

Б85  
МФИ

МОСКОВСКИЙ ОРДЕНА ТРУДОВОГО КРАСНОГО ЗНАМЕНИ  
ИНЖЕНЕРНО-ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ

А. Н. Шмелев

ФИЗИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ОБЕЗВРЕЖИВАНИЯ  
РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ  
ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ



ВСЕСОЮЗНАЯ  
ШКОЛА ПО  
ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ  
ЯДЕРНОЙ ФИЗИКЕ  
им. В. М. ГАЛИЦКОГО

Москва 1990

533.1

13.65

ГОСУДАРСТВЕННЫЙ КОМИТЕТ СССР  
ПО НАРОДНОМУ ОБРАЗОВАНИЮ

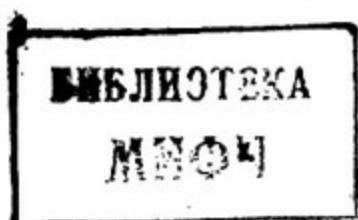
МОСКОВСКИЙ ОРДЕНА ТРУДОВОГО КРАСНОГО ЗНАМЕНИ  
ИНЖЕНЕРНО-ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ

А.Н. Шмелев

ФИЗИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ОБЕЗВРЕЖИВАНИЯ  
РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ  
ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ

Текст лекции

Утверждено  
редсоветом института



Москва 1990

УДК 621.039.5

Шмелев А.Н. Физические аспекты обезврекивания радиоактивных отходов ядерной энергетики. Текст лекции. М.: МИФИ, 1990.  
- 28 с.

Проанализирован нуклидный состав долгоживущих радиоактивных отходов. Рассмотрены ядерно-физические процессы, определяющие пути трансмутации активных нуклидов для снижения сроков на-дежного захоронения.

(С) Московский  
инженерно-физический  
институт, 1990 г.

## ВВЕДЕНИЕ

Одной из насущных проблем ядерной энергетики является проблема повышения безопасности послереакторного топливного цикла, где центральное место занимает вопрос об обезвреживании радиоактивных отходов (РАО). Как известно [1], радиоактивные отходы появляются на различных стадиях производства, начиная от добычи уранового сырья и кончая переработкой облученного топлива. Наибольшую сложность представляют в обращении радиоактивные отходы переработки облученного топлива. В них сосредоточена основная масса радиоактивных продуктов деления, характеризующихся высокой активностью, тепловыделением и длительным периодом спада активности. В настоящее время проблема надежного обезвреживания РАО привлекает большое внимание общественности. Причем надо заметить, что дискуссия по этой проблеме имеет одну специфическую особенность. Оппоненты ядерной энергетики высказывают мнение о том, что эта проблема не решена, поскольку не создана промышленная технология и не продемонстрирована во всей полноте возможность длительного надежного захоронения. Однако, чтобы продемонстрировать длительное захоронение, требуется десятки, а может и сотни тысяч лет. Понятно, что полномасштабная демонстрация надежного захоронения даже в принципе весьма затруднительна, учитывая требуемый фактор времени. С этой точки зрения разработчики в области ядерной энергетики находятся в весьма своеобразном положении. Поэтому считается, что радикальным путем решения проблемы радиоактивных отходов является их уничтожение, т.е. перевод в стабильные или короткоживущие нуклиды с последующей относительно недолгой выдержкой, а также частичное использование содержащихся в них ценных компонентов. Ниже рассматриваются физические стороны проблемы трансмутации радиоактивных отходов.

## ИЗ ЧЕГО СОСТОЯТ ОТХОДЫ ВЫСОКОЙ УДЕЛЬНОЙ АКТИВНОСТИ?

Когда говорят об отходах высокой удельной активности, то обычно имеют в виду отходы, которые получаются при переработке топлива реакторов деления. Нужно, однако, учитывать, что подобные проблемы будут возникать и при переработке облученного топлива гибридных термоядерных реакторов (ГТЯР), а также и реакторов электроядерного бридинга (ЭЛЯР), где в бланкетах предполагается размещение урана и тория и будет инициироваться деление в процессе накопления искусственного топлива. Основная масса продуктов деления содержит большое количество различных нуклидов, составляющих едва ли не половину таблицы Д.И. Менделесева. Выходы различных нуклидов продуктов деления зависят от энергии нейтрона, вызывающего деление. Так, на рис. I [2-4] приведены распределения выходов продуктов деления от массового числа при делении  $^{235}U$  тепловыми нейtronами и нейtronами с энергией  $E_n = 14.1 \text{ МэВ}$ . Различие в выходах весьма существенно не только в количественном отношении ряда нуклидов, но и в выходах эле-

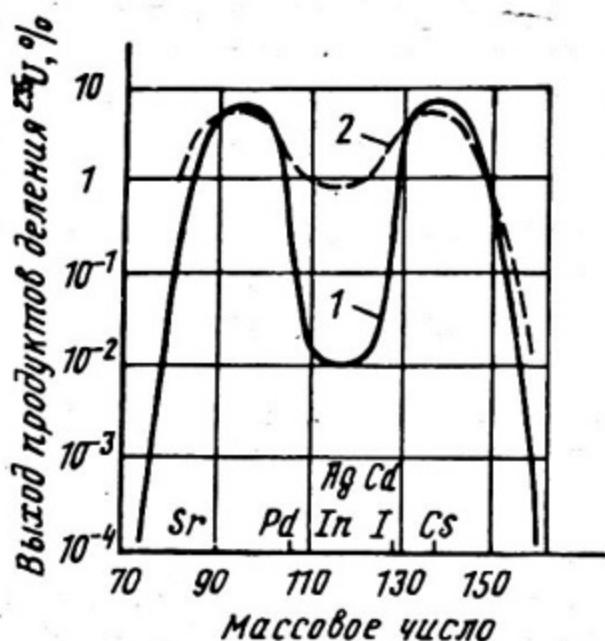


Рис. I. Массовые распределения продуктов деления  $^{235}U$  нейtronами различных энергий: I - тепловые нейtronы; 2 - нейtronы с энергией  $14.1 \text{ МэВ}$

ментов, влияющих на процессы радиохимической переработки топлива [2]. В результате использования как водных, так и неводных методов переработки облученного топлива [3] в составе отходов

оказывается основная масса продуктов деления, а также небольшая часть неизвлеченных тяжелых нуклидов (актинидов).

Считается, что степень извлечения  $U$  и  $Pu$  из облученного топлива достигает 99.5% [1,2], т.е. около 0.5% все же остается в составе отходов. При этом практически полностью остаются в составе отходов америций, кюрий, часть нептуния. Это объясняется тем обстоятельством, что по своим химическим свойствам америций и кюрий очень близки к редкоземельным элементам (РЗЭ), которых в составе продуктов деления около 22% [4]. Близость химических свойств трансплутониевых элементов ( $Lm$ ,  $Cm$  и т.д.) выражается в том, что при осуществлении переработки топлива водными методами (например, на основе распространенной в настоящее время экстракционной технологии извлечения урана и плутония из азотнокислых растворов облученного топлива) устойчивые валентные состояния  $Lm$ ,  $Cm$ ,  $Bk$  совпадают с устойчивыми валентными состояниями редкоземельных элементов, что показано на рис. 2. Для их разделения требуется использование дополнительного процесса. Нептуний – элемент, который в процессе переработки проявляется в различных валентных состояниях (что видно на рис. 2), и требуются также дополнительные усилия для его выделения. Таким образом, в настоящее время под высокоактивными РАО понимают смесь продуктов деления и трансурановых элементов – ТУЭ. В этой смеси имеются:

относительно коротковивущие продукты деления, требующие выдержки до одной–двух сотен лет;

относительно долговивущие продукты деления, требующие надежной изоляции в течение 700–900 лет;

нуклиды ТУЭ с длительными периодами полураспада (в основном  $\alpha$ -активные), требующие надежного захоронения на десятки и сотни тысяч лет.

На рис. 3 приведены основные нуклиды, определяющие различную по длительности активность. В качестве примера в табл. I приведен состав ТУЭ, которые могут находиться в РАО после трехлетней выдержки облученного уранового топлива водо–водянного реактора типа ВВЭР и последующего отделения  $U$  и  $Pu$  (99.5%) в процессе его переработки [5].

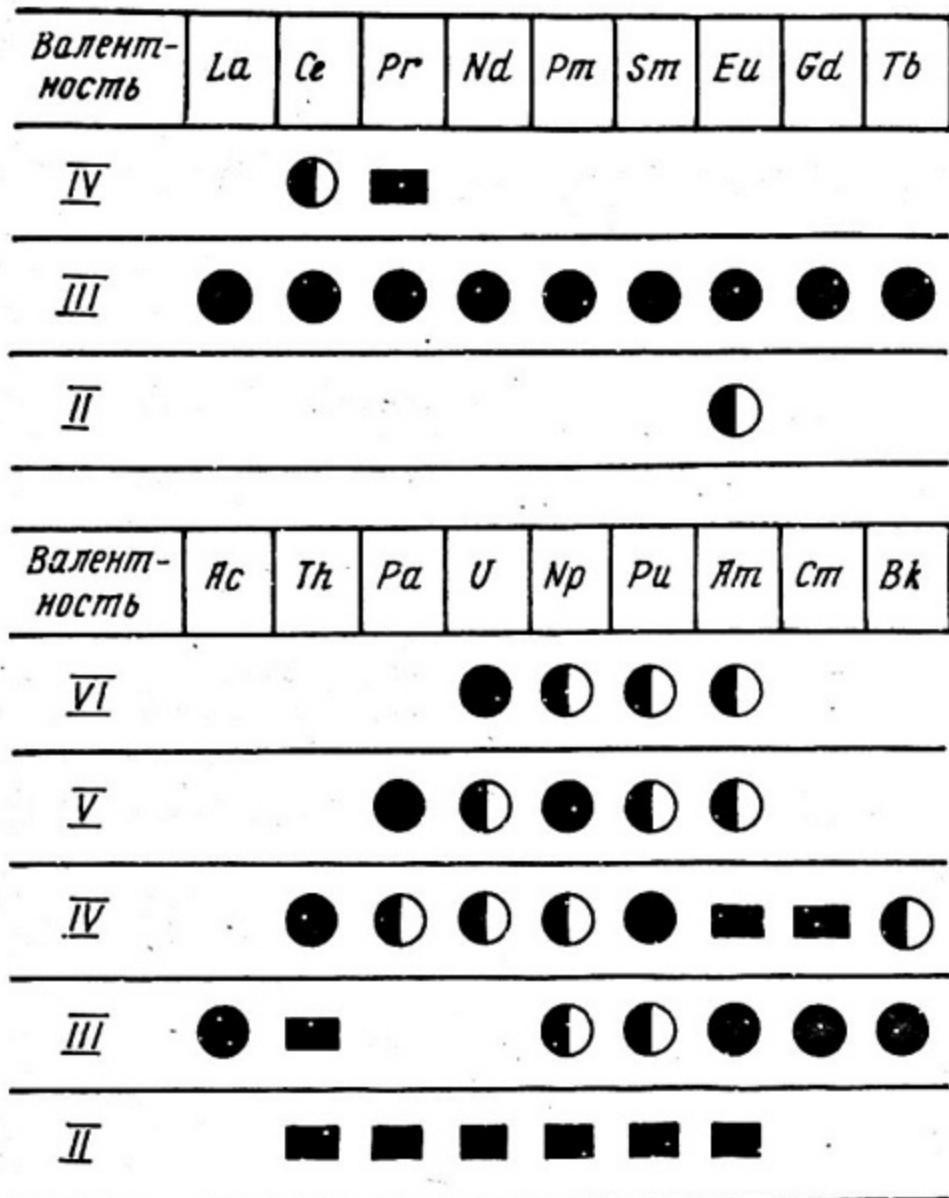


Рис. 2. Валентные состояния, проявляемые лантаноидами и актинидами:

● - устойчивое; ● - неустойчивое; ■ - твердое

		$T_{1/2}$ , год	$T_{1/2}$ , год
$FP_{KOP}$	+		
$Sr-90$	27.7	$U-235$	$7.1 \cdot 10^8$
$Cs-137$	30.0	-236	$2.4 \cdot 10^7$
$I-129$	$1.6 \cdot 10^7$	-238	$4.5 \cdot 10^9$
$Tc-99$	$2.1 \cdot 10^5$	$Np-237$	$2.1 \cdot 10^6$
$Kr-85$	10.8	$Pu-238$	87.7
$Sm-151$	87	-239	24380
$Eu-154$	16	-240	6537
		-241	14.5
		-242	$3.9 \cdot 10^5$
		$Am-241$	433
		-242 $m$	152
		-243	7400
		$Cm-242$	163 сут
		-243	30
		-244	18.1
		-245	8532

Рис. 3. Состав нуклидов радиоактивных отходов

Т а б л и ц а I

Нуклидный состав актинидов в отработавшем урановом топливе реактора ВВЭР-1000 после его трехлетней выдержки и отделения 99.5%  $U$  и  $Pu$ , отн.ед. [5]

Нуклид	Содержание	Нуклид	Содержание
$^{238}U$	0.9809	$^{241}Am$	0.503-2
$^{237}Np$	I.095-2*	$^{242}Am$	I.325-5
$^{238}Pu$	0.188-4	$^{243}Am$	0.245-2
$^{239}Pu$	0.649-3	$^{242}Cm$	0.366-5
$^{240}Pu$	0.249-3	$^{243}Cm$	0.892-5
$^{241}Pu$	0.137-3	$^{244}Cm$	0.533-3
$^{242}Pu$	0.645-3	$^{245}Cm$	0.264-4

\* Здесь и далее I.095-2 означает  $I.095 \cdot 10^{-2}$

## ОПАСНОСТЬ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Со временем выдержки РАО их активность спадает, как это показано на рис. 4 [6]. Можно видеть, что активность отходов в первые 700–900 лет определяется в основном продуктами деления, а в дальнейшем – активностью ТУЭ. Поэтому задача сокращения сроков надежной изоляции радиоактивных отходов условно может быть разделена на задачу снижения вклада ТУЭ (десятки и сотни тысяч лет) и снижения вклада долгоживущих продуктов деления (до тысячи лет). Это позволило бы сократить срок надежного хранения, по-видимому, до одной–двух сотен лет. В этой связи необходимо понимать, велика ли биологическая опасность, связанная с попаданием радиоактивных отходов в окружающую среду. В качестве количественной меры опасности пользуются величиной токсичности при попадании в организм человека [6] (или размером потенциала биологической опасности [9]), которая определяется как количество воды, которое требуется для такого разбавления РАО, чтобы повседневное потребление ее человеком не представляло опасности.

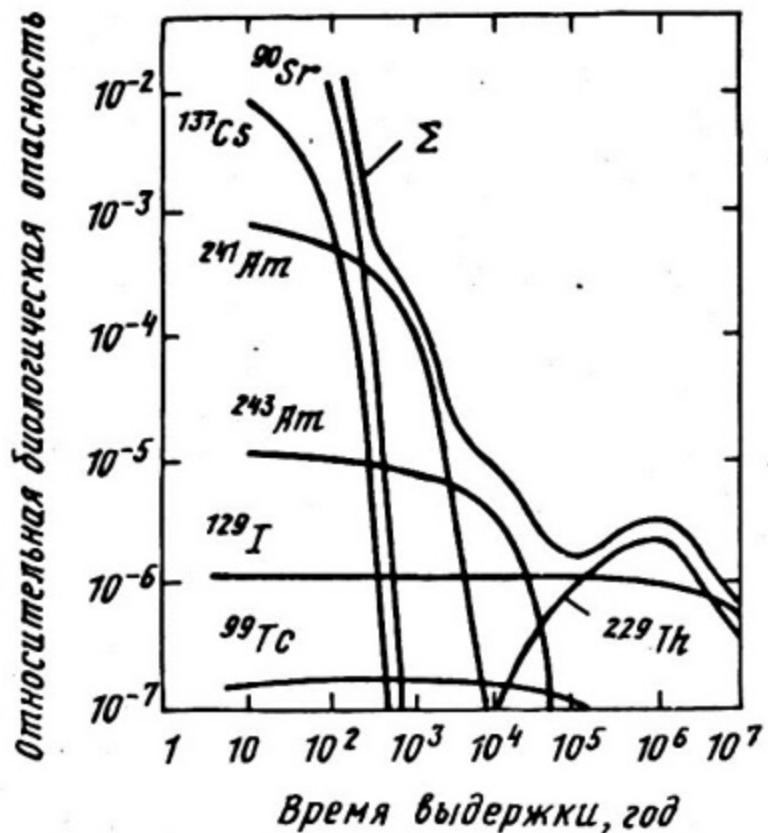


Рис. 4. Зависимость относительной биологической опасности радиоизотопов в составе РАО

для здоровья. На рис. 5 приведена зависимость изменения величины такой токсичности (в расчете на РАО, соответствующие I ГВт × год выработанной энергии) от времени выдержки РАО водо-водяного реактора. Для того чтобы составить наглядное представление много ли потребуется воды для безопасного разбавления РАО оценим количество воды в озере Байкал. Если принять, что его длина - 650 км, ширина - 40 км и средняя глубина - 0.5 км, то получим, что количество воды в озере Байкал составляет около  $1.3 \cdot 10^{13} \text{ м}^3$ . Сопоставив эту величину с масштабом графика на рис. 5, можно сделать вывод о том, что для разбавления до безопасного уровня радиоактивных отходов, полученных при работе одного реактора водо-водяного типа мощностью 1000 МВт (эл) в течение года, требуется количество воды, сопоставимое с количеством воды в озере Байкал. Этот пример показывает, что необходима надежная изоляция РАО в силу их большой опасности, а лучше - их уничтожение, т.е. превращение в стабильные или коротко живущие нуклиды. На рис. 4 видно, что наибольший вклад в активность РАО вносят следующие продукты деления:  $^{90}\text{Sr}$  ( $T_{1/2} = 27.7$  года),  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30.0$  лет),  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 1.6 \cdot 10^7$  лет) и  $^{99}\text{Tc}$  ( $T_{1/2} = 2.1 \cdot 10^5$  лет), а также ТУЭ.

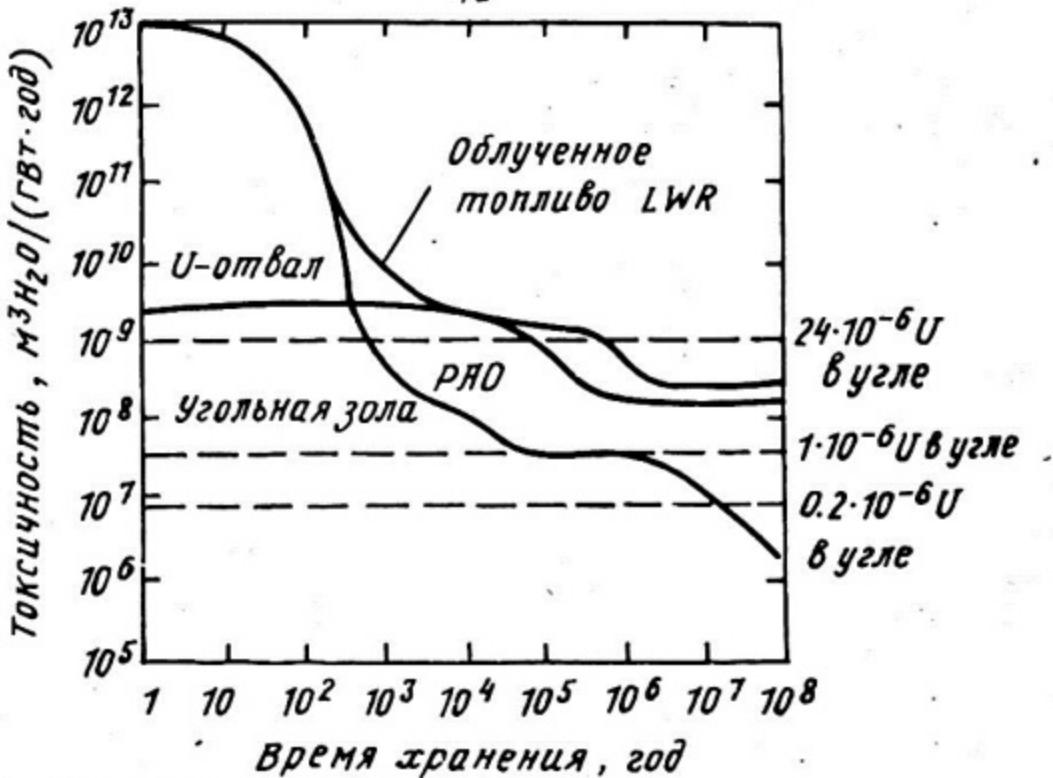


Рис. 5. Сравнение токсичности угольной золы, радиоактивных отходов и отвалов уранодобывающей промышленности при поступлении через органы пищеварения

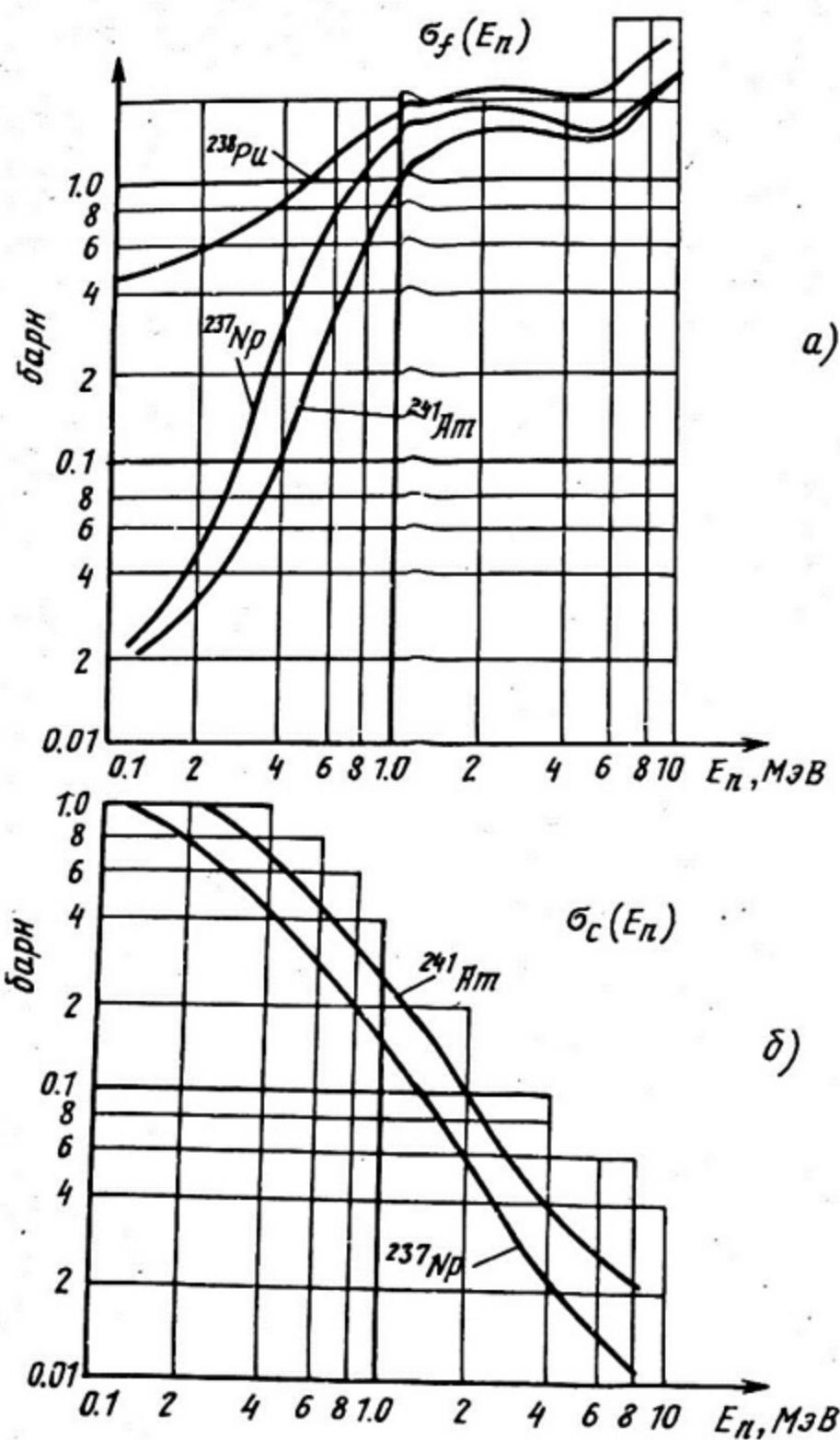


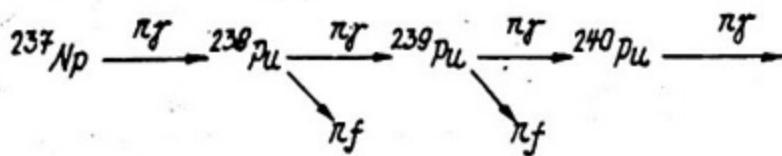
Рис. 6. Зависимость сечений деления и захвата актинидов от энергии нейтронов

Имея в виду, что эти и другие радионуклиды, вообще говоря, могут быть полезно использованы, далее остановимся на физических особенностях, связанных с их трансмутацией, т.е. превращением в стабильные или короткоживущие нуклиды.

### ТРАНСУРАНОВЫЕ ЭЛЕМЕНТЫ

В составе РАО содержатся уран и заурановые элементы (нейтриний, плутоний, америций, кюрий). Как можно видеть на рис. 2, уран в водных растворах характеризуется устойчивым шестивалентным состоянием и может быть относительно легко отделен от других ТУЭ. Если иметь в виду трансмутацию этих нуклидов добавлением или выбиванием одного-двух нуклонов из ядра, то ни тот ни другой процесс не выводят их из ряда актинидов. Поэтому считается, что трансмутация этих нуклидов состоит в их выжигании посредством деления нейtronами. В составе ТУЭ может находиться: 52%  $^{237}Np$ , 36% америция (в основном  $^{241}Am$  и  $^{243}Am$ ), 2.7% кюрия и остальное – смесь изотопов плутония. Для того чтобы определить условия, эффективные с точки зрения выжигания этих нуклидов, необходимо проанализировать зависимость от энергии сечений взаимодействия нейтронов с их ядрами и в первую очередь сечения деления.

На рис. 6 приведены зависимости сечения деления (а) и сечения захвата (б) нейтронов актинидами. Можно видеть, что отличительной чертой смеси ТУЭ с точки зрения их выжигания является то, что в области энергий нейтронов ниже 1 МэВ величина сечения  $\sigma_f$  заметно падает (для некоторых нуклидов в области малых энергий имеется некоторый подъем). Поэтому для эффективного выжигания этих нуклидов можно использовать быстрые реакторы (преимущественно с "жестким" спектром нейтронов), бланкеты термоядерных реакторов или электроядерные установки. Наиболее продвинутым типом установок, конечно, являются быстрые реакторы, промышленные образцы которых работают как в нашей стране, так и за рубежом. В спектре реактора на тепловых нейтронах нуклиды ТУЭ в основном будут захватывать нейтроны и интенсивное деление будет происходить только на некоторых из них. Среди таких нуклидов нужно отметить  $^{139}Ru$ , который будет делиться (да и то не очень эффективно) в спектре теплового реактора как нуклид, образующийся в цепочке превращений:



Эффективно делиться будет нуклид  $^{242m}_{\text{Upt}}$  ( $b_{f,\text{тепл}} \approx 6600 \text{ б}$ ), образующийся при захвате нейтрона нуклидом  $^{241}_{\text{Upt}}$ , правда, с небольшой вероятностью согласно цепочки превращений [7], что показано на рис. 7. При этом основной канал превращений приводит к образованию нуклидов  $^{242}_{\text{Cm}}$  и  $^{242}_{\text{Pu}}$ , которые нельзя отнести к эффективно делящимся нуклидам. Хорошими делящимися свойствами характеризуется  $^{245}_{\text{Cm}}$ , который образуется в цепочке

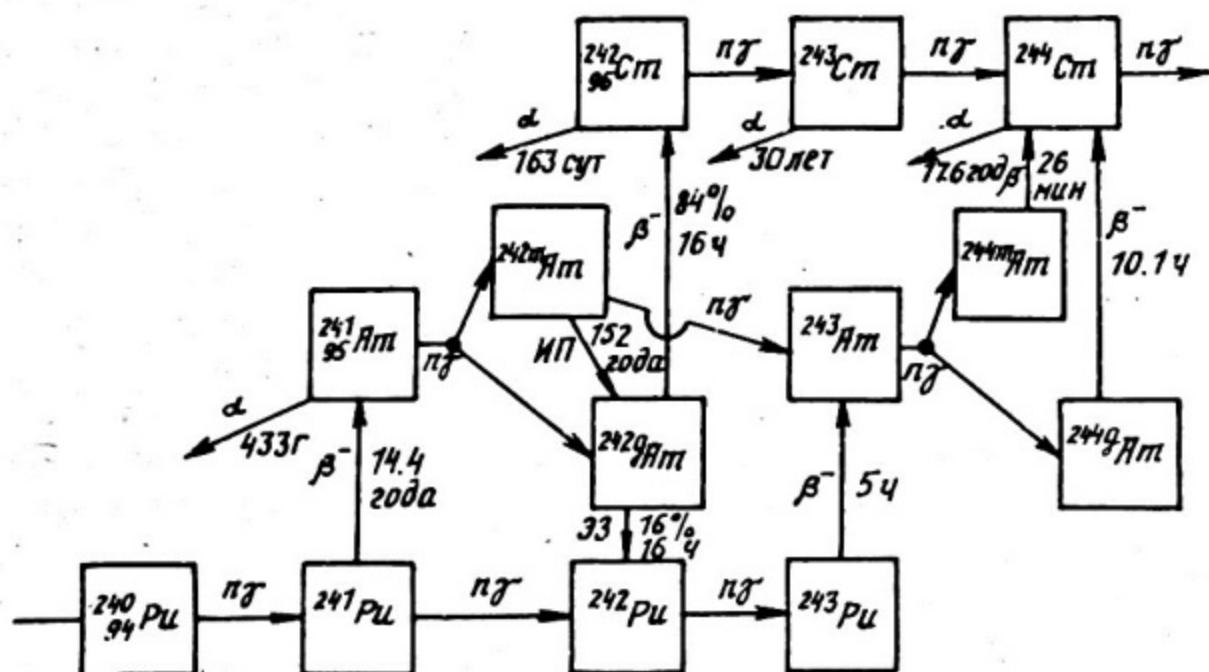
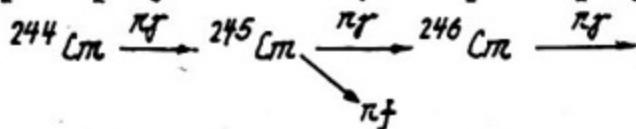


Рис. 7. Схема изостопных переходов  $^{241}_{\text{Upt}} - ^{242}_{\text{Cm}}$

Таким образом, чтобы выжигание осуществлять в тепловом реакторе, необходимо создать критическую загрузку, в которой ТУЭ являются, по существу, поглотителями нейтронов, необходимо расходовать нейтроны на их превращение в нуклиды с хорошими делящимися свойствами (в области энергий тепловых нейтронов) и затем осуществить

процесс их деления. Поэтому считается, что предпочтение в выкигании нуклидов ТУЭ следует отдавать установкам, в которых основные процессы происходят на быстрых нейтронах. В заключение этого раздела отметим, что при выкигании ТУЭ будут образовываться радиоактивные продукты деления (в том числе, конечно, и долгоживущие), которые в свою очередь необходимо будет подвергнуть трансмутации.

### СТРОНЦИЙ, ЦЕЗИЙ, ИОД И ТЕХНЕЦИЙ

$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{129}\text{I}$  и  $^{99}\text{Tc}$  – нуклиды из состава долгоживущих продуктов деления, которые определяют уровень биологической опасности РАО.

Для их трансмутации превращением в короткоживущие или стабильные нуклиды необходимо изменить полное количество или соотношение между нейtronами и протонами в ядре. Какие в этом отношении имеются сложности?

Во-первых, в составе стронция, извлекаемого из РАО, будет присутствовать не только  $^{90}\text{Sr}$ , но также и  $^{88}\text{Sr}$  (табл. 2). Аналогичная ситуация имеет место для цезия и иода. Технезий после выдержки, можно считать, будет содержать только один изотоп –  $^{99}\text{Tc}$ , т.е. в составе  $\text{Sr}$ ,  $\text{Cs}$  и  $\text{I}$  кроме изотопов с длительными периодами полураспада, которые нужно подвергнуть трансмутации, присутствуют также изотопы, которые нет нужды трансмутировать, однако они в определенной мере будут мешать процессу трансмутации, так как ядра этих изотопов будут блокировать "нужные" ядра от воздействия падающего излучения, да к тому же и ухудшая его качество. По-видимому, здесь возможны различные пути преодоления этой трудности. Либо подвергать трансмутации всю смесь изотопов и тогда повышаются требования к параметрам источника излучения, либо осуществить предварительное разделение изотопов и уже потом подвергать трансмутации "нужный" изотоп. Заметим, что при решении этого вопроса нужно иметь в виду то, что трансмутируемые изотопы радиоактивны и выделяют довольно много тепла (табл. 3). Это может приводить к необходимости при изготовлении обеспечивать определенное разбавление изотопа и именно с учетом этого обстоятельства (а также с учетом величины сечения захвата нейтронов) нужно решать вопрос о необходимости его выделения из смеси.

Таблица 2

Содержание  $Sr$ ,  $Cs$ ,  $I$  и  $Tc$  в продуктах  
деления  $^{235}U$  тепловыми нейтронами

Нуклид	$T_{1/2}$	Выход, %	Примечание
$^{88}Sr$	Стаб.	3.6	
$^{90}Sr$	27.7 года	5.9	
$^{133}Cs$	Стаб.	6.7	
$^{135}Cs$	$2.3 \cdot 10^6$ лет	2.2	С учетом горения
$^{137}Cs$	30.0 лет	6.23	
$^{127}I$	Стаб.	0.13	
$^{129}I$	$1.6 \cdot 10^7$ лет	0.9	
$^{99}Tc$	$2.1 \cdot 10^5$ лет	6.24	

Таблица 3

Данные по удельному тепловыделению радиоактивных нуклидов [4]

Нуклид	$^{88}Sr$	$^{137}Cs$	$^{238}Pu$	$^{241}Am$	$^{242}Cm$	$^{244}Cm$	$^{239}Pu$
$T_{1/2}$ , год	28.5	30.0	87.7	433	0.45	18.1	24380
Удельное тепло- выделение изо- топа, включая дочерний, Вт/кг	950	420	560	110	120000	2800	2.1

### ТРАНСМУТАЦИЯ СТРОНИЦИ

При добавлении нейтрона или его выбиваний с помощью быст-  
рого нейтрона или жесткого  $\gamma$ -кванта будет иметь место следую-  
щая цепочка изотопных превращений (рис. 8).



Рис. 8. Схема изотопных переходов при облучении  $^{90}\text{Sr}$  в ядерном реакторе

Для протекания  $(\pi, 2\pi)$ -и  $(\gamma, \pi)$ -реакций, которые носят пороговый характер, необходимо, чтобы энергия нейтрона была  $E_\pi \geq 8$  МэВ и энергия  $\gamma$ -кванта  $E_\gamma \geq 8.5$  МэВ. Радиационный захват нейtronов в  $^{90}\text{Sr}$  невелик (менее 1 б) и происходит преимущественно при энергиях нейtronов ниже 10 кэВ. Если обеспечивать частую очистку трансмутируемого стронция, то поглощение нейtronов будет приходиться в основном на  $^{90}\text{Sr}$ , и это значит, что на 100 делений в энергетическом ядерном реакторе потребуется 5.9 нейtronов (без учета потерь) в установке для трансмутации  $^{90}\text{Sr}$  в коротко живущие и стабильные нуклиды. Это можно осуществлять, например, в экране реактора на быстрых нейtronах при условии использования конструкционных материалов с малым сечением захвата нейtronов.

### ТРАНСМУТАЦИЯ ЦЕЗИЯ

Добавление нейтрона или его выбивание из ядра атома цезия будет приводить к следующим изотопным превращениям (рис. 9). Цезий в составе продуктов деления состоит (после выдержки) из трех изотопов:  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{135}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  с выходами для реактора на тепловых нейtronах [7]: 6.7%, 2.2% и 6.3% соответственно. Нужно заме-

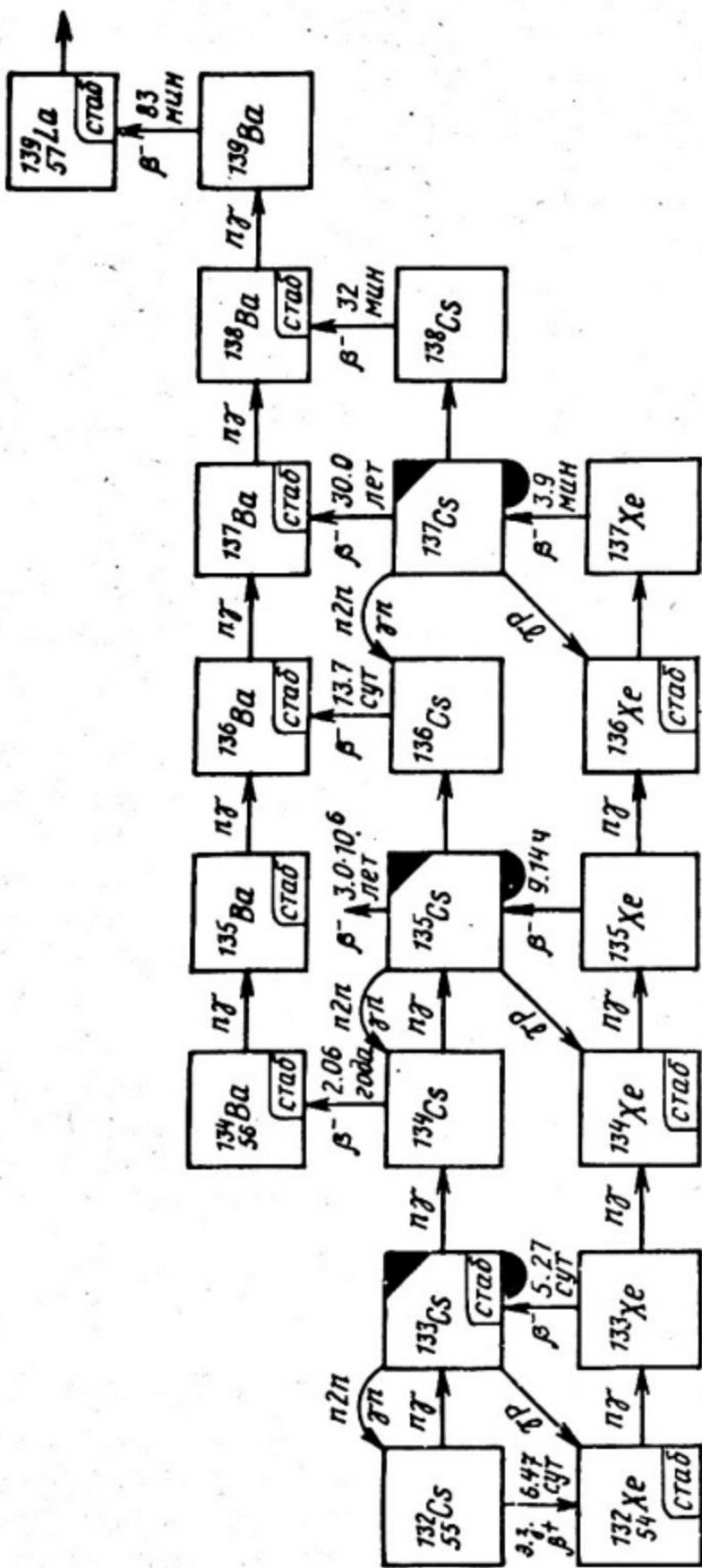


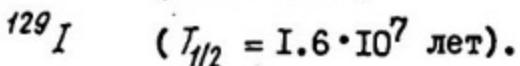
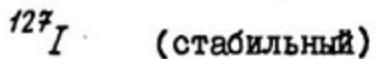
Рис. 9. Схема изотопных переходов при облучении  $^{60}\text{Co}$  в ядерном реакторе

тить, что пониженное содержание  $^{135}\text{Cs}$  по сравнению с другими изотопами связано с тем, что его предшественник —  $^{135}\text{Xe}$  эффективно выгорает в спектре тепловых нейтронов. В установках с быстрыми нейтронами содержание  $^{135}\text{Cs}$  будет выше (около 6.5% [7]). Особенностью трансмутации цезия с помощью нейтронов является то, что сечения захвата "нужным" изотопом —  $^{137}\text{Cs}$  в диапазоне реакторных энергий нейтронов заметно ниже, чем у  $^{133}\text{Cs}$  и  $^{135}\text{Cs}$ , и весьма мало.

Если трансмутации подвергать всю смесь изотопов, то, во-первых, это потребует повышенного расхода нейтронов и при этом в первую очередь будут трансмутироваться  $^{133}\text{Cs}$  и  $^{135}\text{Cs}$  (а  $^{137}\text{Cs}$  — в последнюю очередь). Во-вторых, область с  $^{137}\text{Cs}$ , оптически непрозрачная, должна иметь достаточно большой характерный геометрический размер.

### ТРАНСМУТАЦИЯ ИОДА

В составе продуктов деления после выдержки будут содержаться два изотопа иода:



Добавление или выбивание нейтрона из этих ядер иода приводит к следующей цепочке превращений (рис. IO).

Практически во всей области реакторных энергий нейтронов сечение захвата изотопа  $^{127}\text{I}$  больше, чем у  $^{129}\text{I}$ . Мало оно в области быстрых нейтронов и в области электронвольтных энергий. Поэтому для трансмутации  $^{129}\text{I}$  предпочтителен резонансный спектр нейтронов.

### ТРАНСМУТАЦИЯ ТЕХНЕЦИЯ

После выдержки в составе продуктов деления присутствует практически один изотоп технеция —  $^{99}\text{Tc}$  ( $T_{1/2} = 2.1 \cdot 10^5$  лет), который и требуется подвергать трансмутации, если не предусматривается полезное его использование. Добавление или выбивание нейтрона из ядра  $^{99}\text{Tc}$  приводит к следующей цепочке превращений (рис. II).  $^{99}\text{Tc}$  характеризуется достаточно большим сечением захвата нейтронов в области промежуточных энергий, что указывает на

возможность подвергать его трансмутации, например в реакторах на быстрых нейтронах, смягчив соответствующим образом спектр нейтронов.

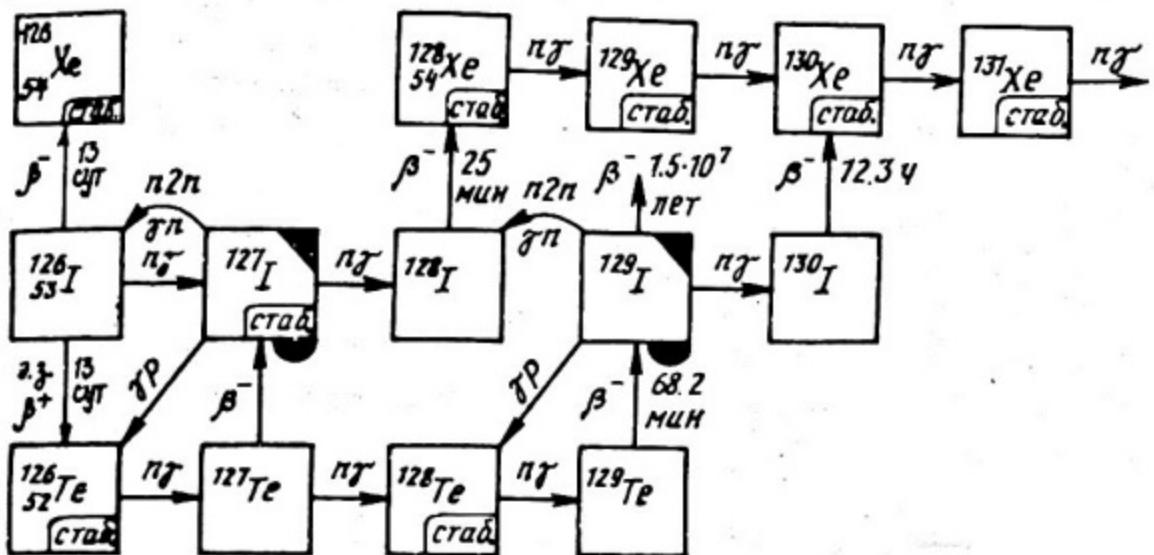


Рис. I0. Схема изотопных переходов при облучении I в ядерном реакторе

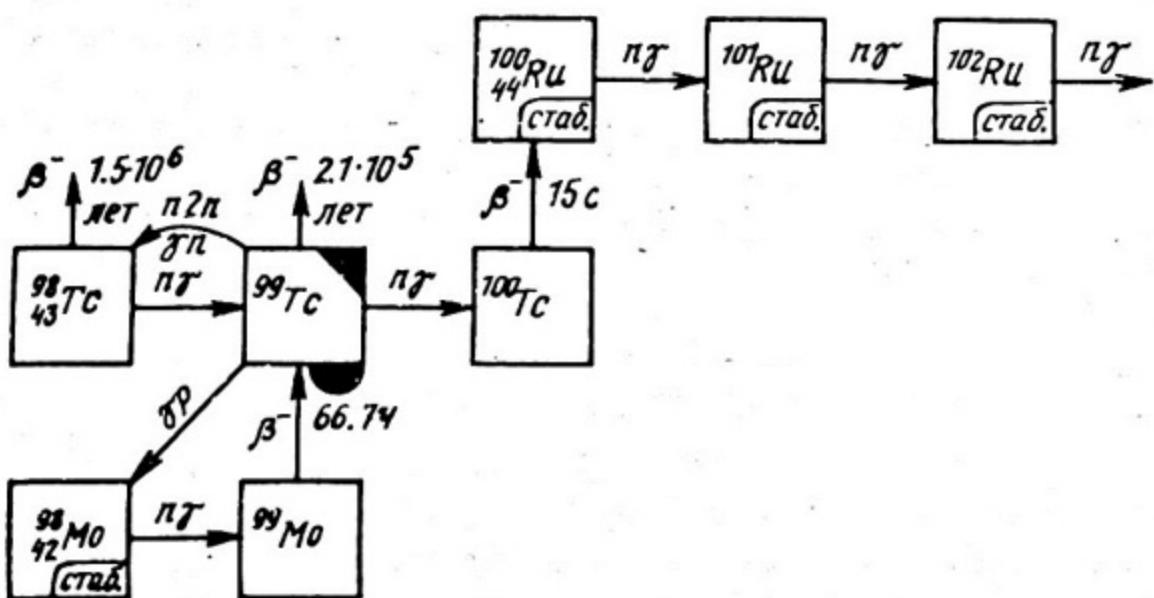


Рис. II. Схема изотопных переходов при облучении Tc в ядерном реакторе

## О НЕЙТРОННОМ БАЛАНСЕ С УЧЕТОМ ТРАНСМУТАЦИИ

Как известно, цепная реакция деления в ядерных реакторах приводит к получению энергии, а также и продуктов деления, которые необходимо подвергать трансмутации, например с помощью нейтронов. Оценим, велик ли расход нейтронов, требующихся для трансмутации рассмотренных выше долгоживущих продуктов деления. Как видно из табл. 2, в расчете на 100 разделившихся ядер  $^{235}U$  в продуктах деления будет  $\sim 5.9$  ядер  $^{90}Sr$ ,  $\sim 6.23$  ядер  $^{137}Cs$ ,  $\sim 0.9$  ядер  $^{129}I$  и  $\sim 6.24$  ядер  $^{99}Tc$ . В качестве нижней оценки будем предполагать, что для трансмутации каждого ядра потребуется только по одному нейтрону, тогда в каждом звене цепной ядерной реакции необходимо будет расходовать  $\sim 0.2$  нейтрона (в расчете на 1 нейtron, израсходованный на деление  $^{235}U$ ). Если трансмутировать не только указанные изотопы, а всю смесь изотопов стронция, цезия и иода (и тоже по одному нейтрону на одно ядро), то понадобиться  $\sim 0.32$  нейтрона извлекать из каждого звена цепного процесса. Причем, если трансмутации подвергать смесь изотопов с периодической очисткой и добавлением следующих порций смеси, то эффективность расхода нейтронов по достижении стационарного режима трансмутации будет характеризоваться величиной относительной доли выхода долгоживущего изотопа.

Например, для  $^{90}Sr$  эффективность расхода нейтронов составит  $\sim 59\%$ , для  $^{137}Cs \sim 41\%$ , для  $^{129}I \sim 87\%$  (однако такая эффективность использования нейтронов будет по достижении равновесного режима, а до этого эффективность будет значительно ниже).

Учитывая, что в ядерном реакторе на тепловых нейтронах водо-водяного типа коэффициент конверсии  $KK \sim 0.5$ , т.е. в цепном процессе имеется 0.5 "свободного" нейтрона, который поглощается в  $^{238}U$  (конечно, это – полезное поглощение), то можно считать, что избыточных нейтронов цепного процесса недостаточно (с учетом потерь) для эффективной трансмутации. Реакторы на быстрых нейтронах, как известно, характеризуются коэффициентом воспроизведения  $KB = 1.2-1.7$ , т.е. на один акт исчезновения ядра делящегося нуклида имеется 1.2-1.7 "свободных" нейтрона.

В существующих быстрых реакторах эти "свободные" нейтроны используются для накопления в избытке вторичного топлива поглощением их в уране-238 или тории. Поэтому, если сопоставить количество "свободных" нейтронов в быстром реакторе с нижней оценкой необходимого расхода нейтронов для трансмутации, то можно

сказать, что существует принципиальная возможность осуществлять в этих реакторах трансмутацию, что существенно сократит сроки надежного захоронения РАО. Если вся ядерная энергетика будет базироваться на быстрых реакторах, то проблема трансмутации долгоживущих РАО в существенной мере может решаться, так сказать, в рамках функционирования самой ядерной энергетики (быть может, с небольшим привлечением специальных установок для трансмутации). Хорошая нейтронная экономия, присущая таким реакторам, рассматривалась, как правило, под углом зрения бридинга искусственно-го ядерного топлива и обеспечения им на практически неограниченный срок всей ядерной энергетики любых мыслимых масштабов.

Ясно, что определенное распределение избыточных нейтронов между бридингом и трансмутацией придаст таким реакторам в перспективе новое важное качество и тем в большей мере, чем лучше будут, так сказать, "бридинговые" показатели этих реакторов. Конечно, новые функции должны повлиять на принципы компоновки зоны цепной реакции, на размещение материалов. Если же в ядерной энергетике быстрые реакторы будут составлять только часть мощностей и причем относительно небольшую, то их нейтронный баланс не сможет обеспечить трансмутацию долгоживущих продуктов деления от всех ядерных установок. При этом необходимо создать дополнительные установки - мощные источники излучения для осуществления трансмутации (термоядерные установки, установки с использованием ускорителей), способные обеспечить генерацию потоков излучения такой мощности, которая была бы достаточной для осуществления эффективной трансмутации.

#### О НЕОБХОДИМОСТИ ОБЕСПЕЧЕНИЯ ВЫСОКИХ ПЛОТНОСТЕЙ ПОТОКОВ ИЗЛУЧЕНИЯ ДЛЯ ТРАНСМУТАЦИИ

Существует распространенная точка зрения о том, что условием трансмутации продуктов деления с должной скоростью является обеспечение высоких плотностей потоков излучения (часто рекордных уровней), в особенности для трансмутации нуклидов, чье эффективное сечение взаимодействия с излучением невелико. Изложим основные соображения, на которых основывается этот тезис и попытаемся подвергнуть его сомнению. В качестве примера рассмотрим задачу о трансмутации нейtronами реакторных энергий нуклида  $^{137}Cs$ .

Известно, что скорость изменения концентрации трансмутируемого нуклида может быть записана в виде [8]:

$$\frac{dg_{Cs-137}}{dt} = -(\lambda_{Cs-137} + \sigma_c^{Cs-137} \Phi) \cdot g_{Cs-137}.$$

В этом случае эффективный период полураспада трансмутируемого  $^{137}Cs$

$$\tilde{T}_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda_{Cs-137} + \sigma_c^{Cs-137} \Phi} = T_{1/2} \frac{1}{1 + \frac{\sigma_c^{Cs-137} \Phi}{\lambda_{Cs-137}}},$$

где  $T_{1/2} \equiv \frac{\ln 2}{\lambda_{Cs-137}}$ .

Можно видеть, что если  $\Phi = 0$ , то  $\tilde{T}_{1/2} = T_{1/2} = 30.0$  годам. Из формулы для  $\tilde{T}_{1/2}$  видно, что, для того чтобы сократить эффективный период полураспада, скажем, на порядок, необходимо иметь

$$\frac{\sigma_c^{Cs-137} \Phi}{\lambda_{Cs-137}} \simeq 10 \cdot T_{1/2}.$$

Если принять, что  $\sigma_c^{Cs-137} \sim 0.1$  б, то получим, что необходимая плотность потока нейтронов должна составлять

$$\Phi \simeq \frac{10 \cdot \lambda_{Cs-137}}{\sigma_c^{Cs-137}} = 1.3 \cdot 10^{17} \text{ н/}(cm^2 \cdot c).$$

Такая плотность потока нейтронов достаточно велика, если учесть, что в быстрых реакторах она составляет  $\sim 10^{16}$  н/( $cm^2 \cdot c$ ) при плотности тепловыделения  $\sim 500$  кВт/л в активной зоне. Здесь нужно обратить внимание на весьма ограниченные возможности по сокращению эффективного периода полураспада: либо создавать условия, при которых значение  $\sigma_c$  оказывается достаточно высоким, либо повышать  $\Phi$ , т.е. повышать плотность потока нейтронов.

Однако в данном рассуждении не соотносится скорость образования радиоактивного  $^{137}Cs$  со скоростью его трансмутации. А такое рассмотрение может уточнить необходимые условия для трансмутации.

Уравнение баланса для количества трансмутируемого  $^{137}Cs (\sigma_{Cs-137})$  для случая непрерывной подпитки может быть записано в следующем виде:

$$\frac{d\sigma_{Cs-137}}{dt} = Y_{Cs-137} N_f - \lambda_{Cs-137} \sigma_{Cs-137} - \int dV \sigma_c^{Cs-137} \Phi \cdot g_{Cs-137},$$

Где  $Y_{Cs-137}$  – выход  $^{137}Cs$  при делении с учетом его выгорания;  $N_f$  – скорость делений в энергетических ядерных реакторах.

Если  $^{137}Cs$  размещена в некотором объеме установки для трансмутации и туда поступают нейтроны ( $\text{J, нейтр/с}$ ), то можно записать нейтронный баланс в этом объеме в интегральном виде:

$$J = (1 + \xi_{\text{пот}}) \int dV \sigma_c^{Cs-137} \Phi g_{Cs-137},$$

где  $\xi_{\text{пот}}$  – доля нейронов, "бесполезно" потерянных в этом объеме. Используя это соотношение, перепишем уравнение материального баланса для  $G_{Cs-137}$  в следующей форме:

$$\frac{dG_{Cs-137}}{dt} = Y_{Cs-137} N_f - \lambda_{Cs-137} G_{Cs-137} - \frac{1}{1 + \xi_{\text{пот}}} J.$$

Стационарное решение ( $G_{Cs-137} = \text{const}$ ) имеет вид:

$$G_{Cs-137} = \frac{Y_{Cs-137} N_f}{\lambda_{Cs-137}} \left( 1 - \frac{1}{1 + \xi_{\text{пот}}} \frac{J}{Y_{Cs-137} N_f} \right).$$

Эффективный период полураспада

$$\tilde{T}_{1/2} = T_{1/2} \left( 1 - \frac{1 + \xi_{\text{пот}}}{Y_{Cs-137}} \frac{J}{N_f} \right).$$

Из этого выражения следует, что для сокращения эффективного периода полураспада необходимо обеспечить соответствие имеющейся скорооти "генерации"  $^{137}Cs$  в энергетических реакторах ( $Y_{Cs-137} N_f$ ) данной скорости генерации нейтронов в установках для трансмутации (с учетом потерь). При этом отсутствует требование обеспечения высокой плотности излучения.

### О ФИЗИКЕ БЫСТРОГО РЕАКТОРА-“ВЫЖИГАТЕЛЯ”

Такой реактор отличается тем обстоятельством, что в нем можно осуществлять выжигание ТУЭ, а также с помощью избыточных нейтронов трансмутировать продукты деления [9]. Причем в активной зоне размещаются ТУЭ, которые полностью или в значительной мере определяют критичность реактора, а в экранах – соединения долгоживущих продуктов деления, которые за счет избыточных нейтронов будут подвергаться трансмутации. Остановимся на некоторых особенностях физических процессов в таком реакторе.

Критичность В составе ТУЭ большая часть нуклидов характеризуется тем, что сечение деления существенно уменьшается при энергиях нейтронов ниже 0.5-1 МэВ. Это означает, что в такой активной зоне спектр критического реактора должен быть очень жесткий, если его сравнивать со спектром нейтронов современных энергетических быстрых реакторов. Введение разбавителей в активную зону может заметно ухудшить размножающие свойства актинидного топлива в первую очередь за счет смягчения жесткой компоненты спектра нейтронов.

Изменение реактивности. Существует большое количество причин, обуславливающих изменение критичности реактора. Среди них важное место занимает эффект изменения критичности при изменении плотности теплоносителя, например при изменении его температуры, что характеризуется так называемым температурным коэффициентом реактивности.

Как уже отмечалось, отличительной особенностью реактора является то, что в области энергии нейтронов 0.5-1 МэВ сечение деления заметно падает. Это означает, что при снижении плотности теплоносителя (например, при его перегреве) спектр нейтронов будет становиться более жестким, а в таком спектре будут улучшаться размножающие свойства активной зоны, повышаться  $K_{\text{эф}}$  реактора. Иными словами, при разогреве теплоносителя такой реактор может разгоняться (положительный коэффициент реактивности по теплоносителю), если, конечно, отсутствуют конкурирующие физические процессы, обуславливающие снижение реактивности. Таким физическим процессом может быть утечка нейтронов из активной зоны в экраны, где "ценность" нейтрона по отношению к цепному процессу низка. Поэтому в таком реакторе характерные размеры активной зоны или топливных областей должны быть выбраны небольшими, чтобы эффект, связанный с утечкой нейтронов, превалировал над "спектральным" эффектом.

Другая важная особенность, связанная с характером зависимости сечения деления от энергии нейтронов, состоит в том, что при введении замедлителя в активную зону ее критичность падает. Эта ситуация противоположна тому, что наблюдается в существующих реакторах на быстрых нейтронах, в которых тщательным образом следят, чтобы замедлитель ни в коем случае не попал в актив-

ную зону. Это чревато всплеском реактивности и серьезными последствиями. Это физическое отличие позволяет говорить, например, о том, что в таком реакторе аварийная защита может быть выполнена из замедлителя. В существующих быстрых реакторах  $\text{B}_4\text{C}$  используется для глушения цепной реакции вследствие реакции захвата нейтронов в  $^{10}\text{B}$ . В реакторе с актинидным топливом реакция будет глушиться не столько благодаря захвату нейтронов в  $^{10}\text{B}$ , сколько за счет замедления на всех легких элементах в составе  $\text{B}_4\text{C}$ . С учетом этого обстоятельства представляется предпочтительным выполнить экраны (вокруг активной зоны) из материалов, содержащих замедлитель. Это будет способствовать повышению безопасности реактора, а также увеличению эффективности трансмутации продуктов деления, размещенных в экранах реактора. Эффективная трансмутация может также осуществляться и в устройствах типа "нейтронных ловушек", размещенных в активной зоне.

О запаздывающих нейтронах. В быстром реакторе с актинидным топливом в отличие от существующих быстрых реакторов основная доля делений может приходиться на такие нуклиды, как нептуний, плутоний-238, америций, кюрий.

Доля запаздывающих нейтронов (важная характеристика с точки зрения безопасности и управляемости реактора) при делении этих нуклидов невелика и известна менее хорошо, чем для традиционно используемых делящихся материалов –  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ .

Некоторые данные по запаздывающим нейтронам представлены в табл. 4 [10]. Кроме этого, учитывая, что спектр нейтронов в реакторе с актинидным топливом весьма жесткий, нужно иметь в виду, что относительно мягкие запаздывающие нейтроны будут оказывать ослабленное влияние на развитие цепной ядерной реакции. Иными словами, это будет иметь место вследствие того, что "ценность" смягченных нейтронов невелика по отношению к влиянию на  $K_{\text{эф}}$  (или на баланс цепной реакции). Ослабление этого недостатка может быть достигнуто использованием некоторого количества традиционных делящихся нуклидов ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ), у которых с уменьшением энергии нейтронов растет сечение деления.

Таблица 4

Выход запаздывающих нейтронов на 100 делений [10]

Нуклид	Выход	Нуклид	Выход
Деление тепловыми нейтронами		Деление быстрыми нейтронами	
$^{235}U$	$1.678 \pm 0.09$	$^{235}U$	$1.712 \pm 0.154$
$^{239}Pu$	$0.644 \pm 0.06$	$^{238}U$	$4.25 \pm 0.51$
$^{241}Pu$	$1.485 \pm 0.16$	$^{237}Np$	$1.15 \pm 0.15$
$^{243}U$	$0.35 \pm 0.08$	$^{239}Pu$	$0.64 \pm 0.09$
$^{245}U$	$0.59 \pm 0.05$	$^{240}Pu$	$0.905 \pm 0.154$
		$^{241}Pu$	$1.31 \pm 0.24$
		$^{242}Pu$	$1.86 \pm 0.51$
		$^{241}Am$	$0.394 \pm 0.15$

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Синев Н.М. Экономика ядерной энергетики. М.: Энергоатомиздат, 1987.
2. Громов Б.В., Савельева В.И., Шевченко В.Б. Химическая технология облученного ядерного топлива. Учебник для вузов. М.: Энергоатомиздат, 1983.
3. Шведов В.П., Седов В.М., Рыбальченко И.Л. Ядерная технология. М.: Атомиздат, 1979.
4. Синицын Н.М., Корпусов Г.В., Зайцев Л.М. Химия долгоживущих осколочных элементов. М.: Атомиздат, 1970.
5. Матвеев Л.В., Рогожкин В.Ю. Актиноиды в жидких отходах, образующихся в процессе регенерации ядерного топлива ВВЭР-1000. Атомная энергия, т. 66, вып. 6, 1989, с. 388-394.
6. Справочник по ядерной энерготехнологии/Под ред. В.А. Легасова. М.: Энергоатомиздат, 1989.
7. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива. Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1983./Авт.: В.М. Колобашкин, П.М. Рубцов, П.А. Ружанский и В.Д. Сидоренко.
8. Костин В.Я., Мигаленя В.Я., Шатнев М.Г. О "выжигании" радиоактивных отходов ядерного топлива в потоке быстрых нейтронов. Атомная энергия, т. 51, вып. 5, 1981, с. 336-337.

9. Технологические аспекты ядерных энергетических систем с воспроизведением топлива/Пер. с англ. Под ред. Г. Бауэра и А.Макдональда. М.: Энергоатомиздат, 1988.

Ю. Маневич Л.Г., Немировский П.Э., Юдкевич М.С. Расчет интегральных характеристик запаздывающих нейтронов. ВАНТ, сер. Ядерные константы, вып. 2, 1988, с. 3-II.

## СОДЕРЖАНИЕ

Введение.....	3
Из чего состоят отходы высокой удельной активности?	4
Опасность радиоактивных отходов.....	8
Трансурановые элементы.....	II
Стронций, цезий, иод и технеций.....	I3
Трансмутация стронция.....	I4
Трансмутация цезия.....	I5
Трансмутация иода.....	I7
Трансмутация технеция.....	I7
О нейтронном балансе с учетом трансмутации.....	I9
О необходимости обеспечения высоких плотностей потоков излучения для трансмутации.....	20
О физике быстрого реактора-"выжигателя".....	22
Список литературы.....	25

Анатолий Николаевич Шмелев

ФИЗИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ОБЕЗВРЕДИВАНИЯ  
РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ  
ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ

Текст лекции

Редактор О.А. Сафронова  
Техн. редактор Е. Н. Кочубей  
Корректор М.В. Макарова

---

Л.-15268      Подписано в печать 10. 4. 90      Формат 60x84 I/16  
Объем 1,75 п.л.      уч.-изд.л. 2,0      Тираж 200 экз. Изд. № 052-1  
                      Заказ 724      Цена 10 коп.

---

Московский инженерно-физический институт. Типография МИФИ.

115409, Москва, Калужское шоссе, 31