

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Землянухин В.И., Ильенко Е.Н., Кондратьев А.Н. и др. Радиохимическая переработка ядерного топлива АЭС. М.: Энергоатомиздат, 1983.
2. Ефимов А.Н., Жихарев М.И., Жирнов Ю.П. Равновесие жидкость—пар в системе $\text{H}_2\text{O}-\text{HNO}_3-\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ при давлениях 180, 360 и 720 мм рт.ст. — Радиохимия, 1970, т. 12, вып. 5, с. 766—768.
3. Марков В.К., Верный Е.А., Виноградов А.В. и др. Уран, методы его определения. М.: Атомиздат, 1964.
4. Якимов М.А., Мишин В.Я. Исследование гетерогенных равновесий в тройной системе $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2-\text{HNO}_3-\text{H}_2\text{O}$. — Радиохимия, 1964, т. 6, вып. 4, с. 454—458.
5. Ефимов А.Н., Жихарев М.И., Жирнов Ю.П. Физико-химические основы и расчет процессов упаривания высокоактивных азотнокислых растворов. — Атомная энергия, 1975, т. 39, вып. 6, с. 416—419.

Поступило в Редакцию 3.04.96

УДК 621.039.7

ЭФФЕКТИВНОСТЬ ТРАНСМУТАЦИИ ДОЛГОЖИВУЩЕЙ РАДИОТОКСИЧНОСТИ В РАЗНЫХ ЯДЕРНЫХ УСТАНОВКАХ

Бергельсон Б.Р., Балюк С.А. (ИТЭФ)

Исходными данными для проведения исследований, направленных на уничтожение (трансмутацию) радиоактивных отходов, служат количество и состав содержащихся в них долгоживущих нуклидов. В работе [1] приведены результаты расчета этих характеристик в зависимости от сценария развития ядерной энергетики. Очевидно, что для определения оптимальной трансмутации необходимо уже на ранней стадии исследований сравнить ее эффективность в ядерных установках разного типа, в том числе и в тепловых и быстрых энергетических реакторах.

Целью настоящей работы является сравнение параметров, характеризующих трансмутацию Np , Am , Cm в энергетических реакторах и специализированной подкритической установке УТА [2] с высоким потоком тепловых нейтронов.

В качестве меры радиационной опасности долгоживущих нуклидов (Np , Am , Cm и Pu) в работе используется понятие радиотоксичности (R_{MA} , R_{Pu}) [1]. Значения R_{MA} и R_{Pu} определяли по их предельно допустимой концентрации (ПДК) в воде [3] с учетом того, что в 1990 г. МКРЗ изменила требования — ПДК плутония уменьшена в 10 раз, америция, кюрия — в 2 раза, нептуния увеличена в 10 раз [4].

Для расчетных исследований использована модель непрерывного облучения (трансмутации) в заданном потоке нейтронов. Такая упрощенная модель, не учитывающая цикличность облучения в реакторах на твердом топливе (УТА на жидком топливе может работать в непрерывном режиме), позволяет наиболее простым и наглядным способом сравнить результаты трансмутации в разных установках.

Рассматривались два варианта, касающиеся количества и состава Np , Am , Cm , которые используются для подпитки установки, в которой осуществляется трансмутация (табл. 1). 1. Трансмутуются Np , Am , Cm , извлекаемые со скоростью 39,2 кг/(год·ГВт) из отработавшего топлива энергетических тепловых реакторов с урановым топливом в расчете на электрическую мощность 1 ГВт. Время выдержки от момента

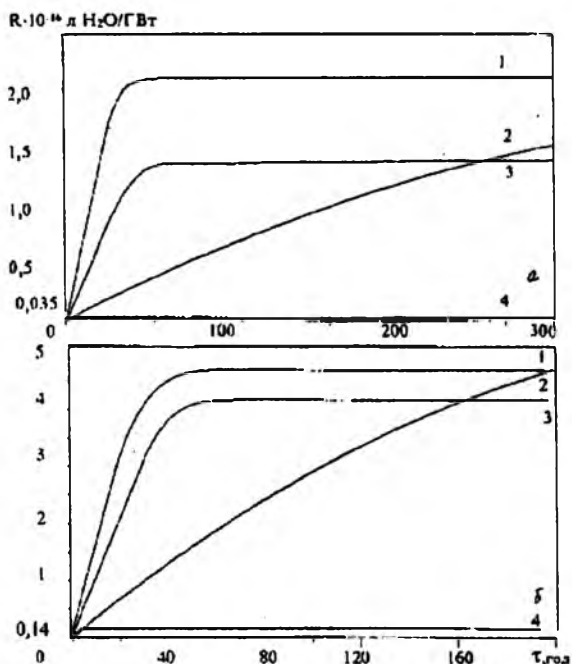
Т а б л и ц а 1. Состав подпитки

Нуклид	Скорость подпитки, кг/(год·ГВт)	
	39,2 [2]	83 [1]
^{237}Np	17,5	—
^{241}Am	17,4	47,5
^{242m}Am	$7 \cdot 10^{-3}$	0,95
^{243}Am	3,38	25
^{244}Cm	0,89	9,5
Σ	39,2	83

выгрузки топлива до начала облучения 10 лет. 2. Трансмутруются Нр, Ам, Сп, извлекаемые со скоростью 83 кг/(год·ГВт) из отработавшего топлива энергетических тепловых и быстрых реакторов (в равном соотношении) со смешанным топливом. Время выдержки 3 года.

Если R^i — радиотоксичность i -го нуклида [1], то согласно данным табл. 1 суммарная радиотоксичность Нр, Ам, Сп, используемых для подпитки, $dR_1/dt = 10^{14}$ л·Н₂О/(год·ГВт); $dR_2/dt = 6,1 \cdot 10^{14}$ л·Н₂О/(год·ГВт) и соответственно удельная радиотоксичность подпитки $1/q_1 dR_1/dt = 2,6 \cdot 10^{12}$ л·Н₂О/кг;

$1/q_2 dR_2/dt = 7,4 \cdot 10^{12}$ л·Н₂О/кг. Динамика накопления радиотоксичности в топливных циклах рассматриваемых установок, рассчитанная по модели непрерывного облучения, показана на рисунке, откуда следует, что в начале процесса трансмутации радиотоксичность Нр, Ам, Сп и нарабатываемого из них плутония увеличивается (в основном за счет накопления ²³⁸Pu). После окончания переходного периода устанавливается равновесие, при котором скорость уничтожения радиотоксичности в процессе трансмутации сравнивается со скоростью подпитки dR/dt . В табл. 2 приведены характеристики режима трансмутации, которые можно использовать для сравнения эффективности протекания процесса в разных установках.



Радиотоксичность, накапливаемая в топливном цикле быстрого (1) и теплового реактора (3), УТА (4) (трансмутация в потоке нейтронов плотностью $5 \cdot 10^{15}$, $5 \cdot 10^{13}$, $5 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ соответственно), в случае складирования Нр, Ам, Сп в долговременное хранилище без трансмутации (2) при скорости извлечения из отходов 39,2 (а), 83 кг/(год·ГВт) (б)

Т а б л и ц а 2. Параметры трансмутации Нр, Ам, Сп

Характеристика	Реактор				Специализированная установка УТА	
	тепловой		быстрый			
Плотность потока нейтронов, $\text{с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$	$5 \cdot 10^{13}$		$5 \cdot 10^{15}$		$5 \cdot 10^{15}$	
Скорость подпитки, $\text{кг}/(\text{год} \cdot \text{ГВт})$	39,2	83	39,2	83	39,2	83
Время выхода в равновесие, год	60	60	40	40	0,5	0,5
Равновесная масса актиноидов, $\text{кг}/\text{ГВт}^*$	700	2280	880	2100	13	60
Равновесная радиотоксичность актиноидов в топливном цикле, $\text{л} \cdot \text{H}_2\text{O}/\text{ГВт} \cdot 10^{-16}^*$	1,4	4,3	2,2	4,7	0,035	0,14
Равновесная удельная радиотоксичность актиноидов в топливном цикле, $\text{л} \cdot \text{H}_2\text{O}/\text{кг} \cdot 10^{-13}^*$	2,0	1,9	2,5	2,2	2,7	2,3
Время, год^{**}	250	170	400	200	4	2

*Нр, Ам, Сп и Pu, нарабатываемые в процессе трансмутации.

**Период времени, по истечении которого радиотоксичность Нр, Ам, Сп, накапливаемых в долговременном хранилище без трансмутации, сравнивается с равновесной радиотоксичностью в топливном цикле установки-трансмутатора.

Согласно данным табл. 2 равновесная удельная радиотоксичность слабо зависит от типа установки, а также количества и состава подпитки. В то же время суммарная равновесная радиотоксичность уменьшается в 30—40 раз при переходе от теплового реактора к УТА, т.е., иными словами, при увеличении в 100 раз плотности потока тепловых нейтронов, в котором осуществляется трансмутация. Таким образом, можно

заклучить, что только в установке с высоким потоком тепловых нейтронов могут быть достигнуты приемлемые характеристики трансмутации: сравнительно низкий уровень равновесной радиотоксичности и не-большое время, в течение которого радиотоксичность трансмутируемых актиноидов превышает радиотоксичность, накапливаемую в долговременном хранилище.

Строго говоря, полученные результаты в полной мере относятся лишь к УТА, работающей в непрерывном режиме. В тепловых и быстрых реакторах на твердом топливе трансмутация возможна только в условиях многоциклового режима облучения. Для того чтобы определить эффективность такого режима, авторы воспользовались данными Г.Г. Куликова, А.Н. Шмелева, соответствующими следующим условиям:

трансмутация осуществляется в БН-800 со смешанным топливом;

функционирование топливного цикла БН-800 не должно изменяться существенным образом. Поэтому доля Np , Am , Cm , содержащихся в твэлах, не должна превышать 3,5% тяж.ат. [5]. Так как в смешанном топливе образуется 1,6% тяж.ат. Np , Am , Cm , то доля дополнительно вводимых в него не может превышать 1,9% тяж.ат.;

непрерывное время облучения в потоке нейтронов плотностью $5,7 \cdot 10^{15} \text{ c}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$, определяемое длительностью кампании реактора, равняется 1,2 года. После окончания облучения Np , Am , Cm (вместе с отработавшим топливом) выдерживают 3 года во временном хранилище. Затем в течение 1 года осуществляется радиохимическая переработка (без их потерь) и рефабрикация твэлов с их пополнением взамен расплавшихся или превратившихся в плутоний. Последовательность этих операций определяет один цикл в многоцикловом режиме трансмутации;

для подпитки используются Np , Am , Cm , извлекаемые из отработавшего топлива ВВЭР-1000 после 3-летней выдержки [6], в таком количестве, $\text{кг}/(\text{год} \cdot \text{ГВт})$: ^{237}Np 11,5, ^{241}Am 5,3, ^{243}Am 2,6, ^{244}Cm 0,6.

Результаты расчета многоциклового режима облучения Np , Am , Cm в БН-800 сводятся к следующему. Для трансмутации Np , Am , Cm , загружаемых в реактор в количестве 237,5 кг, необходимо провести 77 циклов облучения, на что потребуются 400 лет (при использовании ПДК из НРБ-МКРЗ). В установившемся режиме трансмутации радиотоксичность Np , Am , Cm и образующегося плутония, поступающих на химическую переработку, в 26,3 раза превышает радиотоксичность исходной загрузки. Поэтому при многоцикло-вой трансмутации в отходы попадают долгоживущие радионуклиды в количестве 75% исходных (потери при химической переработке приняты равными 1%). Если в качестве ПДК использовать данные НРБ-76/87, то число циклов облучения уменьшается до 15 (75 лет), количество радионуклидов, попадающих в отходы, — до 14% исходных.

Подводя общий итог исследований, можно сделать следующие выводы.

При трансмутации Np , Am , Cm в современных энергетических реакторах происходит значительное увеличение долгоживущих радионуклидов в течение длительного периода, превышающего в несколько раз срок службы реактора. При этом устанавливается сравнительно высокий равновесный уровень долгоживущих радионуклидов, содержащихся в топливном цикле реактора-трансмутатора. Из-за потерь в процессе радиохимического производства и при изготовлении твэлов неизбежно дополнительное загрязнение актиноидами радиоактивных отходов. Эффективное решение проблемы уничтожения долгоживущих радионуклидов может быть достигнуто при трансмутации Np , Am , Cm в специализированной подкритической установке с жидким топливом и плотностью потока тепловых нейтронов в бланкете, превышающей $10^{15} \text{ c}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$. Возможность создания такой установки зависит от успехов в разработке новой сложной технологии.

Работа выполнена в рамках проекта МНТЦ № 17.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бергельсон Б.Р., Балюк С.А. Анализ накопления долгоживущей радиотоксичности в U-Pu топливном цикле ядерной энергетики. — Атомная энергия, 1996, т. 80, вып. 1, с. 37.
2. Бергельсон Б.Р., Балюк С.А. Параметры установки для трансмутации актиноидов без использования ядерного горючего и при малых добавках плутония: Препринт ИТЭФ 10-94, 1994.
3. Нормы радиационной безопасности (НРБ-76/87) и основные санитарные правила работы с радиоактивными веществами. М.: Энергоатомиздат, 1994.
4. Герасимов А.С., Зарицкая Т.С., Киселев Г.В., Рудик А.П. Сравнение радиологической опасности быстрых реакторов при трансмутации плутония и ДРАО: Препринт ИТЭФ 14-94, 1994.
5. Adamov E.O., Ganey I.Kh., Orlov V.V. Fast reactors and radwaste management. — Nucl. Eur. Worldscan, 1993, № 5/6.
6. Матвеев Л.В., Рогожин В.Ю. Актиноиды в жидких отходах, образующихся в процессе регенерации ядерного топлива ВВЭР-1000. — Атомная энергия, 1989, т. 66, вып. 6, с. 384—394.