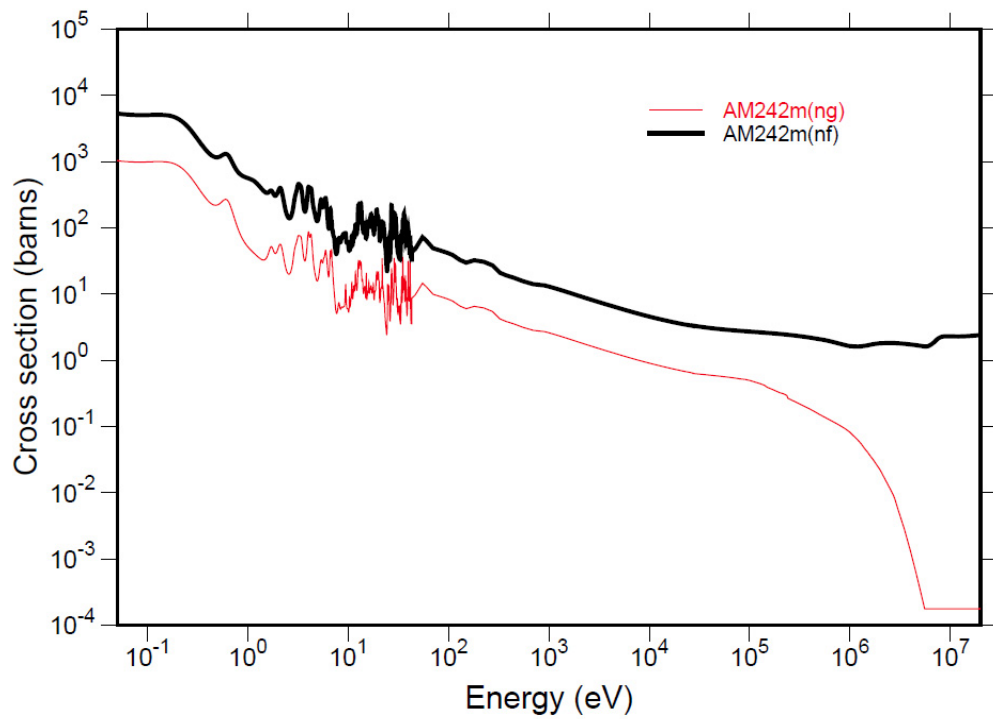


Рис. 6. Зависимость сечения деления (σ_f) и сечения захвата (σ_c) Am-242m от энергии

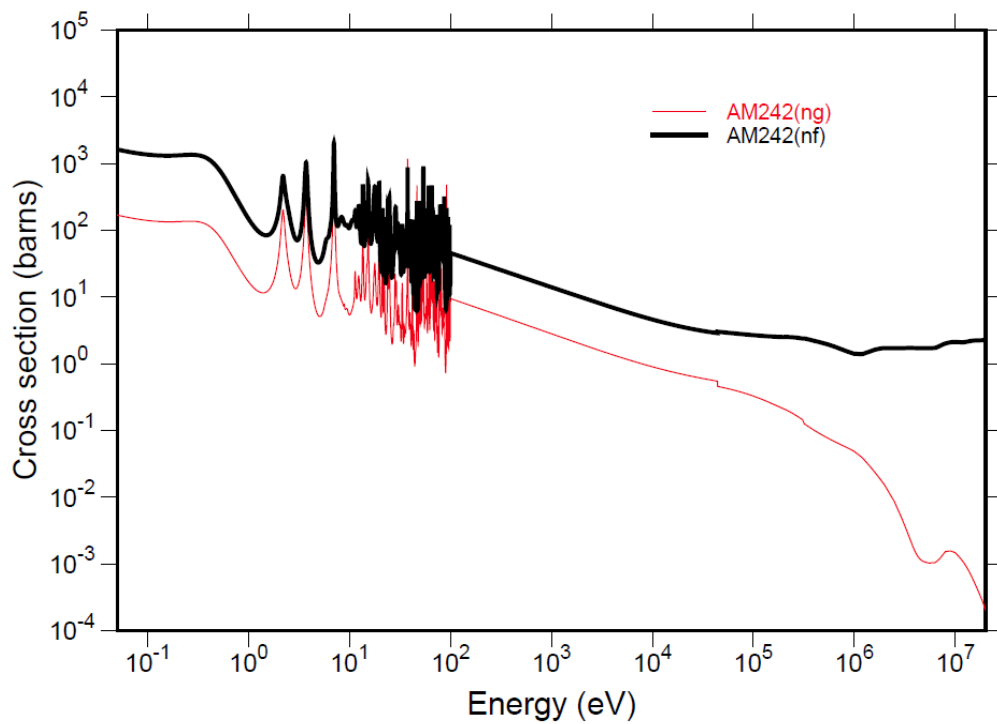


Рис. 7. Зависимость сечения деления (σ_f) и сечения захвата (σ_c) Am-242 от энергии

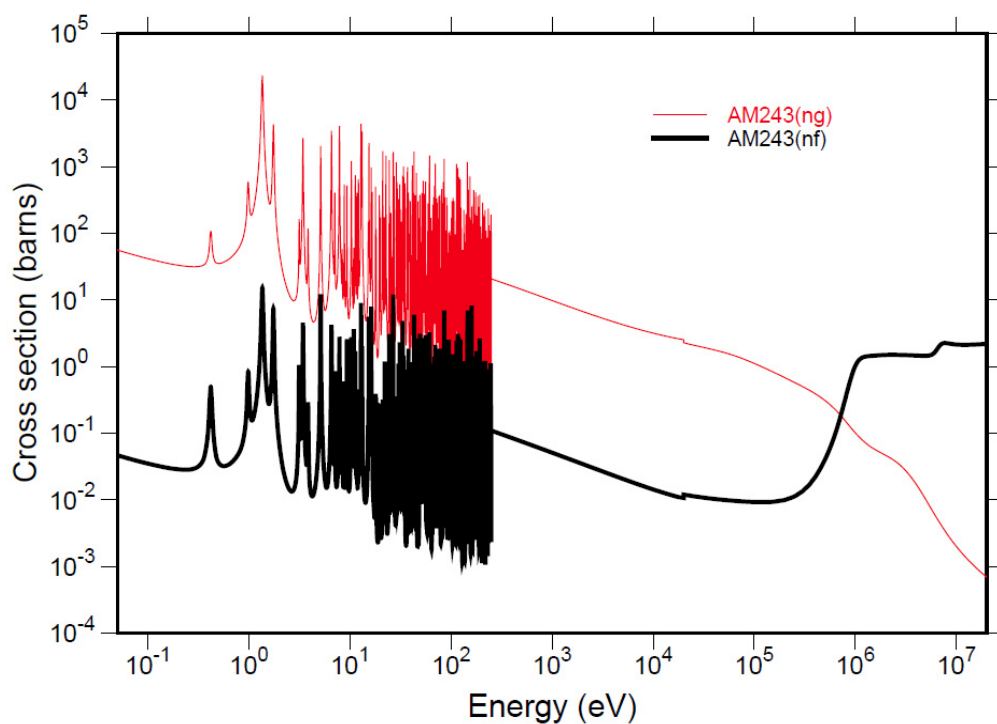


Рис. 8. Зависимость сечения деления (σ_f) и сечения захвата (σ_c) Am-243 от энергии

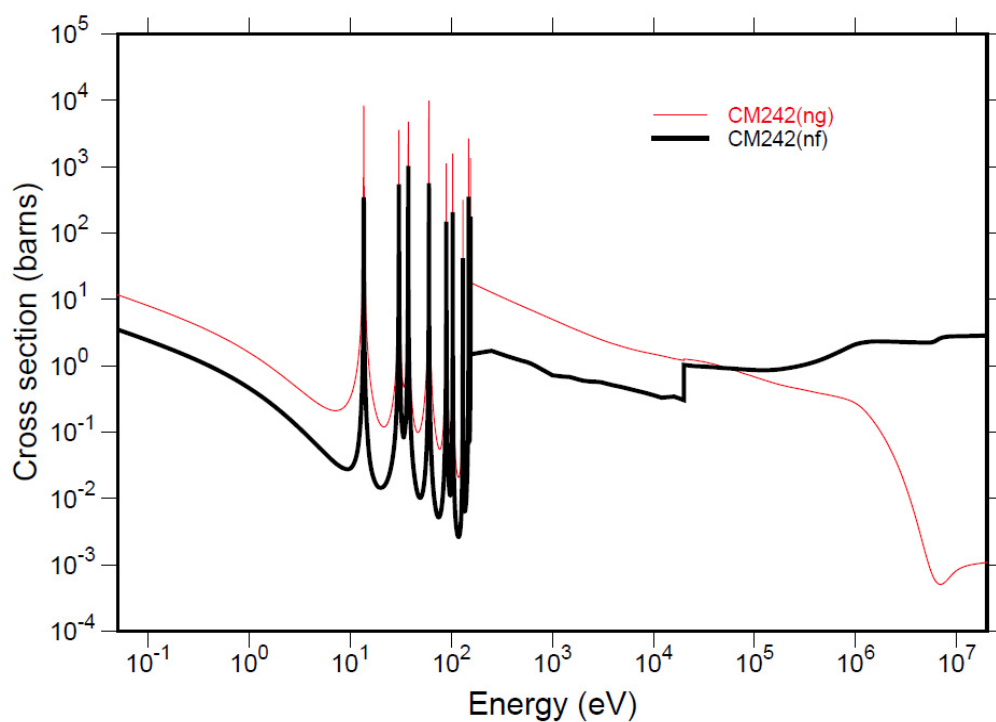


Рис. 9. Зависимость сечения деления (σ_f) и сечения захвата (σ_c) Cm-242 от энергии

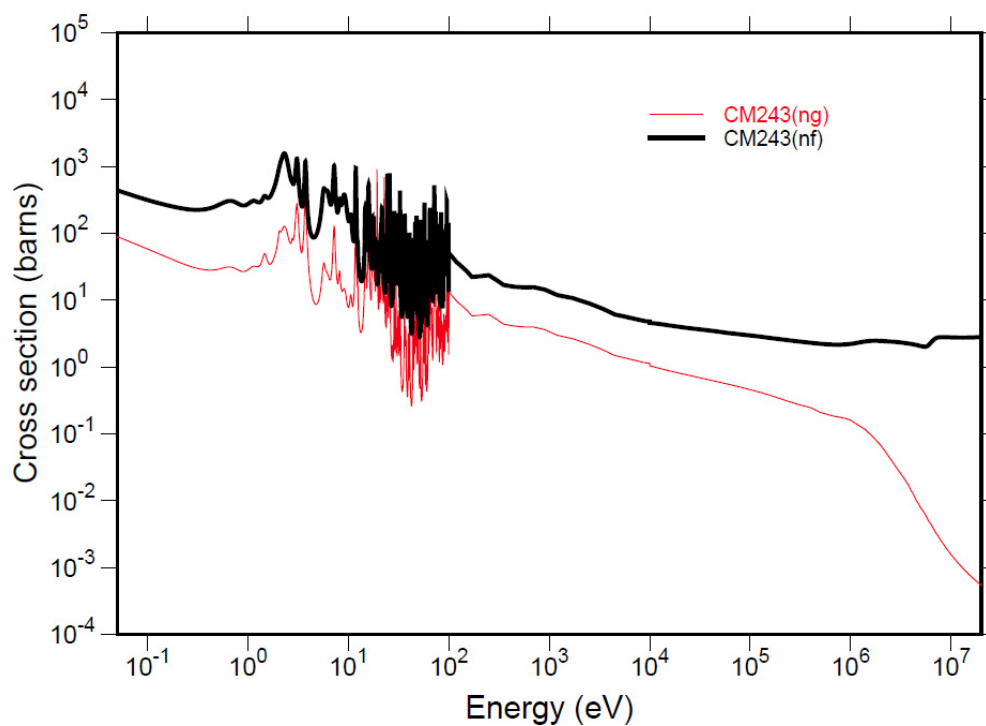


Рис. 10. Зависимость сечения деления (σ_f) и сечения захвата (σ_c) Cm-243 от энергии

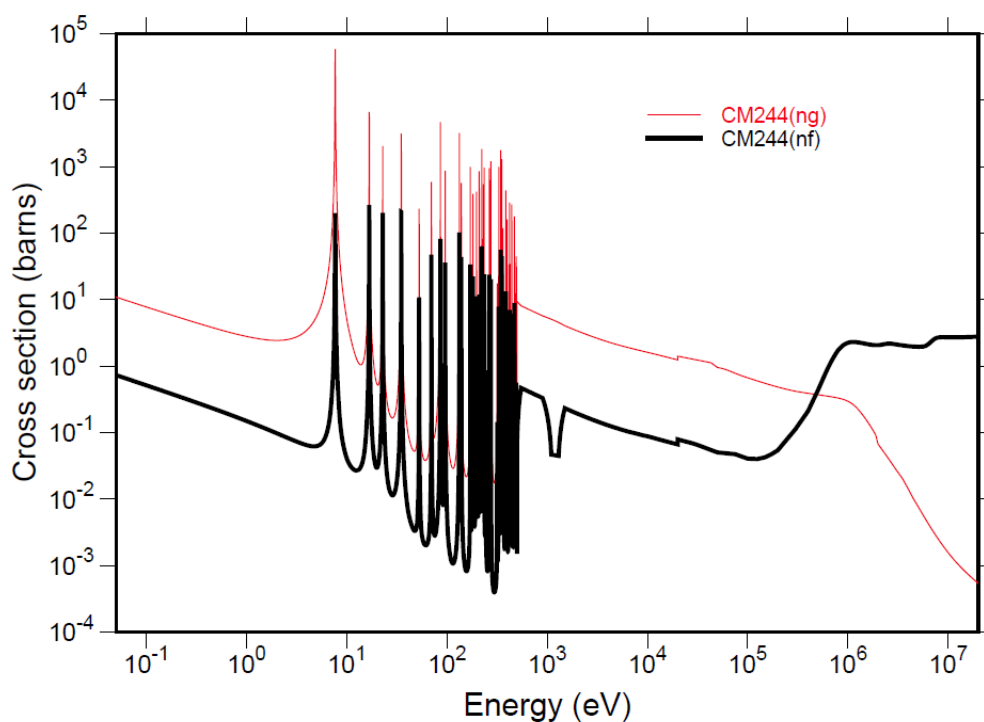


Рис. 11. Зависимость сечения деления (σ_f) и сечения захвата (σ_c) Cm-244 от энергии

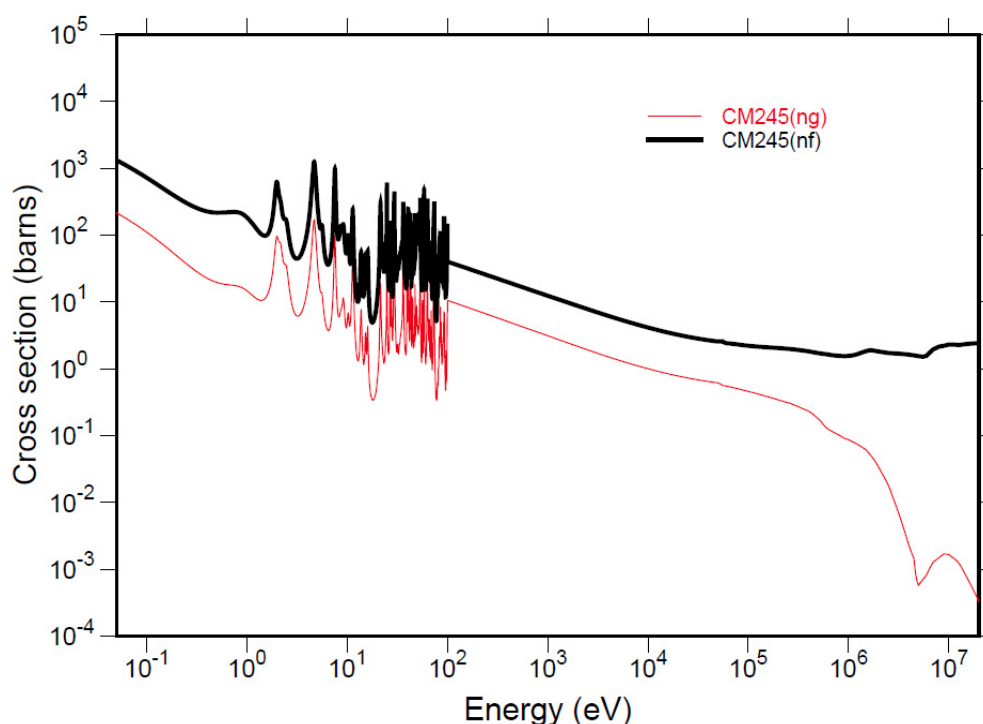


Рис. 12. Зависимость сечения деления (σ_f) и сечения захвата (σ_c) Cm-245 от энергии

Проведем анализ зависимости сечений захвата и деления от энергии для нуклидов, образующихся при облучении Am-241, приведённых на рисунках 5–12, в соответствии со схемой на рисунке 1. Результаты анализа показывают:

- сечение деления быстрыми нейтронами Am-241 существенно выше сечений захвата. Для других энергий сечения захвата выше сечений деления;
- подобная ситуация и для нуклидов Am-243, Cm-242 и Cm-244;
- для нуклидов Am-242m, Am-242, Cm-243 и Cm-245 сечения деления выше сечения захвата во всей области энергий и растут с уменьшением энергии.

График, представленный на рисунке 4, иллюстрирует, что в тепловой области обеспечивается более эффективная трансмутация Am-241, как мы уже выяснили, в основном за счет захвата нейтронов. То есть ожидаемым результатом трансмутации Am-241 является образование большого количества дочерних нуклидов, в особенности изотопов Cm. Рассмотрим подробнее продукты трансмутации.

На рисунке 13 представлено процентное содержание в образовавшейся смеси продуктов деления, тяжелых ядер (образующихся в результате захвата на Am-241) и оставшегося Am-241 при 4х-летнем облучении. Видно, что в тепловой области наблюдается образование большого количества тяжелых ядер — продуктов захвата на Am-241 и дочерних нуклидах. Это сопровожда-

ется делением ряда образующихся нуклидов, что обуславливает существенный выход продуктов деления в этой области.

В рассмотренных условиях в области быстрых энергий, несмотря на небольшую долю трансмутации Am-241, наблюдается существенный выход продуктов деления. На диаграмме (рис. 14) показано, какая доля трансмутировавшего Am-241 перешла в конечном итоге в продукты деления.

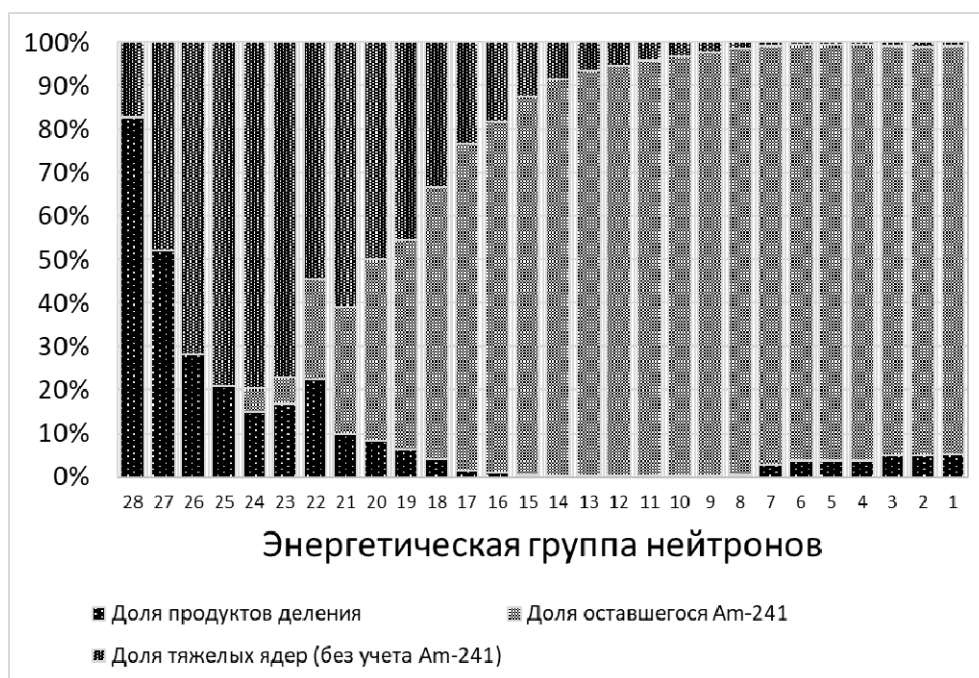


Рис. 13. Процентное содержание продуктов деления, тяжелых ядер, оставшегося Am-241 при 4-летнем облучении

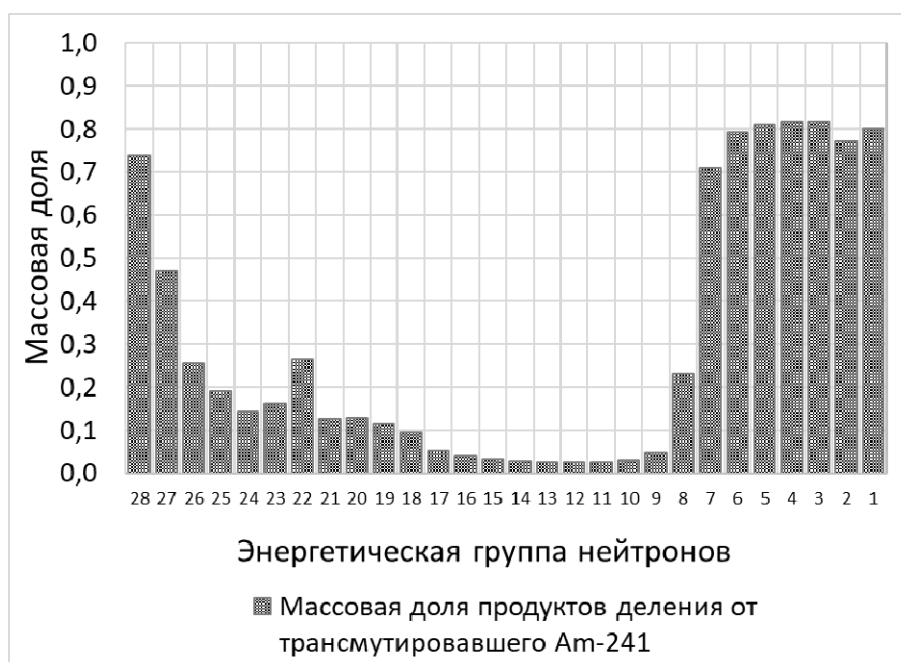


Рис. 14. Доля ПД при трансмутации Am-241

На рисунке 15 представлены графики, отражающие, какая доля (по массе) от изначальной загрузки Am-241 осталась, трансмутировалась в изотопы америция и кюрия (значимые минорные актиниды; включая Am-241), а также массу всех образовавшихся нуклидов. Графики отражают состояние системы после 4 лет облучения и последующей 2-летней выдержки.

Данные графики показывают, что накопление других малых актинидов из Am-241 незначительное, существенный выход множества других нуклидов и разница между их массой и начальной массой америция также свидетельствует о значительном вкладе деления в процессе трансмутации.

Это объясняется тем, что Am-241 после поглощения нейтрона переходит в Am-242m с большим сечением деления в тепловом спектре нейтронов. Ряд других образующихся нуклидов: Am-242, Am-244, Cm-241, Cm-243, Cm-245, Cm-247 — также имеют достаточно высокие сечения деления в тепловой области. Таким образом, при трансмутации Am-241 в тепловой области не наблюдается значительного (по массе) накопления других МА. Процесс приводит преимущественно к образованию тяжелых ядер (в результате захвата) и продуктов деления, характер обращения с которыми вполне понятен. Тем не менее вопрос накопления неделящихся в тепловой области МА требует более детального изучения, выходящего за рамки данного исследования.

Высокая эффективность трансмутации Am-241 в тепловой области не говорит о неременной предпочтительности использования тепловых реакторов для утилизации МА. Потому что в данном случае перевод америция в продукты деления происходит не напрямую (как в быстром спектре), а путем трансмутации Am-241 в делящиеся нуклиды, что требует наличия большого

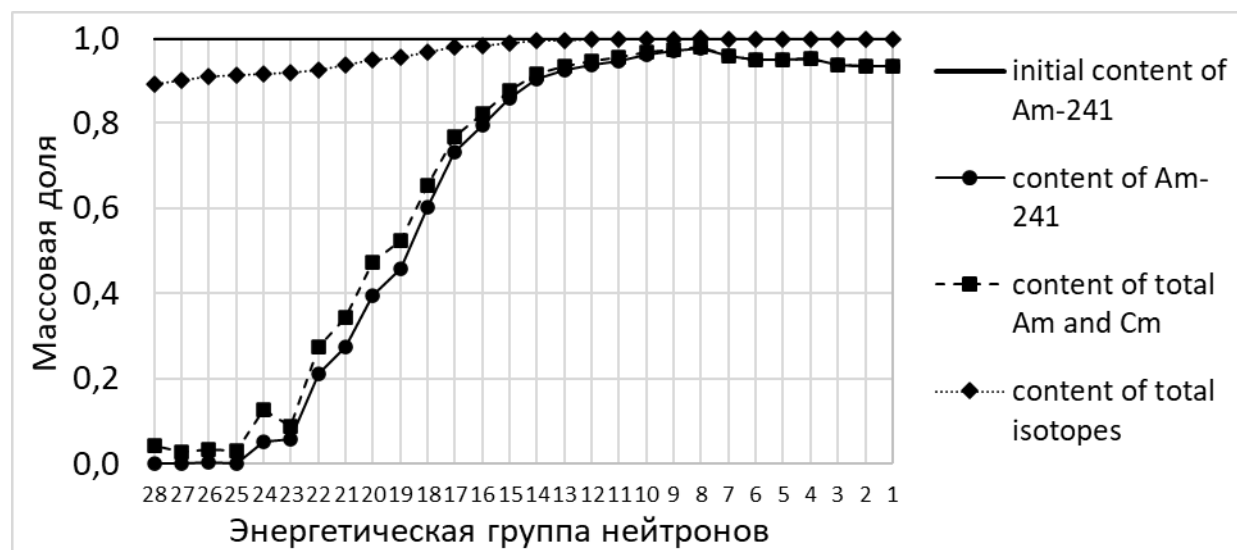


Рис. 15. Массовая доля Am-241, всех изотопов Am и Cm и всех изотопов, образовавшихся в результате трансмутации на момент времени 6 лет (4 года облучения + 2 года выдержки)

количества избыточных нейтронов в системе, которых в тепловых реакторах крайне мало. Следует отметить, что заданный в данном исследовании поток нейтронов существенно больше, чем в существующих тепловых реакторах, следовательно, реально процесс трансмутации в них будет происходить значительно медленней, чем в представленном моделировании.

Что касается низкой эффективности трансмутации в быстром спектре, то это объясняется существенно меньшим (на 1-2 порядка) сечением деления по сравнению с сечением захвата в большом энергетическом диапазоне, вплоть до энергий нейтронов около 1 МэВ.

Эффективность трансмутации — это один из основных параметров, характеризующих способы утилизации минорных актинидов. Однако он не является единственным параметром, отражающим предпочтительность того или иного способа трансмутации. Поэтому рассмотрим радиотоксичность ряда образующихся нуклидов.

2.4.2 Радиотоксичность образующихся МА

Процесс обезвреживания (трансмутации) долгоживущих РАО включает в себя несколько стадий. Сюда относятся собственно облучение радионуклидов в нейтронном поле, а также внешние технологические операции с очисткой облученного материала и его регенерацией. Процесс трансмутации может быть однократным (одноцикловым), когда облученный материал с «выжженным» долгоживущим радионуклидом после выгрузки отправляется на захоронение. Этот процесс может также быть многократным (многоцикловым), когда облученный материал подвергается очистке от накопившихся стабильных (и короткоживущих) дочерних продуктов трансмутации основного долгоживущего нуклида, пополняется новой порцией этого нуклида и затем подвергается следующему циклу облучения.

Для реализации такого многостадийного процесса требуется обеспечить безопасность трансмутационного цикла как для окружающей среды, так и для персонала на всех этапах обращения с МА. Воздействие ядерных источников энергии на окружающую среду обычно сопоставляют с воздействием энергоисточников на органическом топливе (например, угольных электростанций). В случае реализации трансмутационного цикла его безопасность не должна быть ниже безопасности, которую можно обеспечить для окружающей среды и человека при захоронении РАО. Представляется, что этот весьма существенный фактор может сузить выбор концепций трансмутационных установок и соответствующих технологий.

В рамках анализа полученных результатов на предмет безопасности рассмотрим радиотоксичность по воде для изотопов америция и кюрия, образовавшихся в результате трансмутации Am-241 (рис. 16). Как видно из рисунка 16, на момент выгрузки (графики с закрашенными точками и пунктир-

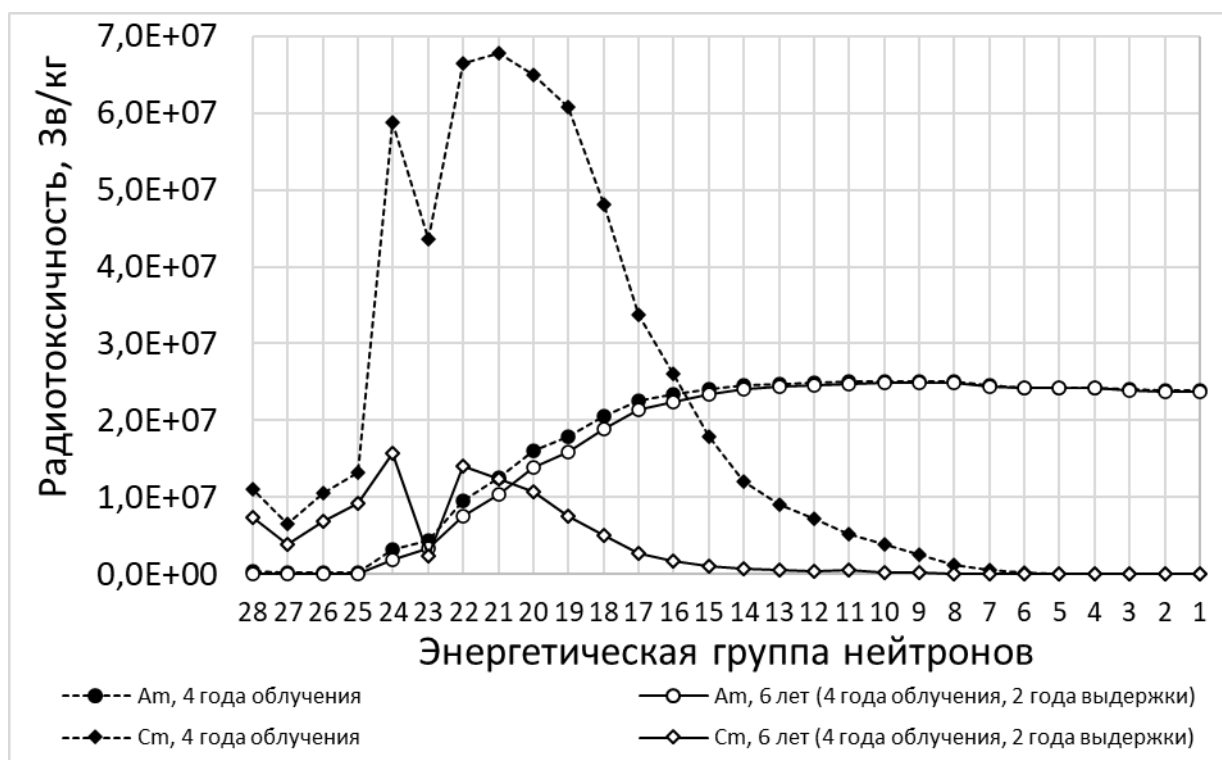


Рис. 16. Радиотоксичность всех изотопов Am и Cm, образующихся в результате трансмутации Am-241

ными линиями) короткоживущие изотопы кюрия дают большую радиотоксичность, однако за небольшой период времени она значительно снижается (за полгода спадает наполовину) и при двухлетней выдержке становится меньше радиотоксичности изначально загружаемого америция (которая составляет $2,54 \cdot 10^7$ Зв/кг).

2.4.3 Выход гелия

Одним из важных технических аспектов, который необходимо учитывать при разработке технологии утилизации МА, является существенное образование гелия в процессе трансмутации. Данный параметр имеет большое влияние на обеспечение долговременной работоспособности твэлов.

На рисунке 17 представлены графики выхода He-4, нормированные на массу Am-241, претерпевшего трансмутацию. Графики, соответствующие 1 и 4 годам облучения, иллюстрируют характер образования гелия в процессе трансмутации; графики 4 и 6 лет – выход гелия на этапе выдержки облученной смеси.

Для сравнения в таблице 3 представлены данные по выходу гелия в МОКС-топливе, облученном в схожем режиме (4 года облучения, 2 года выдержки) в условиях реактора БН-800.

Сопоставляя данные из таблицы с графиками, можно заметить, что выход гелия в процессе трансмутации Am-241 на порядки выше, чем в МОКС-

топливе. Этот аспект говорит о сложности проектирования технологии промышленной трансмутации, поскольку такое значительное образование газа может привести к ухудшению поведения топливной матрицы, а также потребует разработки более эффективных способов компенсации избыточного давления внутри ТВЭЛОВ.

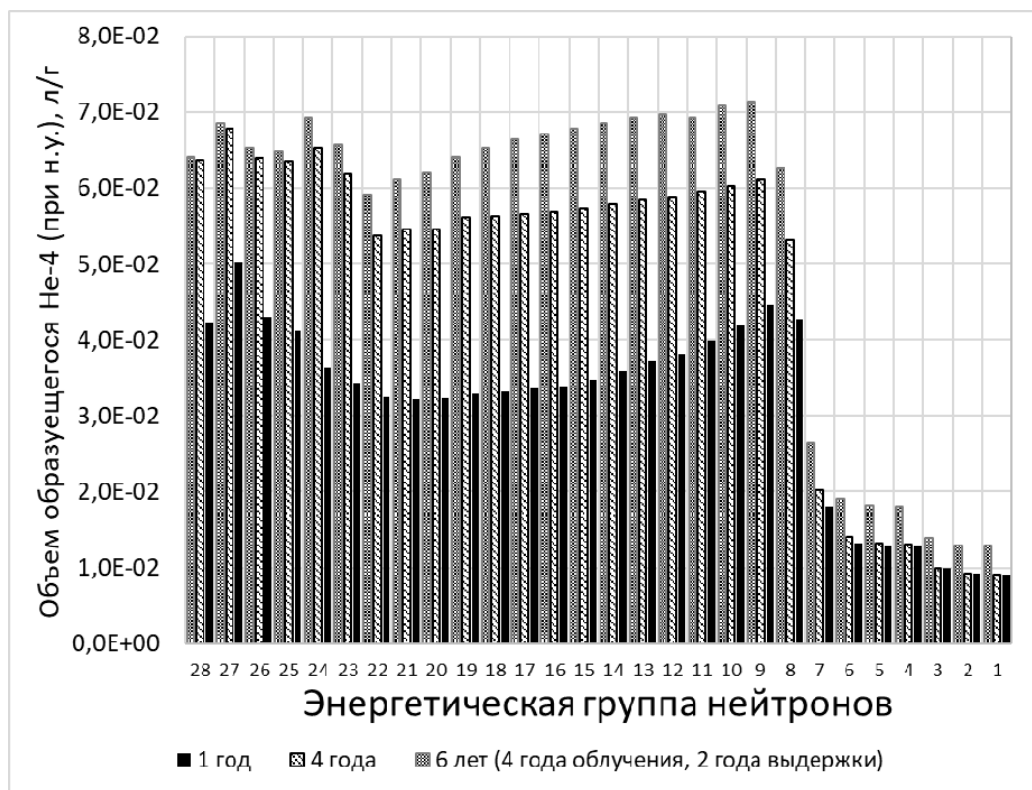


Рис. 17. Выход He-4, нормированный на массу трансмутировавшего Am-241

Таблица 3. Выход гелия в МОКС-топливе, нормированный на массу трансмутировавшей начальной смеси изотопов

Время, год	1	4	6
Выход гелия, л/г	$5,04 \cdot 10^{-5}$	$6,96 \cdot 10^{-5}$	$9,09 \cdot 10^{-5}$

2.4.4 Методика расчета характеристик Am-241 при трансмутации при облучении на различных спектрах плотности потока нейтронов

Проведенный расчет детальной зависимости эффективности трансмутации от энергетической структуры плотности нейтронного потока позволяет определять характеристики продуктов трансмутации Am-241 для любого спектра при определенном значении плотности нейтронного потока на основании данных расчета трансмутации по группам.

Результат облучения в конкретном спектре определяется путём суммирования данных расчета по каждой группе, помноженных на соответствующую долю группы в спектре:

$$N = \sum_{i=1}^{28} \varepsilon_i N_i, \quad (2)$$

где N — концентрация нуклида, определяемая для спектра;

i — номер энергетической группы;

ε_i — доля группы в спектре;

N_i — концентрация нуклида рассчитанная для группы i .

Методика показывает при определённых условиях хорошую сходимость для облучаемого нуклида. Более точное определение параметров (массы, концентрации, активности) облучаемого нуклида можно добиться, используя логарифмическое приближение. При этом расчет производится по следующей формуле (обозначения см. в ф-ле (2)):

$$N = \exp \left(\sum_{i=1}^{28} \varepsilon_i \cdot \ln(N_i) \right). \quad (3)$$

Значения массы Am-241, рассчитанные по различным методикам, в том числе непосредственным расчетом спектра БН в программном комплексе ISKRA, представлены на рисунке 18.

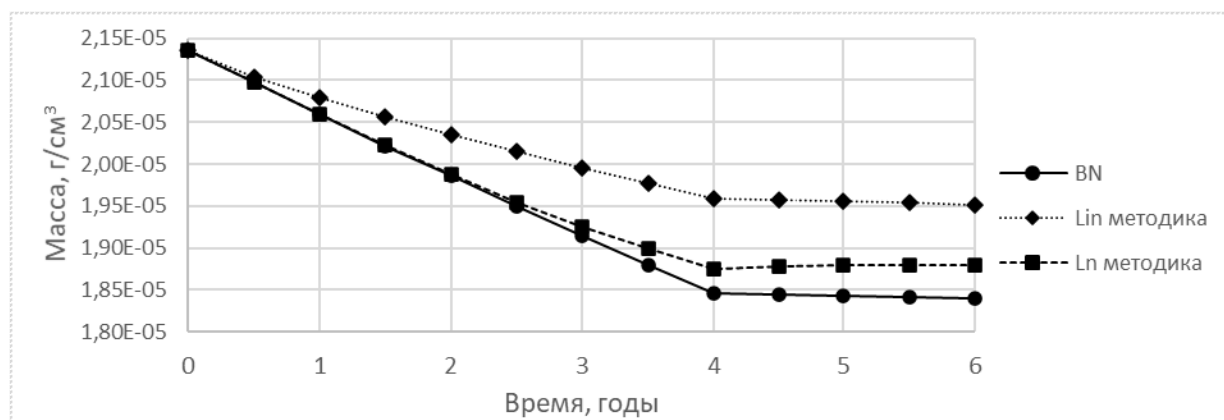


Рис. 18. Сравнение результатов расчёта массы Am-241 для спектра БН по линейной и логарифмической методикам и непосредственного расчета в программе ISKRA

Таким образом, данные расчета трансмутации нейтронами одногруппового потока каждой из 28 энергетических групп позволяют провести оценочный расчет характеристик облучаемого нуклида для любого спектра.

2.5 Выводы к разделу 2

Из результатов расчётных исследований следует, что при облучении заданным нейтронным потоком, с точки зрения выжигания Am-241, наиболее эффективная трансмутация наблюдается в «мягком» спектре нейтронов.

Это закономерный результат, так как для Am-241 в данной области сечение захвата выше (на 2-3 порядка), чем в быстрой области.

Таким образом, можно сделать следующие выводы:

- 1) Тепловая область перспективна в плане выжигания Am-241.
- 2) Основные продукты трансмутации в тепловой области — продукты захвата на Am-241, но выход продуктов деления также значителен.
- 3) Радиотоксичность выгружаемого топлива довольно высокая, что требует специальных методов обращения с ним.
- 4) Радиотоксичность по рассмотренным нуклидам после выдержки снижается до уровня загружаемого америция.

Полученные результаты соотносятся с другими исследованиями по данной тематике. Стоит отметить, что для осуществления трансмутации нужно достаточное количество избыточных нейтронов в системе. Но на данный момент отсутствуют ядерные установки с высоким потоком в тепловой области. Для целей трансмутации предлагается использовать реактор на быстрых нейтронах, в котором поток достаточно велик. И здесь есть два решения. Первое решение — использовать для «смягчения» спектра замедлитель, гомогенно замешанный с МА. Если поток в быстром спектре будет достаточно велик (10^{16} — 10^{17} н/см²·с), то «успешную» трансмутацию возможно будет проводить и без замедлителя. Либо, как предлагают авторы работы [23], устанавливать замедлитель гетерогенно в специальных облучательных сборках. К примеру, такую сборку можно будет расположить в боковом экране энергетического реактора типа БН-800. Необходимо отметить, что расположение в активной зоне такого рода устройств пока еще исследуется и не имеет достаточного обоснования, открывая перед исследователем ряд оптимизационных задач.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проблема накопления ОЯТ и РАО становится всё более актуальной для мировой ядерной энергетики. С запуска первых энергетических реакторов и до настоящего времени с АЭС мира суммарно было выгружено более 400 тыс. тонн ОЯТ, содержащего в среднем 1% Pu и 0,1% МА. Несмотря на то что минорные актиниды в реакторах нарабатываются в относительно небольших количествах, они вносят существенный вклад в тепловыделение и радиотоксичность ОЯТ в долгосрочной перспективе.

Одним из условий достижения устойчивого развития ЯЭ является минимизация отходов. Радикальное сокращения объёмов МА, содержащихся в ОЯТ энергетических реакторов, возможно за счёт их трансмутации — перевода долгоживущих радиоактивных изотопов в короткоживущие или стабильные при их облучении в ядерных реакторах.

В данной работе представлено исследование эффективности трансмутации Am-241 в зависимости от структуры спектра нейтронного потока, что необходимо для определения предпочтительного спектра, обеспечивающего наиболее эффективную трансмутацию МА. Данное исследование должно быть полезно проектировщикам будущих установок и устройств для облучения МА.

Итог работы заключается в следующем:

1. Изучены теоретические обоснования возможности трансмутации МА.
2. Представлен обзор научных работ по исследованиям трансмутации МА в ядерных установках различных типов.
3. Создана расчетная модель в программном комплексе ISKRA.
4. Проведены расчётные исследования зависимости эффективности трансмутации Am-241 от структуры спектра нейтронного потока.
5. Выполнен анализ полученных результатов, в рамках которого отмечена возможность проведения упрощенного расчета характеристик облучаемого нуклида по данным одnogрупповых расчетов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Коробейников В.В., Колесов В.В., Каражелевская Ю.Е., Терехова А.М. Исследования возможности выжигания и трансмутации Am-241 в реакторе с америциевым топливом // Известия вузов. Ядерная энергетика. — 2019. — Вып. 2.
2. Bergelson B., Gerasimov A., Zaritskaya T., Kiselev G., Volovik A. Decay heat power and radiotoxicity of spent uranium, plutonium and thorium fuel at long-term storage // 18th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology. — Beijing: SMiRT18, 2005.
3. Salvatores M., Slessarev I., Uematsu M. A Global Physics Approach to Transmutation of Radioactive Nuclei // Nuclear Science and Engineering. — 1994. — V. 116. — P. 1—18
4. Japan Atomic Energy Agency - Nuclear Data Center. Japanese standard library for fast breeder reactors, thermal reactors, fusion neutronics and shielding calculations, and other applications (JENDL-4.0). JAEA-NDC, 2010. — URL: <https://www.ndc.jaea.go.jp/jendl/j40/j40.html>.
5. OECD NEA. French R&D on the Partitioning and Transmutation of Long-lived Radionuclides: An International Peer Review of the 2005 CEA Report. Papers: OECD Publishing, 2006.
6. Oak Ridge National Laboratory. Preliminary Multicycle Transuranic Actinide Partitioning-Transmutation Studies. 2007. ORNL/TM-2007/24.

7. Takaki Naoyuki. Neutronic potential of water cooled reactor with actinide closed fuel cycle // *Progress in Nuclear Energy*. — 2000. — T. 37, C.1—4.
8. Kloosterman J.L. Multiple Recycling of Plutonium in Advanced PWRs. Netherlands Energy Research Foundation (ECN), 1998.
9. Youinou G. Plutonium Multirecycling in Standard PWRs Loaded with Evolutionary Fuels // *Nuclear Science and Engineering: the Journal of the American Nuclear Society*. — 2005. — T. 151.
10. Atomic Energy of Canada Limited (AECL). Scenarios for the Transmutation of Actinides in Candu Reactors: Company WIDE. Ontario: AECL, 2010. CW-123700-CONF-010.
11. Kostadin Zashev. Transmutation of VVER-1000 Spent Nuclear Fuel in Candu Reactors // *София: ЕНЕРГИЕН ФОРУМ*. — 2017.
12. Prunier C, Boussard F, Koch L, Coquerelle M. Some Specific Aspects of Homogeneous Am and Np Based Fuels Transmutation through the Outcomes of the Superfact Experiment in PHENIX Fast Reactor // *GLOBAL 1993*. — URL: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/24/070/24070171.pdf?r=1
13. Guillaumont R. The Bataille's Law: Scientific Research for Nuclear Wastes in France. *L'Actualité Chimique*. — 2005.
14. Jean-Marc Bonnerot, et al. First Results of the Irradiation Program of Inert Matrices, Targets and Fuels for Minor Actinides Transmutation in Fast Reactor. — Montpellier. 2008.
15. E. Brunon, et al. The FUTURIX-FTA Experiment in PHÉNIX.
16. J. M. Chichester, et al. Overview of the FUTURIX-FTA Irradiation Experiment in the Phénix Reactor // *Global 2015*. — Paris, 2015. Paper 5268.
17. Postirradiation Examination of FUTURIX-FTA Metallic Alloy Experiments / Idaho National Laboratory, 2019. INL/JOU-18-52239-Revision -0.
18. The EBR-II X501 Minor Actinide Burning Experiment / Idaho: INL, 2008. INL/CON-08-13828 PREPRINT.
19. Tomonori Soga, Takashi Sekine, Kosuke Tanaka, Ryoichi Kitamura, Takafumi Aoyama. Irradiation Test of Fuel Containing Minor Actinides in the Experimental Fast Reactor Joyo // *Journal of Power and Energy Systems*, 2008. ISSN: 1881-3062.
20. International Atomic Energy Agency (IAEA). Status of Minor Actinide Fuel Development. VIENNA: IAEA, 2009. No. NF-T-4.6.
21. Погляд С.С. Реализация проекта ЕОТП и опыт фабрикации топлива с минорными актинидами // *Отраслевой семинар «Технологии фракционирования и трансмутации минорных актинидов. Достижения и перспективы развития»*. — Москва, 2019.

22. International Atomic Energy Agency (IAEA). Advanced Reactor Technology Options for Utilization and Transmutation of Actinides in Spent Nuclear Fuel. Vienna: IAEA, 2009. IAEA-TECDOC-1626.

23. Гулевич А.В., Елисеев В.А., Клинов Д.А., Коробейникова Л.В., Крячко М.В., Першуков В.А., Троянов В.М. Возможность выжигания америдия в быстрых реакторах. // Атомная энергия. — 2020. — Т. 128. — С.82—87.

24. Euratom. Plutonium and Minor Actinide Management in Thermal High-Temperature Gas-Cooled Reactors (PUMA): Publishable Final Activity Report. 2010.

25. High Temperature Reactor (HTR) Deep Burn Core and Fuel Analysis: Design Selection for the Prismatic Block Reactor With Results from FY-2011 Activities / Idaho National Laboratory, Idaho, 2011. INL/EXT-11-23997.

26. ALFRED-Project. Members. ALFRED. — URL: <http://www.alfred-reactor.eu/index.php/falcon-2/members/>.

27. News, World Nuclear. Nuclearelectrica to Cooperate in Development of ALFRED. World Nuclear News. WNN, 2019. — URL: <https://www.world-nuclear-news.org/Articles/Nuclearelectrica-to-cooperate-in-development-of-AL>.

28. (SKB). Partitioning and Transmutation Current Developments – 2013: A report from the Swedish reference group for P&T-research / Solna: Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co, 2017. SKB TR-13-29.

29. Craig F. Smith, et al. SSTAR: The US Lead-Cooled Fast Reactor (LFR) // Journal of Nuclear Materials, 2008. — URL: <http://www.gammaexplorer.com/wp-content/uploads/2017/03/SSTARLCFR.pdf>

30. Лемехов В.В., Петренко А.В., Яшкин А.В. Энергоблок с РУ БРЕСТ-ОД-300 // Сборник докладов отраслевой конференции «Замыкание топливного цикла ядерной энергетики на базе реакторов на быстрых нейтронах». — Томск, 2018 — С. 159.

31. Чамовских Ю.В. и др. Особенности проектирования, изготовления и внедрения лабораторного и промышленного оборудования для фабрикация таблеток МОКС и нитридного топлива в РФ //, Международная конференция по реакторам на быстрых нейтронах и соответствующим топливным циклам (FR-17). — Екатеринбург, 2017.

32. Хомяков Ю.С. Проект «Прорыв»: задачи, состояние и программа работ в части технологий трансмутации минорных актинидов / Отраслевой семинар «Технологии фракционирования и трансмутации минор-актинидов. Достижения и перспективы». — Москва, 2019.

33. Грачев А.Ф. и др. Вовлечение минорных актинидов в замкнутый топливный цикл проекта «Прорыв» // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. — 2017. — Вып. 4.

34. Иванов В.К., и др. Проблема оптимального выделения америция из ОЯТ БРЕСТ-ОД-300 на трансмутацию для обеспечения радиационной эквивалентности РАО и природного урана // Радиация и риск (бюллетень национального радиационно-эпидемиологического регистра). — 2020. — Т. 29.
35. Bin Liu, et al. Minor actinide transmutation in the lead-cooled fast reactor. Progress in Nuclear Energy —2019.
36. International Atomic Energy Agency (IAEA). Advanced Reactor Technology Options for Utilization and Transmutation of Actinides in Spent Nuclear Fuel. Vienna: IAEA, 2009. IAEA-TECDOC-1626.
37. Пономарев Л.И., и др. Быстрый жидкосолевой реактор на основе эвтектики LiF—NaF—KF как сжигатель Np, Am, Cm. // Атомная энергия. — 2019. — Т. 126. — № 3.
38. Дегтярев А.М., Пономарев Л.И. Жидкосолевой реактор с быстрым спектром нейтронов на основе LiF—NaF—KF. // Атомная энергия. — 2012 . — Т. 112. — Вып.6. — С. 367—368
39. Тормышев И. В. Программный комплекс для расчета радиационных характеристик топлива и конструкционных материалов. ISKRA, версия 1.0., № 2020660280; заявл. 09.09.2020 ;опубл. 26.10.2020. — 1 с.
40. Матвеев В.И., Хомяков Ю.С. Техническая физика быстрых реакторов. — Москва : Издательский дом МЭИ. — 2012. — 356 с. — ISBN 978-5-383-00717-4. — URL: <http://www.studmedlib.ru/book/MPEI187.html>.
41. Мантуров Г.Н., Николаев М.Н., Цибуля А.М. Система групповых констант БНАБ-93. Часть 1. Ядерные константы для расчета нейтронных и фотонных полей излучений // Вопросы атомной науки и техники. Серия «Ядерные константы» — 1996. — Вып.1. — С. 59—98.

Подписано к печати 27.12.2021. Формат 60×84 ¹/₁₆. Усл. п. л. 1,3. Уч.-изд. л. 1,9.
Тираж 45 экз. Заказ № 1 (2022 г.).

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