

УДК 621.039.51

ПРО МОЖЛИВІСТЬ ТРАНСМУТАЦІЇ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ В ЕЛЕКТРОЯДЕРНІЙ СИСТЕМІ, КЕРОВАНІЙ ПОТУЖНИМ НЕЙТРОННИМ ГЕНЕРАТОРОМ

© 2011 р. В. О. Бабенко¹, В. І. Гулік², В. М. Павлович², А. П. Рибалова³

¹ Інститут теоретичної фізики НАН України, Київ

² Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ

³ Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, Київ

Розглянуто проблему радіоактивних відходів ядерної енергетики. Проаналізовано спектр радіоактивних відходів та умови, при яких трансмутація цих радіоактивних відходів буде проходити більш ефективно. Представлено результати моделювання трансмутації основних радіоактивних ізотопів у двозонній підкритичній системі, керованій потужним нейтронним генератором.

Ключові слова: трансмутація радіоактивних відходів, електроядерні системи, підкритичні реактори.

Вступ

Сьогоднішня ядерна енергетика є результатом 50-річного розвитку, упродовж якого ця технологія досягла індустріальної зрілості та стала надійним джерелом для задоволення потреб в електроенергії. Після того, як в 40 - 50-х роках було створено перші дослідницькі та енергетичні ядерні реактори, галузь ядерної енергетики стрімко розвивалася протягом 60 - 70-х років. Було досліджено, створено та побудовано велику кількість ядерних реакторів різних модифікацій [1, 2]. Однак унаслідок аварій на ЧАЕС (1986 р. – аварія з розгоном на миттєвих нейтронах) та на АЕС Три-Майл-Айленд (1979 р. – аварія з втратою теплоносія, що призвела до розплавлення активної зони) розвиток атомної енергетики зупинився, більшість країн з атомною енергетикою заморозили свої програми, а інші країни відмовилися від будівництва нових АЕС. Однак за останні 20 років інтерес до атомної енергетики відновився з новою силою. Це зумовлено тим, що атомна енергетика на сьогодні є практично безальтернативним джерелом електроенергії з точки зору економіки, нерозповсюдження екологічного забруднення, глобального потепління та зростання дефіциту невідновлювальних джерел енергії. Виходячи з цього, у багатьох країнах світу почався новий розвиток атомної енергетики, який прийнято називати «ядерним ренесансом».

Але на даний момент атомна енергетика має ряд недоліків, які потрібно вирішувати: а) можливість її використання для військових цілей та загроза розповсюдження ядерної зброї; б) небезпека серйозних аварій; в) проблема радіоактивних відходів; г) проблема ресурсів. Це основні причини, що затримують розвиток ядерної енергетики у світі. Щодо проблем загрози розповсюдження ядерної зброї та безпеки діючих АЕС в останні два десятиліття були досягнуті значні успіхи, а третя проблема - радіоактивні відходи - залишається дотепер актуальною. Загальноприйнято, що проблема ресурсів буде розв'язана впровадженням реакторів на швидких нейтронах.

Проблематика радіоактивних відходів

На даний час існує тільки два реальних підходи у вирішенні проблеми радіоактивних відходів: 1) пряме захоронення в підземних сховищах без переробки або часткова переробка з повторним використанням урану та плутонію у вигляді змішаного оксидного (МОХ) палива; 2) повна переробка відпрацьованого ядерного палива (ВЯП) з відокремленням найбільш небезпечних довгоживучих високоактивних відходів для їхньої подальшої трансмутації в електроядерних системах і реакторах на швидких нейтронах.

Однак потрібно зазначити, що перший підхід має рад суттєвих недоліків, а саме: неможливість прогнозування безпечного зберігання на десятки тисяч років, оскільки відсутні дані довготривалої стійкості конструкційних матеріалів більш ніж на 100 років;

надзвичайно велика кількість радіоактивних відходів накопичена на даний час. У світі будується лише декілька сховищ ВЯП. Найбільше з них в США (Yucca Mountain) довжиною 100 км та максимальним вмістом 70000 т (при цьому щорічно на АЕС світу отримується приблизно 8000 т ВЯП). Вартість цього сховища 15 млрд доларів США, і на сьогодні керівництво США відмовилося від цього проекту [3];

необхідність великих витрат дорогих матеріалів при захороненні відходів;

відсутність методів розрахунку для підтвердження безпеки сховища;

більшість радіонуклідів мають високу ймовірність зі сховища потрапити в біологічне середовище протягом тисяч років;

необхідність спеціальних геологорозвідувальних робіт великого об'єму.

Якщо окремо торкнутися економічної складової захоронення радіоактивних відходів у стійких геологічних формаціях, то за даними [4] середня ціна зберігання 1 кг ВЯП у таких сховищах становить 1000 доларів США. Виходячи з цього, за даними [5], зберігання високоактивних відходів потребує затрат $1 \cdot 10^9$ доларів США на один блок типу ВВЕР-1000 за час його 40-річної експлуатації.

На початку розвитку атомної енергетики проблему радіоактивних відходів, як і проблему обмеженої кількості урану, планували вирішити за рахунок впровадження реакторів на швидких нейтронах. Оскільки відомі запаси урану збільшилися, а зростання ядерної енергетики не виправдало ранніх очікувань, то уран став дешевим і передбачуване швидке введення реакторів на швидких нейтронах не відбулося. Також важливо зазначити, що швидкі реактори ефективні лише в трансмутації трансуранових елементів, а використання їх для трансмутації продуктів поділу (наприклад ^{99}Tc) призводить до зменшення коефіцієнта відтворення ядерного палива та погіршення фізичних характеристик реактора, пов'язаних із безпекою [6].

У багатьох країнах, у тому числі й в Україні, використовується однократний паливний цикл, де ВЯП спочатку витримується в приблокових басейнах, а потім перевантажується в тимчасові сухі або водяні сховища для зберігання. Деякі країни приступили до переробки відпрацьованого палива, користуючись технологією ПУРЕКС для виділення урану і плутонію, яка була доступна з військових досліджень [7]. У той час, як деяка частина виділеного плутонію повторно використовується у вигляді MOX палива у традиційних реакторах, залишкова суміш вторинних актинідів і продуктів поділу готується для кінцевого захоронення. Сьогодні після 50 років використання атомної енергетики більшість країн з програмою ядерної енергетики мають зростаючі запаси ВЯП або відокремленого плутонію та високоактивних відходів у вигляді скляних блоків, і подальше майбутнє цих матеріалів є невизначеним.

Зараз у більшості країн, які зіткнулися з цією проблемою, геологічне захоронення, у тій чи іншій формі, є прийнятним рішенням для захисту людей та їхнього оточення в далекому майбутньому. Однак труднощі, на які наштовхується проектування, розробка та ліцензування сховищ, не кажучи вже про громадський протест проти ядерних відходів, спричинили затримку в розробці цього обладнання.

Можливість трансмутації радіоактивних відходів

Для скорочення кількості радіоактивних відходів останнім часом інтенсивно обговорюється можливість використання процесу трансмутації. Ядерна трансмутація - це перетворення одного хімічного елемента або ізотопу в інший, і це перетворення здійснюється внаслідок ядерних реакцій. Природна трансмутація відбувається, коли радіоактивні елементи спонтанно розпадаються протягом тривалого періоду часу і переходять в інші більш стабільні елементи. У більшості випадків штучна трансмутація відбувається в установках, що мають досить енергії для зміни ядерної структури елементів. Однак є ряд досліджень, які вказують на те, що штучна трансмутація може відбуватись у біологічних системах і без додаткової енергії. Цей метод отримав назву – ефект низькотемпературної трансмутації ізотопів у мікробіологічних системах [8].

Розглядаючи високоактивні відходи, що містяться у ВЯП, можна дійти висновку, що трансмутація необхідна для двох основних груп елементів. Перша група – це трансуранові елементи (плутоній та мінорні актиніди), друга група – продукти поділу. Основні елементи та ізотопи, що містяться у ВЯП реакторів типу LWR (легководні реактори), представлено в табл. 1.

Таблиця 1. Склад ВЯП (основні радіонукліди/1ГВт у рік) [9]

Актиніди				Продукти поділу			
Нуклід	T _{1/2} , рік	Маса, кг		Нуклід	T _{1/2} , рік	Маса, кг	Фракція ізотопу, %
		U(²³⁵ U)	МОХ				
²³⁵ U	7,0·10 ⁸	280	50	⁸⁵ Kr	10.8	0.4	
²³⁶ U	2,3·10 ⁷	120	20	⁹⁰ Sr	29	14	
²³⁸ U	4,5·10 ⁹	2,8·10 ⁴	2,7·10 ⁴	¹³⁷ Cs	30	32	
²³⁷ Np	2,1·10 ⁶	15	10	¹⁵¹ Sm	93	0.3	
²³⁸ Pu	88	6 (2 %)	25 (3,5 %)	⁷⁹ Se	6,5·10 ⁴	0.2	10
²³⁹ Pu	2,4·10 ⁴	170 (57 %)	350 (47,5 %)	⁹³ Zr	1,5·10 ⁶	23	20
²⁴⁰ Pu	6600	70 (23 %)	200 (27 %)	⁹⁹ Tc	2,1·10 ⁵	25	100
²⁴¹ Pu	14	40 (13 %)	80 (11 %)	¹⁰⁷ Pd	6,5·10 ⁶	7	16
²⁴² Pu	3,8·10 ⁵	15 (5 %)	80 (11 %)	¹²⁶ Sn	1,0·10 ⁵	1	31
²⁴¹ Am	430	7	30	¹²⁹ I	1,6·10 ⁷	6	75
^{242m} Am	141	0,1	0,2	¹³⁵ Cs	2·10 ⁶	10	14
²⁴³ Am	7370	3	25				
²⁴⁴ Cm	18	0,7	15				
²⁴⁵ Cm	8500	0,1	3				

Зупинимось на процесі штучної високоенергетичної трансмутації більш детально. По суті трансмутація під дією нейтронів – це функція нейтронних перерізів та їхньої спектральної залежності. Для процесу трансмутації мінорних актинідів найбільш явно виражена ядерна реакція – це реакція поділу, і тому дуже важливим є аналіз конкуренції між ядерними процесами поділу та захоплення. Тому вводиться спеціальне відношення $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$, де σ_c – переріз захоплення, σ_f – переріз поділу. З табл. 2, де представлено значення α для ізотопів різних актинідів, чітко видно, що швидкий нейтронний спектр набагато вигідніший, ніж тепловий для трансмутації цих ізотопів (значення α найменше).

Таблиця 2. Значення перерізів (σ) поділу, захоплення та їхні відношення для різних елементів при тепловому та швидкому нейтронних спектрах [10]

Ізотоп	Тепловий спектр (LWR)			Швидкий спектр		
	σ_f	σ_c	α	σ_f	σ_c	α
²³⁷ Np	0,52	33	63	0,32	1,7	5,3
²³⁸ Np	134	13,6	0,1	3,6	0,2	0,05
²³⁸ Pu	2,4	27,7	12	1,1	0,58	0,53
²³⁹ Pu	102	58,7	0,58	1,86	0,56	0,3
²⁴⁰ Pu	0,53	210,2	396,6	0,36	0,57	1,6
²⁴¹ Pu	102,2	40,9	0,4	2,49	0,47	0,19
²⁴² Pu	0,44	28,8	65,5	0,24	0,44	1,8
²⁴¹ Am	1,1	110	100	0,27	2,0	7,4
²⁴² Am	159	301	1,9	3,2	0,6	0,19
^{242m} Am	596	137	0,23	3,3	0,6	0,18
²⁴³ Am	0,44	49	111	0,21	1,8	8,6
²⁴² Cm	1,14	4,5	3,9	0,58	1,0	1,7
²⁴³ Cm	88	14	0,16	7,2	1,0	0,14
²⁴⁴ Cm	1,0	16	16	0,42	0,6	1,4
²⁴⁵ Cm	116	17	0,15	5,1	0,9	0,18
²³⁵ U	38,8	8,7	0,22	1,98	0,57	0,29
²³⁸ U	0,103	0,86	8,3	0,04	0,3	7,5

Процес трансмутації може проходити в реальних промислових реакторах типу LWR, але більш ефективними є реактори зі швидким спектром нейтронів. Також відома пропозиція [11] про спалювання плутонію й трансуранових елементів у реакторах на швидких нейтронах у саморегульованому нейтронно-ядерному режимі (хвиля нейтронного поділу). Однак ця пропозиція перебуває на початковій стадії розробки. Найбільш ефективним і безпечним способом трансмутації радіоактивних відходів є так звані електроядерні технології (Accelerator Driven Systems (ADS)) [3, 4, 12].

Трансмутація мінорних актинідів

З точки зору трансмутації радіоактивних відходів нас цікавлять в основному мінорні (або другорядні) актиніди, а саме плутоній, нептуній, америцій та кюрій. Деякі ізотопи цих елементів мають великий період напіврозпаду та високу радіотоксичність через домінуючий α -розпад. З точки зору екологічної безпеки вони потребують трансмутації, яка до того ж дуже вигідна енергетично, оскільки фактично мінорні актиніди, що завантажені у швидкий реактор або у підкритичну систему, є додатковим ядерним паливом.

Для нейтронної трансмутації мінорних актинідів головною реакцією є реакція поділу, яка перетворює довгоживучі радіотоксичні актиніди в основному в короткоживучі менш токсичні продукти поділу. Інші реакції, такі як захоплення та $(n, 2n)$, тільки трансформують актиніди в інші актиніди без значної зміни довготривалої радіотоксичності. Однак ці реакції є корисними в тій мірі, що вони перетворюють актиніди з низькою ймовірністю поділу в актиніди, здатні ділитися з великою ймовірністю до поділу.

Основними ізотопами мінорних актинідів, що потребують трансмутації, є ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{237}Np , ^{241}Am , ^{242}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm та ^{245}Cm . Щодо ізотопів плутонію, то вони можуть бути успішно використані в так званому MOX паливі в теплових та швидких реакторах. А для трансмутації ізотопів нептунію, америцію та кюрію найбільш ефективно буде використовувати електроядерні системи зі швидким спектром нейтронів при багатократному повторному опроміненні їх протягом десятків років.

Трансмутація довгоживучих продуктів поділу

Аналіз складу радіоактивних ізотопів у ВЯП реактора LWR показує, що радіоактивні продукти поділу та їхні вторинні ізотопи характеризуються різними фізичними властивостями, їхня кількість у ВЯП різна і вони мають різний рівень впливу на навколишнє середовище. Більшість ядер навіть з дуже високою радіоактивністю (^{90}Y , ^{137}Ba , ^{144}Ce та ін.) мають малий період напіврозпаду і їхня кількість зменшиться до безпечного рівня протягом двох-трьох років. Такі радіоактивні ізотопи належать до групи короткоживучих радіоактивних відходів, і вони не представляють серйозної небезпеки для навколишнього середовища. Інші ядра мають період напіврозпаду порядку 10 - 30 років, високий вихід у процесі поділу та високу активність (^{90}Sr , ^{137}Cs), і вони розпадуться до безпечного рівня приблизно через 300 років (10 періодів напіврозпаду вважається достатнім часом для повного розпаду). Також можна виділити проміжну групу продуктів поділу (^{106}Ru , ^{144}Ce , ^{147}Pm , ^{154}Eu) з періодом напіврозпаду близько одного року.

Отже, частина з цих ізотопів короткоживучі, вони не представляють серйозної небезпеки для навколишнього середовища, а для тих, що мають середній період напіврозпаду, або для їхніх наступників (^{90}Sr , ^{106}Ru , ^{137}Cs , Rh, Pd) можна знайти науково-технічне застосування в різних сферах економіки. Іншу частину, в основному ^{129}I та ^{99}Tc , необхідно трансмутовати.

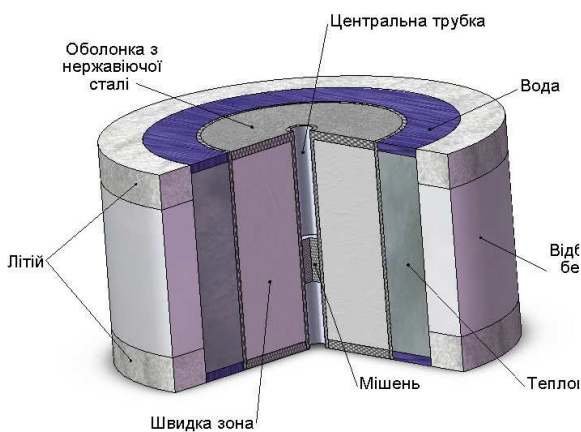
Основний ефективний метод трансмутації продуктів поділу (^{129}I , ^{99}Tc) - це переведення їх у короткоживучі та стабільні ізотопи шляхом поглинання нейтронів, тому що продукти поділу в основному нейтронадлишкові, а додатковий нейтрон має сильний дестабілізуючий вплив. Як видно, трансмутація продуктів поділу пов'язана з радіаційним захопленням нейтрона, і в такій реакції додаткові нейтрони не виникають. Тому введення цих елементів у реактор буде знижувати реактивність або скорочувати кампанію палива, якщо не збільшувати його збагачення, щоб компенсувати цю втрату реактивності.

Відносно ^{99}Tc , то його ефективно трансмутувати в тепловому та особливо в епітепловому спектрах завдяки великим перерізам захоплення ядер ^{99}Tc в цих областях та наявності високих резонансів перерізу в епітепловій області (енергія нейтронів 2 - 20 еВ). Також ^{99}Tc - це єдиний із продуктів поділу, трансмутація якого дає в результаті платинові матеріали, що представляють промисловий інтерес. Таким чином, трансмутація ^{99}Tc не тільки вимушений захід по його знешкодженню, вона також (з точки зору рентабельності) дає змогу компенсувати частину затрат на даний процес [3].

^{129}I - це один із найбільш довгоживучих ($T_{1/2} = 1,57 \cdot 10^7$ років) та небезпечних для навколишнього середовища продуктів поділу. Довгочасна надійна ізоляція ^{129}I в складі твердих радіаційних відходів проблематична через високі міграційні характеристики йоду в біосфері, зумовлені підвищеною летючістю, складною хімічною поведінкою та різноманітністю розчинених у воді форм, а також низьким коефіцієнтом сорбції найбільш розповсюдженими мінералами та ґрунтами [6]. ^{129}I також ефективно трансмутувати в тепловому спектрі нейтронів.

Моделювання трансмутації радіоактивних відходів в електроядерній системі, керованій потужним нейтронним генератором

У попередніх роботах авторів [13 - 15] була запропонована оптимальна схема, на основі якої можлива побудова двозонного підкритичного дослідницького реактора, що містить в одній установці області із швидким та повільним спектром нейтронів та керується потужним нейтронним генератором. Наскільки відомо, можливості трансмутації радіоактивних відходів у двозонних системах не досліджувались. Тому для перевірки ефективності трансмутації радіоактивних відходів у такій системі було проведено моделювання всіх нейтронно-фізичних процесів перетворення та накопичення радіоактивних нуклідів. У цій системі (див. рисунок) потік заряджених часток (дейтронів) рухається зверху вниз по центральній трубці, поки не попадає на титанову мішень, яка насичена тритієм, де відбувається D-T реакція з виникненням 14 MeV нейтронів. Титанова мішень знаходиться на мідній підставці, що охолоджується водою. Трубки водного охолодження мідної підставки розміщені в нижній частині центральної трубки, під мішенню. Швидка зона, що оточує центральну трубку, знаходиться в баку з нержавіючої сталі. Ця зона набрана з укорочених ТВЕЛ реактора ВВЕР-1000 та охолоджується гелієвим теплоносієм. Паливо у швидкій зоні - діоксид урану при збагаченні по ^{235}U (20 %). Теплова зона оточує швидку зону й також набрана з укорочених ТВЕЛ реактора ВВЕР-1000, але охолодження відбувається за рахунок теплоносія з легкої води. Збагачення діоксиду урану в тепловій зоні по ^{235}U (4 %). По периметру активної зони розташований берилієвий відбивач та блоки літію, що використовується для напрацювання тритію.



Двوزонна модель підкритичного реактора.

Тепло

Моделювання виконувалось за допомогою нейтронно-фізичного коду MCNP 4c та програмного модулю MonteBurn [16, 17], що об'єднує роботу нейтронно-фізичного коду MCNP 4c та коду для розрахунку вигорання ORIGEN2. Для

розрахунків була використана модель підкритичного реактора, представлена на рисунку з $k_{\text{eff}} = 0,97$ та точковим 14 MeV джерелом нейтронів у центрі системи. При цьому використовувалась бібліотека ядерних даних ENDF/B-VI.

На основі вищенаведеного аналізу радіоактивних відходів було вирішено промоделювати трансмутацію ^{237}Np , ^{241}Am , ^{242}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm та ^{245}Cm в центрі швидкої зони підкритичної системи. У центрі цієї зони спостерігається найбільш оптимальні умови для трансмутації мінорних актинідів (високий потік нейтронів та швидкий спектр нейтронів). Трансмутацію довгоживучих продуктів поділу найкраще проводити на периферії теплової зони. Туди було поміщено ^{129}I та ^{99}Tc .

Надалі постало питання кількості радіоактивних відходів різних ізотопів, що необхідно трансмутовувати. Було вирішено промоделювати трансмутацію всієї кількості відходів, що напрацьовується в реакторі LWR за один рік роботи, при потужності 1 ГВт (див. табл. 1). Передбачається, що мінорні актиніди та продукти поділу виділяються з ВЯП на гіпотетичному радіохімічному виробництві, і після цього відокремлені чисті ізотопи завантажуються у ТВЕЛ двозонного дослідницького реактора, розглянутого вище. Таким чином, у швидкій зоні необхідно розмістити ^{237}Np (32 ТВЕЛ), ^{241}Am (21 ТВЕЛ), $^{242\text{m}}\text{Am}$ (1 ТВЕЛ), ^{243}Am (9 ТВЕЛ), ^{244}Cm (2 ТВЕЛ) та ^{245}Cm (1 ТВЕЛ). Із довгоживучих продуктів поділу потрібно розмістити ^{129}I (50 ТВЕЛ) та ^{99}Tc (91 ТВЕЛ). ТВЕЛ з радіоактивними відходами розміщувались в активній зоні замість ТВЕЛ з паливом. При заміні ТВЕЛ палива у швидкій зоні на ТВЕЛ з мінорними актинідами значних змін критичності не спостерігається. А довгоживучі продукти поділу значно понижують рівень критичності всієї системи при заміні, особливо це стосується технецію. Тому для збереження заданого рівня підкритичності з $k_{\text{эф}} = 0,97$ було введено у швидку зону всі мінорні актиніди і весь ^{129}I та лише 7 ТВЕЛ ^{99}Tc - у теплову зону.

Результати моделювання трансмутації

Моделювання проводилось при потужності системи 0,5 МВт, що відповідає інтенсивності зовнішнього джерела нейтронів в $1 \cdot 10^{14}$ нейтрон/с (вибір зовнішнього джерела нейтронів більш детально було розглянуто в [18]). Період моделювання трансмутації 10 років. Крім трансмутації ізотопів, завантажених в активну зону, також визначалась кількість радіоактивних ізотопів, що протягом цього ж періоду часу напрацьовувались у всій підкритичній системі. Основні результати моделювання трансмутації наведено в табл. 3.

Таблиця 3. Результати моделювання трансмутації мінорних актинідів та довгоживучих продуктів поділу

Ізотоп	Початкове завантаження, г	Трансмутовано, г	Трансмутовано від початкової завантаження, %	Додатково напрацьовано в усій системі, г	Ефективність трансмутації, г
^{237}Np	14700	49,275	0,335	117,08	-67,8
^{241}Am	6960	140,671	2,02	0,673	139,99
$^{242\text{m}}\text{Am}$	332	16,99	5,12	4,24	12,75
^{243}Am	2980	17,009	0,57	0,135	16,87
^{244}Cm	656	209,4	31,92	9,36	200,043
^{245}Cm	328	2,133	0,65	0,485	1,648
^{129}I	5980	44,42	0,743	24,44	19,976
^{99}Tc	1950	7,23	0,121	112,88	-105,65

Аналізуючи дані табл. 3, видно, що навіть у такій малопотужній експериментальній електроядерній системі можуть досить ефективно відбуватись процеси трансмутації. Якщо порівнювати ефективність трансмутації у розглянутій системі з іншими відомими результатами (див наприклад, [19]), то можна відзначити, що ефективність трансмутації суттєво залежить від нейтронного спектра, причому для кожного ізотопу більш ефективними є спектри різних реакторів. Зрозуміло також, що швидкість трансмутації безпосередньо визначається потужністю реактора і є прямо пропорційною густині нейтронного потоку. Окремо розглядаючи трансмутацію різних ізотопів, можна зазначити наступне.

²³⁷Np. У реакторі LWR його напрацьовується найбільше серед мінорних актинідів. Швидкість трансмутації ²³⁷Np досить низька. Трансмутовано з майже 15 кг усього 50 г, при цьому в активній зоні додатково було напрацьовано 117 г. Напрацювання додаткового непунію відбувалось в основному в ²⁴¹Am за рахунок α -розпаду (108 г). Порівняно з іншими реакторами (порівняння можна зробити, якщо пронормувати результат на потужність того чи іншого реактора) трансмутація непунію в розглянутій системі йде значно повільніше, ніж у реакторі BR2, але інтенсивніше, ніж у реакторі MYRRHA [19].

²⁴¹Am. При завантаженні майже 7 кг трансмутується 140 г, при цьому з них 108 г переходить у ²³⁷Np, що має більший період напіврозпаду та меншу швидкість трансмутації.

^{242m}Am. Необхідно трансмутувати дуже мало, при цьому досить швидко трансмутується.

²⁴³Am. Трансмутовано з майже 3 кг усього 17 г, при цьому в активній зоні додатково було напрацьовано всього 0,13 г. Швидкість трансмутації низька, але для всіх ізотопів америцію вона значно вища, ніж у реакторах, розглянутих у [19].

²⁴⁴Cm. Із завантажених 656 г трансмутовано третину всієї маси ізотопу. Швидкість трансмутації найбільш висока серед мінорних актинідів.

²⁴⁴Cm. Трансмутовано з майже 328 г усього 2 г, при цьому в активній зоні додатково було напрацьовано всього 0,485 г. Швидкість трансмутації низька.

¹²⁹I. Трансмутовано з майже 6 кг усього 44 г, при цьому в активній зоні додатково було напрацьовано 24,44 г. Швидкість трансмутації низька та високе додаткове напрацювання йоду в активній зоні під час роботи електроядерної системи.

⁹⁹Tc. При дуже малій швидкості трансмутації спостерігається найвище додаткове напрацювання цього ізотопу.

Аналіз цих результатів показує принципову можливість трансмутації всього спектра радіоактивних відходів у двозонній підкритичній системі, що керується джерелом нейтронів із помірною інтенсивністю. Як видно з вищенаведених результатів, для дослідження оптимального складу ізотопів при кожному завантаженні, їхнього положення в активній зоні та умов опромінення необхідні подальші розрахунки.

Висновки

Можливість трансмутації радіоактивних відходів у підкритичних реакторах - досить приваблива альтернатива захороненню відходів у геологічних формаціях. Зрозуміло, що ця альтернатива може бути реалізована тільки за умови економічної ефективності цього процесу. Для цього необхідно перш за все поставити на промислову основу весь ланцюжок радіохімічної переробки відпрацьованого ядерного палива, тобто виділення з відпрацьованого палива урану, плутонію, мінорних актинідів та продуктів поділу. Уран і ²³⁹Pu можна безпосередньо використовувати як паливо у найбільш розповсюджених легководних реакторах. Інші ізотопи плутонію та всі трансуранові елементи - це група мінорних актинідів, що потребують трансмутації, причому ця група є досить ефективним паливом для реакторів на швидких нейтронах.

По суті процес трансмутації мінорних актинідів - це спалювання цих ізотопів у швидкому нейтронному спектрі. Тому підкритичні системи, що керуються зовнішнім джерелом нейтронів, є найбільш придатними системами для трансмутації радіоактивних відходів, оскільки всі зовнішні джерела є джерелами швидких нейтронів. Крім очевидної переваги абсолютної ядерної безпеки, у підкритичних системах можлива реалізація двозонної схеми із швидким та тепловим спектрами нейтронів у кожній зоні відповідно. Така схема дає змогу проводити трансмутацію одночасно в одному реакторі як мінорних актинідів, так і продуктів поділу, а також використовувати реактор для інших традиційних потреб (виробництво енергії у великих енергетичних реакторах, напрацювання радіоізотопів, матеріалознавчі та терапевтичні дослідження у дослідницьких реакторах та ін.).

Результати моделювання показали, що у двозонній підкритичній системі з потужним нейтронним генератором в якості зовнішнього джерела нейтронів при інтенсивності $1 \cdot 10^{14}$ нейтрон/с може відбуватися трансмутація майже всіх радіоактивних відходів. Очевидно, що при збільшенні інтенсивності зовнішнього джерела нейтронів пропорційно буде збільшуватись швидкість трансмутації. Зрозуміло також, що трансмутація продуктів поділу є неефективною (в усякому разі в розглянутій системі), що збігається з висновками інших авторів.

З результатів також видно, що для ефективного зменшення кількості радіоактивних відходів кількість трансмутованих відходів має перевищувати кількість напрацьованих у цій же системі, тобто необхідно завантажувати радіоактивні відходи в електроядерну систему в кількості більшій, ніж кількість тих, що буде напрацьована.

Трансмутація радіоактивних відходів у дослідницькому реакторі, що розглядалася в даній роботі, не може бути економічно ефективною. Але проведення дослідів із трансмутації у дослідницькому реакторі може показати принципову можливість трансмутації у промисловій підкритичній двозонній системі з аналогічним нейтронним спектром.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Барабашев С.В., Зибницький Р.Г., Шимчев С.А.* Мир атомной энергии / Под ред. С. В. Барабашева. - Запорожье: Дикое поле, 2007. - 112 с.
2. *Бабенко В.А., Енковский Л.Л., Павлович В.Н.* Ядерная энергетика. Тенденции в мире и особенности Украины // Физика элементарных частиц и атомного ядра. - 2007. - Т. 38, вып. 6. - С. 795 - 826.
3. *Бзнуни С.А., Барашенков В.С., Жамкочан В.М. и др.* Перспективные электроядерные системы // Физика элементарных частиц и атомного ядра. - 2003. - Т. 34. - С. 977 - 1032.
4. *Kadi Y., Revol J.P.* Design of an Accelerator-Driven System for the Destruction of Nuclear Waste: Proceeding // Workshop on Hybrid Nuclear Systems for Energy Production, Utilization of Actinides and Transmutation of Long-Lived Radioactive Waste. - Trieste, Italy: ICTP, 3 - 7 Sept. 2001.
5. *Бомко В.А., Егоров А.М., Зайцев Б.В. и др.* Сжигание отходов ядерного топлива быстрыми нейтронами в электроядерной энергетической установке - альтернатива геологическому захоронению: случай Украины // ВАНТ. - 2004. - № 4. Сер. Плазменная электроника и новые методы ускорения. - С. 43 - 50.
6. *Chmelev A.N., Apse V.A., Koulikov G.G.* Nuclear Energy Systems: Safety, Transmutation of Radio-wastes and Fuel Self-Sustaining // Progress in Nuclear Energy. - 1995. - Vol. 29. - P. 439 - 443.
7. *Соколова И.Д.* Усовершенствованные и инновационные технологии переработки ОЯТ // Атомная техника за рубежом. - 2009. - № 6. - С. 3 - 15.
8. *Высоцкий В.И., Корнилова А.А.* Ядерный синтез и трансмутация изотопов в биологических системах. - М.: Мир, 2003. - 304 с.
9. *Taczanowski S.* Transmutations of nuclear waste in accelerator-driven subcritical systems // Applied Energy. - 2003. - Vol. 75. - P. 97 - 117.
10. *Salvatores M.* The physics of transmutation in critical or subcritical reactors // C.R. Physique. - 2002. - Vol. 3. - P. 999 - 1012.
11. *Павлович В.М., Хотяїнцев В.М., Хотяїнцева О.М.* Реактор на хвилі ядерного горіння: управління параметрами хвилі // Ядерна фізика та енергетика. - 2010. - № 1(11). - С. 56 - 61.
12. *Beastle L.H.* Application of Partitioning/Transmutation of Radioactive Materials in Radioactive Waste Management: Proceeding // Workshop on Hybrid Nuclear Systems for Energy Production, Utilization of Actinides and Transmutation of Long-Lived Radioactive Waste. - Trieste, Italy: ICTP, 3 - 7 Sept. 2001.
13. *Babenko V.A., Gulik V.I., Jenkovszky L.L. et al.* Study of one-zone subcritical amplifiers of neutron flux involving enriched uranium // Problems of Atomic Science and Technology, Series: Nuclear Physics Investigations (45). - 2005. - Vol. 6. - P. 122 - 126.
14. *Бабенко В.О., Гулик В.И., Павлович В.М., Путирина О.М.* Двухзонные подкритические ядерные реакторы // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чорнобиля. - 2006. - Вып. 6. - С. 8 - 15.
15. *Бабенко В. А., Гулик В. И., Павлович В. Н.* Исследовательский подкритический реактор // Ядерная физика та енергетика. - 2008. - № 1(23). - С. 56 - 61.

16. *Harmon C.D., Busch R.D., Briesmeister J.F. et al.* Criticality Calculation with MCNP. A Primer / L-I-12827-M, Los Alamos. – 1994.
17. *Briesmeister J.* MCNP General Monte Carlo Code N-Particle Transport Code Version 4C / LA-13709-M. - Los Alamos, 1994.
18. *Babenko V.A., Gulik V.I., Pavlovych V.M.* Two-zone Sub-critical Reactor Driven by a High-intensity Neutron Generator as a Research Facility for the Nuclear Waste Transmutation // Proc. of Waste Management Conference (WM2010). - Phoenix, USA. - 7 - 11 March, 2010.
19. *Raedt Ch., Verboomen B., Aoust Th. et al.* MA and LLFP Transmutation in MTRs and ADSa: The Typical SCK-CEN Case of Transmutations an BR2 and MYRRHA. Position with Respect to the Global Needs // Proc of Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, 6th Information Exchange Meeting. – Madrid, Spain. – 11 - 13 Dec. 2000.

О ВОЗМОЖНОСТИ ТРАНСМУТАЦИИ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ В ЭЛЕКТРОЯДЕРНОЙ СИСТЕМЕ, КОТОРАЯ УПРАВЛЯЕТСЯ МОЩНЫМ НЕЙТРОННЫМ ГЕНЕРАТОРОМ

В. А. Бабенко, В. И. Гулик, В. Н. Павлович, А. П. Рыбалова

Рассмотрена проблема радиоактивных отходов ядерной энергетики. Проанализированы спектр радиоактивных отходов и условия, при которых трансмутация этих радиоактивных отходов будет проходить наиболее эффективно. Представлены результаты моделирования трансмутации основных радиоактивных изотопов в двухзонной подкритической системе, которая управляется мощным нейтронным генератором.

Ключевые слова: трансмутация радиоактивных отходов, электроядерные системы, подкритические реакторы.

ABOUT NUCLEAR WASTE TRANSMUTATION IN ADS DRIVEN BY HIGH-INTENSITY NEUTRON GENERATOR

V. A. Babenko, V. I. Gulik, V. M. Pavlovych, A. P. Rybalova

The problem of radioactive waste of nuclear power is considered in the article. The range of radioactive waste of nuclear power is analyzed. The conditions under which the transmutation of radioactive waste will be most effective are analyzed too. The modeling results of a transmutation of the main radioactive isotopes are presented and discussed. The model of the two-zone subcritical system driven by high-intensity neutron generator is used for the modeling of transmutation.

Keywords: nuclear waste transmutation, accelerator driven systems, subcritical reactors.

Надійшла до редакції 14.03.11