

γ -облучении. Центры второго типа обусловлены как исходными, так и радиационно-генерированными дефектами, и их число растет с увеличением поглощенной дозы. Предполагается, что полоса свечения 410 нм обусловлена примесным, 460 нм — E' -центром.

Отжиг на воздухе при 900 °С наводит в спектрах рентгенолюминесценции кварцевых стекол новые полосы свечения с максимумом при 470 и 520—540 нм, приписанные межузельным дефектам типа O^- и O_2^- . Предполагается, что эти дефекты образуются путем локализации в межузлиях кислорода, диффундирующего из воздуха в стекло при 900 °С.

В n — γ -облученных образцах кварцевых стекол полоса 410 нм обусловлена преимущественно γ -составляющей n — γ -излучения. Радиационное генерирование структурных дефектов при упругих столкновениях нейтронов с атомами кислорода превалирует при $\geq 10^{17}$ см⁻² и проявляется в более резком возрастании интенсивности полосы 460 нм.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Алимов Р., Гасанов Э.М., Гуламова Р.Р. и др. — Атомная энергия, 1992, т. 72, вып. 5, с. 519—522.
2. Gulamova R.R., Gasanov E.M., Sazonova E.V. — Phys. Stat. Sol. (A), 1993, v. 135, p. 109.
3. Trukhin A.N., Skuja L.N. — Fiz. Khim. Stekloobr. Sist., 1975, v. 63, p. 36.
4. Силинь А.Р., Трухин А.Н. — В кн.: Точечные дефекты и элементарные возбуждения в кристаллическом и некристаллическом SiO_2 . Рига: Зинатне, 1985.
5. Халилов В.Х., Пивоваров С.С. — В кн.: Оптические и спектральные свойства стекол. Тезисы докл. V Всес. симп. Рига, 1977, с. 56.
6. Jones C., Fubree D. — J. Appl. Phys., 1976, v. 47, № 12, p. 5365.
7. Санаев Б., Икрамов Г.И., Усманова С.Х. и др. — Физ. и хим. стекла, 1977, т. 8, № 4, с. 376.

Поступила в Редакцию 19.06.2000

УДК 621.039

РАДИОТОКСИЧНОСТЬ И ОСТАТОЧНОЕ ЭНЕРГОВЫДЕЛЕНИЕ ОТРАБОТАВШЕГО УРАН-ПЛУТОНИЕВОГО И ТОРИЕВОГО ТОПЛИВА ПРИ ДЛИТЕЛЬНОМ ХРАНЕНИИ

*Бергельсон Б.Р., Герасимов А.С., Зарицкая Т.С., Киселев Г.В.,
Мырцымова Л.А., Тихомиров Г.В. (ГНЦ РФ — ИТЭФ)*

Радиотоксичность долгоживущих компонентов радиоактивных отходов, образующихся в различных топливных циклах, важна с точки зрения экологической опасности этих циклов. Развитие ядерной энергетики неизбежно приводит к использованию наряду с ураном плутония в качестве ядерного топлива. Накопление опасных актиноидов в отработавшем уран-плутониевом топливе выше, чем в обычном урановом топливе. С точки зрения снижения радиационной опасности радиоактивных отходов перспективным представляется ториевый топливный цикл [1—3], в котором плутония, америция и кюрия образуется значительно ниже, чем в урановом или уран-плутониевом топливе. Выделение наиболее значимых нуклидов и их извлечение из хранилища с последующей трансмутацией позволяет снизить радиационную опасность оставшихся в нем отходов. Удаление нуклидов с повышенным остаточным энерговыделением позволяет ослабить требования к системам отвода тепла при долговременном хранении отходов. Представляет интерес также количественное сравнение радиационных характеристик актиноидов, образующихся в различных топливных циклах.

В статье представлены результаты расчета изменения во времени радиотоксичности по воде и остаточного энерговыделения актиноидов из отработавшего уран-плутониевого и торий-уранового ядерного топлива ВВЭР-1000 при хранении в течение времени до 300 тыс. лет. Эта работа является продолжением и развитием исследований [4], в которых были представлены аналогичные характеристики для отработавшего уранового топлива. Методика расчета энерговыделения и радиотоксичности в настоящей статье аналогичная [4]. Для расчета радиотоксичности использованы данные о предельной активности нуклидов [5], принятой в 1999 г. Данные о периоде полураспада и энерговыделении в распадах взяты из работы [6]. При расчете энерговыделения актиноидов из уран-ториевого топлива вклад распада ^{232}U учитывался отдельно, вклад ^{228}Th суммировался с вкладом всех его дочерних короткоживущих нуклидов. Радиационные характеристики долгоживущих продуктов деления из отработавшего уран-плутониевого или торий-уранового топлива не приводятся. Накопление продуктов деления слабо меняется при переходе к другим делящимся нуклидам и в основном зависит от выгорания топлива. Поэтому для оценок могут использоваться данные [4] для уранового топлива. Данные о радиотоксичности по воздуху не приводятся, они в значительной мере повторяют зависимость для радиотоксичности по воде и отличаются от последней в основном масштабом.

На рис. 1, а показана суммарная радиотоксичность актиноидов по воде и вклад наиболее значимых актиноидов в общую радиотоксичность, на рис. 1, б — общее остаточное энерговыделение актиноидов и вклад важнейших нуклидов при хранении отработавшего уран-плутониевого топлива. Данные о содержании актиноидов в отработавшем уран-плутониевом топливе получены в результате модельных расчетов кинетики превращения изотопов в нейтронном спектре, создаваемом урановым топливом в активной зоне ВВЭР-1000 [7], и имеют приближенный характер. Количество актиноидов соответствовало их содержанию в 1 т отработавшего топлива выгоранием 44 кг продуктов деления на 1 т и последующей выдержкой в течение 3 лет. Считалось, что из отработавшего топлива извлечен уран, из актиноидов присутствуют только изотопы нептуния, плутония, америция, кюрия.

Свежим топливом служила смесь обедненного урана с добавлением 3,5% плутония с изотопным составом, примерно соответствующим оружейному плутонию.

На рис. 2, а показана суммарная радиотоксичность актиноидов по воде и вклад наиболее значимых актиноидов в общую радиотоксичность, на рис. 2, б — общее остаточное энерговыделение актиноидов и вклад важнейших нуклидов при хранении отработавшего торий-уранового топлива. Данные о содержании актиноидов в отработавшем торий-урановом топливе получены для нейтронного спектра, создаваемого основным урановым топливом ВВЭР-1000. Количество актиноидов соответствовало их содержанию в 1 т торий-уранового топлива при облучении до выгорания основного уранового топлива 44 кг продуктов деления на 1 т и последующей выдержке в течение 3 лет. Рассматривались все актиноиды, включая торий, уран, непту-

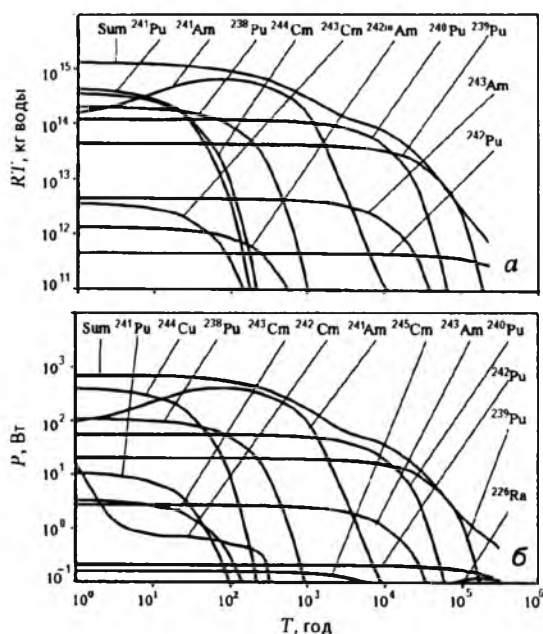


Рис. 1. Радиотоксичность (а) и остаточное энерговыделение актиноидов (б) отработавшего уран-плутониевого топлива

ний, плутоний, америций, кюрий. Свежим топливом служила смесь ^{232}Th с добавлением 3,3% ^{233}U .

Представленные результаты показывают следующее.

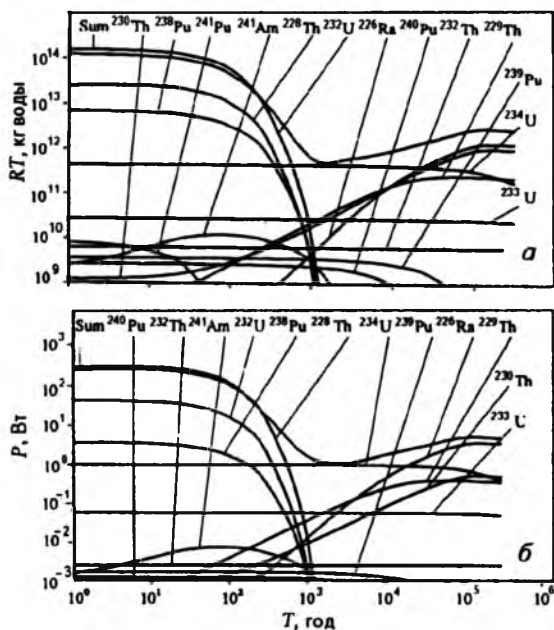
Радиотоксичность актиноидов отработавшего уран-плутониевого топлива по воде в начальном периоде хранения определяется ^{241}Am , ^{238}Pu , ^{241}Pu , ^{244}Cm . При времени хранения 30 лет доля изотопов плутония составляет 37%, ^{241}Am — 51%, ^{244}Cm — 10%. При хранении происходит превращение ^{241}Pu в ^{241}Am . После 100 лет хранения общая радиотоксичность актиноидов уменьшается в 1,4 раза. Основной вклад 71% вносит ^{241}Am . Вклад изотопов плутония составляет 28%. Количество ^{244}Cm существенно уменьшается из-за распада, его радиотоксичность снижается в 46 раз и составляет 0,86% общей радиотоксичности к концу 100-летнего хранения. ^{241}Am вносит максимальный относительный вклад 72% при хранении 300 лет, после 1000 лет радиотоксичность быстро падает. При хранении 10 тыс. лет радиотоксичность уменьшается в 17 раз, после 100 тыс. лет — в 420 раз и определяется ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu .

Остаточное энерговыделение актиноидов отработавшего уран-плутониевого топлива в начальном периоде хранения определяется ^{241}Am , ^{244}Cm и ^{238}Pu . При хранении 30 лет вклад изотопов плутония составляет 24%, ^{241}Am — 55%, ^{244}Cm — 20%. После 100 лет хранения общее энерговыделение актиноидов уменьшается в 1,3 раза. Основной вклад 75% вносит ^{241}Am , изотопы плутония — 23%, ^{244}Cm — 1,6%. При хранении 10 тыс. лет энерговыделение снижается в 20 раз, 100 тыс. лет — в 460 раз.

Общая картина парциального вклада в радиотоксичность и энерговыделение аналогична имевшейся для актиноидов отработавшего уранового топлива [4].

Радиотоксичность актиноидов отработавшего торий-уранового топлива по воде в течение первых 300 лет определяется ^{232}U и его дочерними нуклидами, первым из которых является ^{228}Th . Период полураспада ^{232}U составляет 68,9 года, ^{228}Th — 1,9 года. Последующие дочерние нуклиды в цепочке распада ^{232}U короткоживущие. Из остальных актиноидов наиболее значимыми являются ^{238}Pu и ^{234}U . Их вклад в 10—100 раз ниже. Вклад ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am , ^{232}Th в 10^4 раз ниже, чем ^{232}U . За 100 лет хранения суммарная радиотоксичность убывает в 2,6 раза. При хранении более 1000 лет ^{232}U с дочерними нуклидами не вносит вклада в радиотоксичность, ее определяют ^{234}U , ^{230}Th , при хранении более 10 тыс. лет — ^{226}Ra , некоторый вклад вносят ^{229}Th , ^{233}U . В период после 3000 лет наблюдается возрастание радиотоксичности за счет накопления ^{226}Ra , ^{229}Th и ^{230}Th . При хранении 10 тыс. лет радиотоксичность снижается в 160 раз.

Остаточное энерговыделение актиноидов отработавшего торий-уранового топлива в течение первых 300 лет хранения определяется ^{228}Th вместе с короткоживущими



Р и с. 2. Радиотоксичность (а) и остаточное энерговыделение актиноидов (б) отработавшего торий-уранового топлива

дочерними нуклидами, а также ^{232}U , являющимся материнским нуклидом по отношению к ^{228}Th . Из остальных актиноидов наиболее значимыми являются ^{238}Pu и ^{234}U . Их вклад в 10—100 раз ниже. Некоторое увеличение энерговыделения в первые несколько лет хранения объясняется тем, что в выгружаемом топливе и при последующей выдержке ^{228}Th не находится еще в равновесии с ^{232}U и в первые несколько лет хранения его количество возрастает. За 100 лет хранения энерговыделение убывает в 2,4 раза. После 1000 лет хранения энерговыделение определяется ^{234}U , ^{230}Th , при хранении более 10 тыс. лет — ^{226}Ra . На рис. 2, б кривая ^{226}Ra соответствует его суммарному энерговыделению и дочерних короткоживущих нуклидов, которое в 6,1 раза превышает энергию распада ^{226}Ra . В период после 3000 лет наблюдается возрастание энерговыделения за счет накопления ^{226}Ra , ^{229}Th и ^{230}Th . При хранении 10 тыс. лет энерговыделение снижается в 170 раз.

Суммарная радиотоксичность по воде в начале хранения для актиноидов из уранового [4], уран-плутониевого и торий-уранового отработавшего топлива составляет соответственно $5,2 \cdot 10^{14}$, $1,3 \cdot 10^{15}$ и $1,5 \cdot 10^{14}$ кг воды на 1 т выгруженного топлива. Радиотоксичность актиноидов уран-плутониевого топлива оказывается в 2,5 раза больше, чем обычного уранового топлива, за счет большего в 2—3 раза накопления ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu и ^{244}Cm . Радиотоксичность актиноидов торий-уранового топлива, вычисленная с учетом ^{232}U , оказывается в 3,5 раз ниже, чем для уранового топлива.

Остаточное энерговыделение в начале хранения для актиноидов из уранового [4], уран-плутониевого и торий-уранового топлива составляет соответственно 258, 708 и 315 Вт на 1 т выгруженного топлива. Энерговыделение актиноидов уран-плутониевого топлива оказывается в 2,7 раза больше, чем обычного уранового топлива, за счет большего накопления изотопов плутония, америция и кюрия. Энерговыделение актиноидов торий-уранового топлива оказывается в 1,2 раза больше, чем для уранового топлива.

Представленные данные позволяют сделать выводы относительно того, какие актиноиды следует в первую очередь извлекать из хранящегося отработавшего топлива для трансмутации. Заметим, что речь может идти о химическом разделении разных элементов, а не изотопном разделении высокоактивных нуклидов.

В случае уран-плутониевого топлива представляется целесообразным перед длительным хранением проводить химическое разделение актиноидов с выделением плутония, америция, кюрия. При этом америций целесообразно выделять после хранения 50—70 лет, достаточного для превращения ^{241}Pu в ^{241}Am . Кюрий можно выделять в начале хранения, что позволит снизить радиотоксичность оставшихся актиноидов на 20—30%. Если отказаться от выделения кюрия, то через 100 лет ^{244}Cm в значительной степени распадется сам. Разделенные фракции плутония и америция (возможно, с долгоживущими изотопами кюрия) можно направлять на трансмутацию, причем применительно к плутонию это будет скорее называться повторным многократным использованием плутониевого топлива. Разделение актиноидов на фракции целесообразно также с точки зрения снижения остаточного энерговыделения. Так, выделение америция после распада ^{241}Pu и большей части ^{238}Pu позволяет существенно снизить остаточное энерговыделение плутониевой фракции.

В случае уран-ториевого топлива, когда большая часть радиотоксичности определяется изотопом того же химического элемента, что и основной топливный изотоп, речь может идти в первую очередь о том, что повторное использование уран-ториевого топлива, связанное с различными вариантами добавления нового ^{233}U , будет сопровождаться накоплением радиотоксичности. Если же говорить об однократном использовании уран-ториевого топлива с глубоким выгоранием ^{233}U , то для существенного снижения радиотоксичности отработавшего уран-ториевого топлива необходимо про-

водить дополнительное глубокое выжигание (трансмутацию) урановой фракции, содержащей как ^{233}U , так и ^{232}U . Дальнейшее снижение радиотоксичности в несколько раз может быть связано с удалением и трансмутацией плутониевой фракции (^{238}Pu). Трансмутация ^{228}Th — дочернего продукта распада ^{232}U не нужна, поскольку этот нуклид не долгоживущий, он почти полностью распадается за 10 лет вместе со своими короткоживущими дочерними изотопами. Выделение урановой фракции приведет также к снижению остаточного энерговыделения, которое после распада ^{228}Th будет определяться ^{238}Pu .

В заключение авторы выражают глубокую благодарность А.М. Павловичеву за стимулирующие обсуждения материалов статьи и доброжелательную помощь.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Муроков В.М., Троянов М.Ф., Шмелев А.Н. Использование тория в ядерных реакторах. М.: Энергоатомиздат, 1983.
2. Salvatores M., Slessarev I., Uematsu M., Tshistiakov A. The neutronic potential of nuclear power for long-term radioactivity risk reduction. — In: Proc. Intern. Conf. Global-95, Versailles, France, September 11—14, 1995, v. 1, p. 686—693.
3. Трутнев Ю.А., Маршалкин В.Е., Повышев В.М. Ключевые элементы концепции замкнутого уран-ториевого топливного цикла для существующих реакторов на тепловых нейтронах. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Теоретическая и прикладная физика, 1996, вып. 3, с. 31—37.
4. Бергельсон Б.Р., Герасимов А.С., Зарицкая Т.С. и др. Радиотоксичность и остаточное энерговыделение актиноидов и продуктов деления отработавшего ядерного топлива ВВЭР при длительном хранении. — Атомная энергия, 2000, т. 89, вып. 3, с. 215—220.
5. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99). М.: Минздрав России, 1999.
6. Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения. Публикация № 38 МКРЗ. Пер. с англ. М.: Энергоатомиздат, 1987.
7. Герасимов А.С., Зарицкая Т.С., Рудик А.П. Справочник по образованию нуклидов в ядерных реакторах. М.: Энергоатомиздат, 1989.

Поступила в Редакцию 27.09.2000

УДК 621.039

ПРОДОЛЬНЫЙ ПЕРЕНОС ВРЕДНЫХ ПРИМЕСЕЙ РЕЧНЫМ ПОТОКОМ

Кононович А.Л., Носов А.В. (Гос. ин-т прикладной экологии)

В настоящей статье описывается математическая модель переноса радиоактивных примесей в одномерном однородном потоке.

Перенос рассматривается в рамках следующей модели.

1. Имеются две фазы загрязнения: загрязнение в воде (раствор или взвешенные частицы) и загрязнение донных отложений.

2. Между фазами происходит обмен загрязняющим веществом. Поток вещества в растворенную (взвешенную) фазу пропорционален загрязнению верхнего слоя донных отложений. Поток загрязнения из воды в донные отложения пропорционален концентрации загрязнения в воде.

3. Процесс взаимобмена происходит в пределах равнодоступного слоя толщиной δ .

4. В донных отложениях происходит миграция загрязнения по закону Фика.

5. В объеме воды загрязнение переносится потоком воды и перемешивается за счет турбулентной диффузии.

6. На участке русла отсутствуют области устойчивых водоворотов.