

ЗНАЧИМОСТЬ ДЛЯ РАСПРОСТРАНЕНИЯ И ПОСЛЕДСТВИЯ ДЛЯ ГАРАНТИЙ ЯДЕРНЫХ ТОПЛИВНЫХ ЦИКЛОВ РАЗДЕЛЕНИЯ И ТРАНСМУТАЦИИ

Эрик Бухман и Геральд Кирхнер

АННОТАЦИЯ

В течение последних двух десятилетий вновь проявился интерес к разработке усовершенствованных ядерных реакторов и топливных циклов. Многие из этих усовершенствованных проектных концепций требуют, или могут использовать топливные элементы, которые содержат актиниды, полученные при переработке отработавшего топлива реакторов на легкой воде. Предполагается, что облучение этих элементов в реакторах на быстрых нейтронах преобразует их в менее токсичные изотопы и сократит их массу. Если трансмутация окажется неэффективной, то можно будет организовать цикл повторных преобразований в новое усовершенствованное реакторное топливо для достижения существенного сокращения массы. Внедрение такой технологии создаст долгосрочные риски распространения и потребует введения гарантий не только для плутония, но также и для других целевых актинидов: нептуния, америция и кюрия. Эти элементы будут присутствовать в изотопных смесях, информация о критических массах которых отсутствует. В этой статье представлены данные о критических массах и фоне нейтронов спонтанного деления для изотопных составов представляющих интерес актинидов, и их эволюции в топливе реакторов на легкой воде с различной степенью выгорания и во время хранения отработавшего топлива. Эти данные дополнены общими оценками полных запасов таких элементов, присутствующих в полномасштабных топливных циклах разделения и трансмутации, рассмотренных для коммерческих масштабов и временных периодов, требующихся для существенного сокращения их потенциалов распространения.

Авторы статьи работают в Центре научных и мирных исследований Гамбургского университета.

Почтовый адрес для корреспонденции: Gerald Kirchner, Carl Friedrich von Weizsacker-Center for Science and Peace Research (ZNF), Universitat Hamburg, Beim Schlump 83, 20144 Hamburg, Germany

Адрес электронной почты: gerald.kirchner@uni-hamburg.de

Статья получена 14 декабря 2017 года и принята к публикации 26 июня 2018 года.

ВВЕДЕНИЕ

В 2000 году был создан Международный форум «Поколение IV» для координации исследований и разработок усовершенствованного поколения ядерных энергетических систем¹. Международный форум «Поколение IV» выбрал для рассмотрения шесть концепций реакторов (реакторы «Поколения IV»), все из которых обладали потенциалом использования ядерных топливных циклов, которые включали выделение плутония и неосновных актинидов (нептуния, америция и кюрия) из отработавшего топлива с их последующей трансмутацией². Эти усовершенствованные топливные циклы включали многоэтапное отделение, изготовление топлива и облучение значительных масс расщепляющихся изотопов из высокоактивных отходов, также как и сокращения воспринимаемого периода наибольшего риска геологических могильников до нескольких сотен лет³. Последнее преимущество может иметь ограниченное значение, потому что оценки долгосрочной безопасности показывают, что плутоний и другие актиниды практически неподвижны в геосфере и биосфере, и представляют не-большой риск существенного вклада в потенциальное радиоактивное облучение в будущем⁴.

Исследование реакторов «Поколения IV» в основном направлены на разработку усовершенствованного реактора на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением. Среди шести концепций реакторов, выбранных Международным форумом, конструкции реакторов на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением опираются на наибольший опыт работы, и к ним относятся несколько коммерческих реакторов⁵. Реакторы на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением могут оказаться пригодными для трансмутаций актинидов, потому что

изотопы этих элементов обычно показывают меньшие отношения накопления при облучении быстрыми нейтронами по сравнению с нейтронами с термализованным спектром. Однако, реакторы на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением характеризуются положительным коэффициентом реактивности, что может привести к выбросу мощности с высоким энерговыделением и разрушением активной зоны, как случилось в аварии в Чернобыле в 1986 году⁶. Кроме того, топливные циклы с выделением и трансмутацией увеличивают риск распространения по двум основным причинам. Во-первых, для реакторов с однородной активной зоной с содержащими актиниды топливными стержнями увеличивается свойственный ей положительный коэффициент реактивности. Решение этой проблемы состоит в неоднородном распределении неосновных актинидов только во внешней области активной зоны. Это потребует отделения плутония от неосновных актинидов и не допустит применения более устойчивой к распространению стратегии переработки с извлечением смеси плутония и актинидов, разбавленной лантанидами⁷. Во-вторых, применение урана в качестве матрицы топлива обязательно из-за большого отрицательного доплеровского коэффициента реактивности урана-238. Однако, образование плутония из урана ограничивает суммарную трансмутацию в расчете на цикл облучения, таким образом порождая необходимость многократного повторного использования для эффективного сокращения массы плутония и неосновных актинидов. Следовательно, запасы этих элементов будут долгое время циркулировать на различных этапах топливного цикла. Эти ограничения существенно влияют на чувствительность концепции отделения и трансмутации к распространению.

Хотя некоторые данные о критических массах чистых трансурановых изотопов доступны, они не доступны для изотопных смесей актинидов, предназначенных для трансмутации, когда будет перерабатываться отработавшее ядерное топливо текущего поколения⁸. В последующем анализе будут представлены эти данные, вместе с некоторыми обобщенными оценками их суммарных масс, которые потребуется поставить под гарантии в случае реализации полномасштабного цикла выделения и трансмутации.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Сценарий разделения и трансмутации

Обычно ожидается, что актиниды, которые будут выделяться и преобразовываться, образуются в коммерческих реакторах на легкой воде. Точно не известно, когда эта технология станет доступной в промышленном масштабе. Изотопный состав отработавшего топлива на момент выделения зависит от периода хранения. Поэтому предполагается, что перед выделением пройдет несколько различных периодов промежуточного хранения облученного топлива, что приведет к довольно различным изотопным составам, зависящим от длительности хранения. Предполагается, что разделение будет достигаться в результате переработки в водном растворе с выделением урана, плутония, америция и кюрия⁹. Рассматриваются два варианта переработки. В первом варианте неосновные актиниды америций и кюриий экстрагируются вместе, поскольку их разделение затруднено. В другом варианте, если не намечается переработка изотопов кюрия, выделяется америций, что снимает избыточные требования по защите, вызванные высокой скоростью спонтанного деления кюрия-244¹⁰.

В недавних моделированиях топливного цикла были рассчитаны эффективности трансмутации в реакторе на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением мощностью 1200 МВт (тепл.), которые были соответственно оптимизированы для трансмутации плутония и неосновных актинидов¹¹. Эти данные используются в последующем анализе; они модифицированы для учета гораздо более длинного периода хранения. В предыдущих моделированиях предполагалось пять циклов облучения, каждый по 365 суток эквивалентной полной мощности, с последующими двумя годами хранения и одним годом переработки и изготовления топлива. Однако, такой короткий период пребывания вне активной зоны нереалистичен. Введение высокого выгорания топлива в легководных реакторах уже увеличивает времена распада, которые должны пройти до переработки топлива для ограничения радиолитической деградации растворителей, используемых в процессе PUREX. Поэтому в данном исследовании предполагается семилетний срок промежуточного хранения отработавшего топлива, приводящий к 15 годам нахождения вне активной зоны между последовательными облучениями перерабатываемых актинидов¹². Коррекция длительности цикла может немного изменить эффективности трансмутации для цикла разделения и трансмутации, рассчитанные Веззони и др. с учетом процессов радиоактивного распада и накопления¹³; однако, этот эффект не был количественно учтен в данном анализе. Этот общий сценарий позволяет оценить относительный риск распространения для технологии разделения и трансмутации как для продолжения, так и прекращения программ коммерческой ядерной энергетики.

Нейтронное моделирование

Для оценки масс элементов актиноидов, входящих в промышленный топливный цикл разделения и трансмутации и их риска распространения, требуется информация об их образовании во время выгорания топлива в энергетическом реакторе и об их распаде (или накоплении) во время промежуточного хранения. Эти оценки были проведены с помощью системы программ SCALE версии 6.1 вместе с их критическими массами, учитывающие их изотопный состав, который зависит от истории их облучения и хранения¹⁴.

Облучение в легководных реакторах

Образование расщепляющихся элементов в энергетических реакторах моделировалось для высокого выгорания уранового топлива с выгорающим ядом Gd_2O_3 , облучаемого в реакторе с водой под давлением. Перечень параметров топливного элемента и условий эксплуатации приведен в таблице 1. Радиальная неоднородность загрузки топлива и профиля выгорания в легководных энергетических реакторах рассматривалась в общем порядке, поскольку она изменяла накопление изотопов америция и юрия по сравнению с более часто используемым упрощенном предположении однородной активной зоны¹⁵. Моделирование проводилось с помощью программы TRITON из системы SCALE¹⁶, которая позволяет использовать двумерное представление геометрии топливной сборки, и ее библиотек ядерных данных ENDF/B-VII¹⁷.

Таблица 1. Параметры топливных элементов и история облучения, используемые для моделирования образования расщепляющихся элементов в реакторе с водой под давлением.

<i>Параметры топливного стержня</i>	
Материал топлива	UO ₂
Плотность топлива (г/см ³)	10,4
Начальное обогащение ²³⁵ U (в весовых %) ^a	4,0 (2,6)
Диаметр таблетки топлива (см)	0,805
Внутренний диаметр оболочки (см)	0,822
Внешний диаметр оболочки (см)	0,95
Материал оболочки	Циркаллоу-4
Начальное содержание Gd ₂ O ₃ (в весовых %)	7,0
<i>Параметры направляющей трубки</i>	
Внутренний диаметр направляющей трубки (см)	1,11
Внешний диаметр направляющей трубки (см)	1,232
Материал направляющей трубки	Циркаллоу-4
<i>Параметры топливной сборки</i>	
Геометрия решетки	18×18
Шаг стержней (см)	1,27
Количество стержней с UO ₂	288
Количество стержней с Gd ₂ O ₃	12
Количество направляющих трубок	24
<i>Условия эксплуатации</i>	
Плотность мощности (кВт/кг)	37,5
Количество суток работы на полной мощности в цикле	444,3
Время выключения в цикле (в сутках)	30
Количество циклов для сборки	3
Плотность замедлителя (в г/см ₃)	0,711
Средняя концентрация растворимого бора (частей на миллион)	750
^a Величина, указанная в скобках, относится к топливным стержням, содержащим гадолиний.	

Промежуточное хранение

Рассматривались времена хранения до 50 лет, поскольку кажется правдоподобным, что может пройти 50 лет до того, как станет доступным полномасштабный топливный цикл разделения и трансмутации. Изменения массы и изотопного состава трансурановых элементов во время такого протяженного периода промежуточного хранения облученного топлива рассчитывались в качестве части расчетов моделирования выгорания по программе TRITON.

Критические массы

Критические массы рассчитывались для сплошных металлических сфер без оболочки¹⁸, с помощью программы Монте-Карло KENO V.a в комбинации с контрольным модулем CSAS5 системы SCALE¹⁹. Это позволило провести итеративный поиск конфигурации с $k_{eff} = 1,0$ посредством систематической вариации радиуса сферы.

Использовалась 238 группа энергий библиотеки ядерных данных ENDF/B-VI.8, доступной в системе SCALE. Предполагалось, что металлический плутоний находится в α -фазе. Для сравнения проводились некоторые дополнительные моделирования с бериллиевым рефлектором, окружающим металлическую сферу из расщепляющегося материала.

Скорости спонтанного деления

Поскольку плотность потока нейтронов, образующихся в процессе спонтанного деления, оказывает большое влияние как на технические аспекты изготовления ядерного взрывного устройства, так и на мероприятия, необходимые для ограничения радиационного воздействия при обращении с устройством, эта величина была определена для рассчитанных критических масс без оболочки с использованием вероятностей спонтанного деления и количества нейтронов на деление, приведенных в библиотеках ядерных данных ENDF/B-VII системы SCALE²⁰.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Плутоний

Облучение топлива

Накопление плутония по мере возрастания степени выгорания и изменение его изотопного состава показаны на рисунке 1. При высоких значениях степени выгорания масса плутония приближается к насыщению, потому что с выгоранием урана-235 доля мощности от деления плутония увеличивается. Его изотопный состав характеризуется монотонным уменьшением доли плутония-239. Напротив, плутоний-240 почти достигает равновесия при степени выгорания примерно 30 ГВт·день/т из-за его большого поперечного сечения поглощения почти тепловых нейтронов. Эти временные изменения изотопного состава отражаются в зависимостях критических масс и интенсивности источника нейтронов спонтанного деления, показанных на рисунке 2. Критическая масса сплошной металлической сферы умеренно возрастает при увеличении степени выгорания, в то время как поток нейтронов спонтанного деления, в основном производимый плутонием-240, резко возрастает при малых степенях выгорания, но достигает почти постоянного уровня при высоких степенях выгорания. Эти результаты расширяют предыдущие оценки возможности изготовления ядерных взрывных устройств из плутония, полученного из топлива коммерческих энергетических реакторов с высокой степенью выгорания²¹.

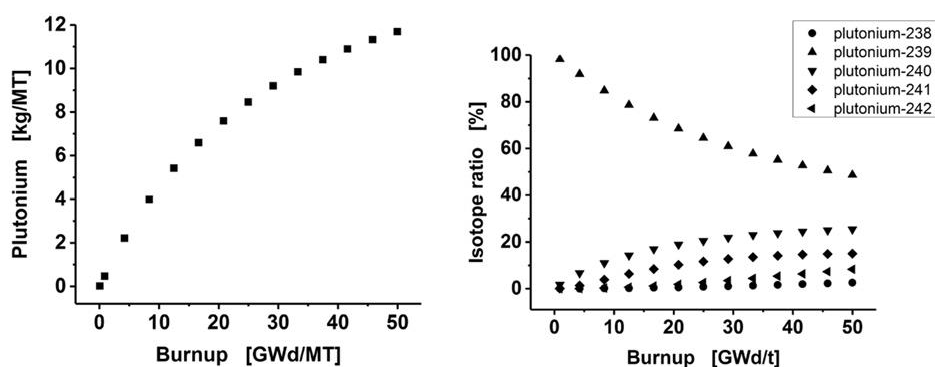


Рисунок 1. Масса плутония, образующегося в топливе реактора с водой под давлением во время облучения (слева, в кг/т), и его изотопного состава (справа, в %). По горизонтальной оси отложена степень выгорания (в ГВт·день/т). Различные изотопы плутония на рисунке справа отмечены различными маркерами (плутоний-238 – круглым, плутоний-239 – треугольным вершиной вверх, плутоний-240 – треугольным вершиной вниз, плутоний-241 – ромбическим, плутоний-242 – треугольным вершиной влево).

Промежуточное хранение

Распад плутония-241 с периодом полураспада 14,4 года оказывает заметное влияние на изотопный состав плутония во время длительного хранения облученного топлива и может уменьшить его массу на 13% в течение 50 лет (смотрите рисунок 3). Влияние хранения на критическую массу сплошной металлической сферы без

оболочки и на нейтронный поток от спонтанного деления остается незначительным (смотрите рисунок 4). Альфа-распад изотопов юрия не вносит существенного вклада в запасы плутония из-за их малого отношения масс даже при высокой степени выгорания (смотрите рисунок 10).

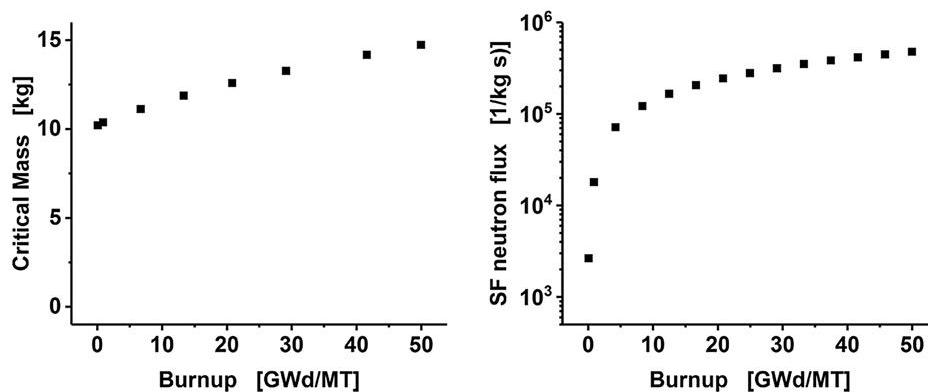


Рисунок 2. Минимальная критическая масса (слева, в кг) и поток нейтронов спонтанного деления (справа, в нейтронах/кг-с) плутония, произведенного в топливе реакторов с водой под давлением. По горизонтальной оси отложена степень выгорания (в ГВт-день/т).

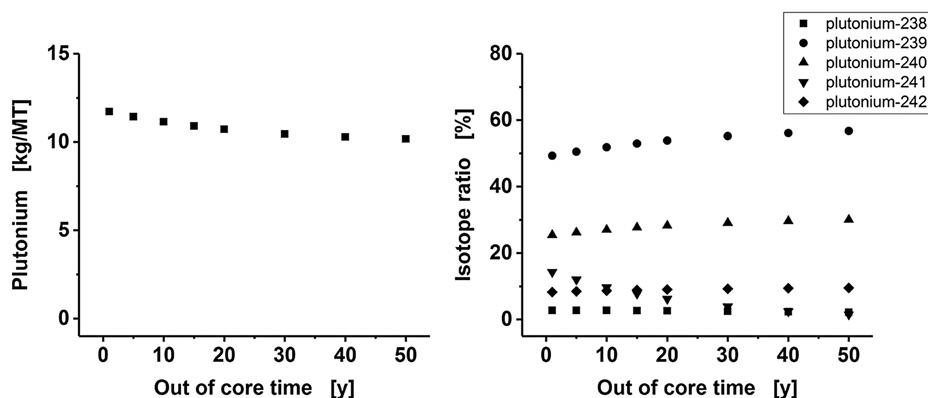


Рисунок 3. Влияние промежуточного хранения на массу плутония, присутствующего в облученном топливе (слева, в кг/т), и его изотопный состав (справа, в %). По горизонтальной оси отложена длительность хранения вне активной зоны (в годах). Различные изотопы плутония на рисунке справа отмечены различными маркерами (плутоний-238 – квадратным, плутоний-239 – круглым, плутоний-240 – треугольным вершиной вверх, плутоний-241 – треугольным вершиной вниз, плутоний-242 – ромбическим).

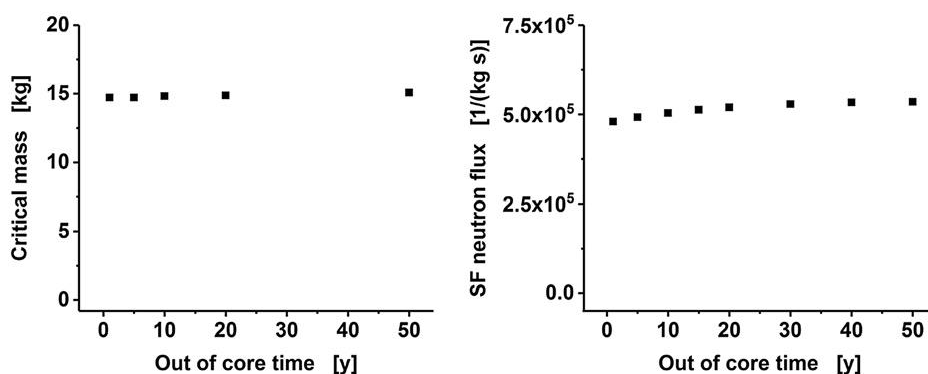


Рисунок 4. Изменение критической массы (слева, в кг) и поток нейтронов спонтанного деления (справа, в нейтронах/кг-с) плутония, присутствующего в облученном топливе по время промежуточного хранения. По горизонтальной оси отложена длительность хранения вне активной зоны (в годах).

Нептуний

Единственным относящимся к делу изотопом является нептуний-237 с периодом полураспада $2,1 \cdot 10^6$ лет. Во время облучения его скорость образования растет вместе со степенью выгорания (смотрите рисунок 5, слева). В хранящемся топливе образуется дополнительный нептуний при альфа-распаде америция-241 (смотрите рисунок 5, справа). Изотопный состав нептуния не изменяется со временем. Критическая масса сплошной нептуниевой металлической сферы без оболочки поэтому остается постоянной, с рассчитанным значением 65,0 кг. Его поток нейтронов спонтанного деления незначителен и составляет 0,11 нейтрона/кг-с.

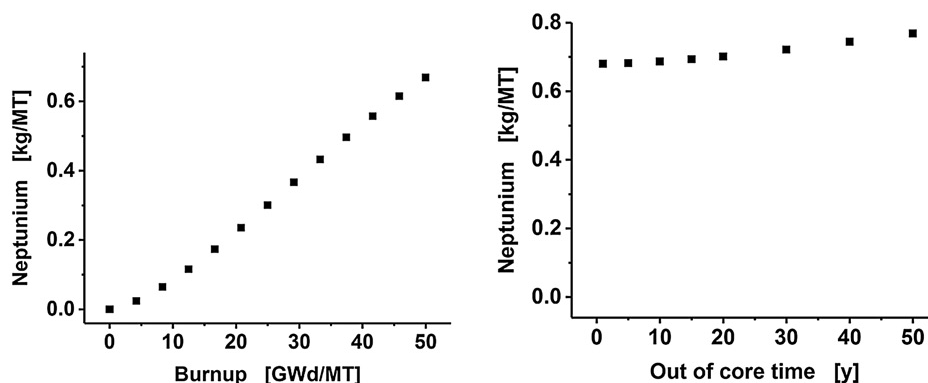


Рисунок 5. Масса нептуния, присутствующего в топливе реактора с водой под давлением во время облучения (слева, в кг/т) и промежуточного хранения отработавшего топлива (справа, в кг/т). По горизонтальной оси левого рисунка отложена степень выгорания (в ГВт-день/т). По горизонтальной оси правого рисунка отложена длительность хранения вне активной зоны (в годах).

Америций

Облучение топлива

По сравнению с плутонием, масса америция, образующегося в реакторе на легкой воде, остается низкой, но большая его часть производится при высокой степени выгорания (смотрите рисунок 6, слева). В его изотопном составе при малых значениях степени выгорания доминирует америций-241, но в течение облучения постоянно возрастает доля америция-243 (смотрите рисунок 6, справа). Изотопы америций-242m, америций-242 и америций-244 не накапливаются в топливе из-за их высоких поперечных сечений деления нейтронами тепловых энергий. Эволюция изотопного состава америция проявляется в увеличении критической массы сплошной металлической сферы без оболочки при росте степени выгорания (смотрите рисунок 7, слева), что связано с меньшим поперечным сечением деления америция-243 по сравнению с америцием-241. Рассчитанные массы соответствуют металлическим сферам с радиусом от 13,5 см при степени выгорания в 10 ГВт-день/т до 16,5 см при выгрузке топлива. Поскольку скорости спонтанного деления у обоих изотопов америция малы, показанные на рисунке 7 (справа), существенно меньше, чем у плутония оружейного качества ($5,18 \cdot 10^4$ нейтронов/кг-с при 5% содержании плутония-240).

Промежуточное хранение

Хотя периоды полураспада америция-241 и америция-243 велики (433 года и 7 370 лет соответственно), даже умеренно длинные периоды хранения сильно увеличивают массу америция, присутствующего в отработанном топливе (смотрите рисунок 8, слева). Этот эффект вызван бета-распадом плутония-241 (с периодом полураспада 14,4 года) в америций-241. Этот рост смещает соотношение изотопов (смотрите рисунок 8, справа), и уменьшает критическую массу металлической сферы без оболочки (смотрите рисунок 9, слева) до значений, подобных значениям для америция при малой степени выгорания топлива. Производство америция-241 во время хранения проявляется также в небольшом увеличении потока нейтронов спонтанного деления америция со временем (смотрите рисунок 9, справа), которое связано с тем, что частота спонтанного деления у этого изотопа вдвое больше, чем у америция-243.

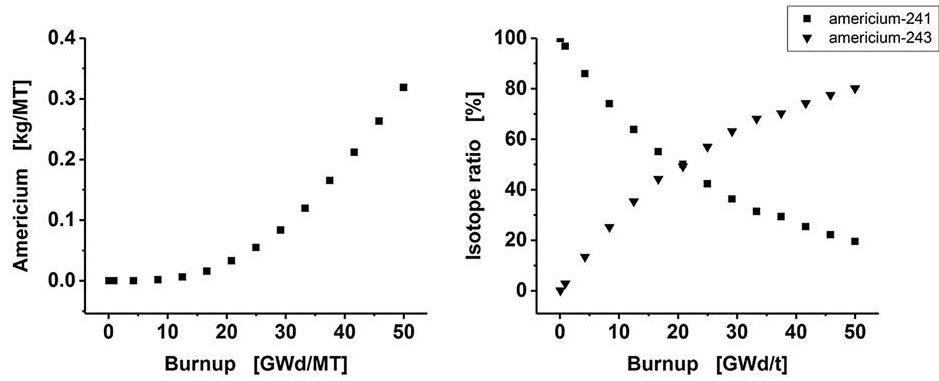


Рисунок 6. Масса америция, образующаяся при облучении топлива реактора с водой под давлением (слева, в кг/т) и его изотопный состав (справа, в %). По горизонтальной оси отложена степень выгорания (в ГВт·день/т). Изотопы отмечены маркерами (америй-241 – квадратным, и америй-243 – круглым).

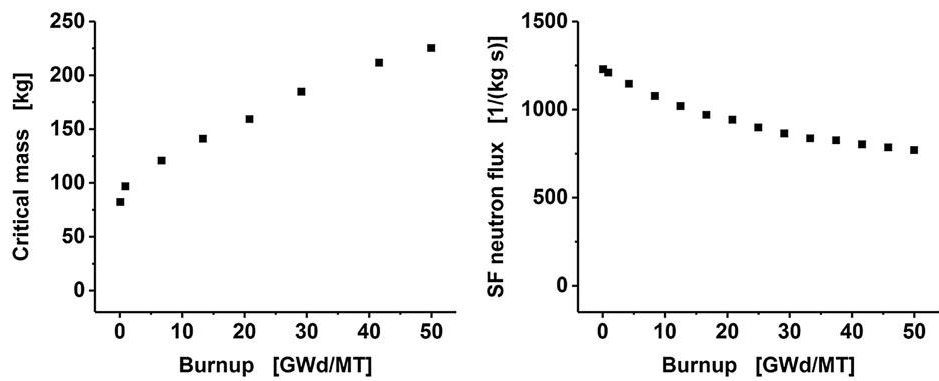


Рисунок 7. Критическая масса металлической сферы без оболочки (слева, в кг) и поток нейтронов спонтанного деления (справа, в нейтронах/кг·с) америция, произведенного в топливе реакторов с водой под давлением. По горизонтальной оси отложена степень выгорания (в ГВт·день/т).

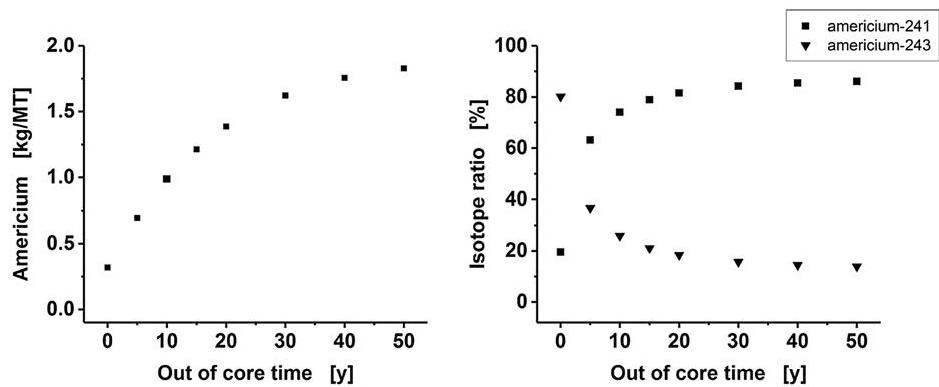


Рисунок 8. Влияние промежуточного хранения на массу америция, присутствующего в облученном топливе (слева, в кг/т), и на его изотопный состав (справа, в %). По горизонтальной оси отложена длительность хранения вне активной зоны (в годах).

Кюрий

Выгорание

Поскольку изотопы кюрия образуются при поглощении нейтронов в америции с последующим бета-распадом, их формирование требует длительного времени облучения топлива, но затем происходит экспоненциальный рост, хотя массы остаются относительно небольшими (смотрите рисунок 10, слева). Сначала превалирует

кюри-242, но по мере увеличения степени выгорания в изотопном составе начинает доминировать кюри-244 (смотрите рисунок 10, справа). Изменение изотопного состава отражается в изменении критических масс металлической кюриевой сферы без оболочки, которая из-за образования кюрия-244 уменьшается в течение выгорания на порядок величины, достигая при выгрузке топлива величины всего лишь в 27 кг (смотрите рисунок 11, слева). Однако, привлекательность кюрия для создания ядерного взрывного устройства серьезно осложняется его исключительно высоким нейтронным потоком (смотрите рисунок 11, справа), которое в основном возникает от спонтанного деления четно-четных изотопов кюрия.

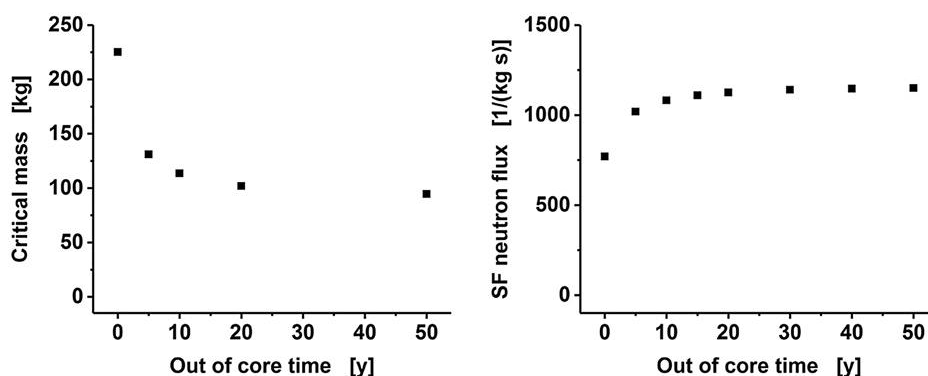


Рисунок 9. Изменение критической массы (слева, в кг) и потока нейтронов спонтанного деления (справа, в нейтронах/кг·с) америция, присутствующего в облученном топливе по время промежуточного хранения. По горизонтальной оси отложена длительность хранения вне активной зоны (в годах).

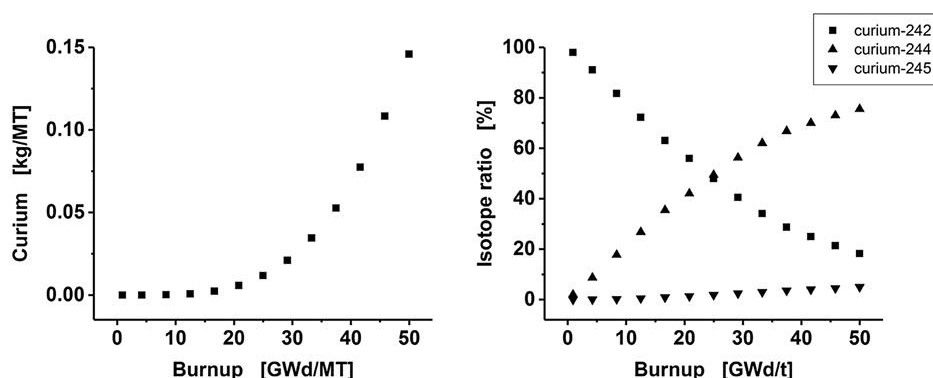


Рисунок 10. Масса кюрия, образующаяся при облучении топлива реактора с водой под давлением (слева, в кг/т) и его изотопный состав (справа, в %). По горизонтальной оси отложена степень выгорания (в ГВт·день/т). Изотопы отмечены маркерами (кюри-242 – квадратным, кюри-244 – треугольным с направленной вверх вершиной, и кюри-245 – треугольным с направленной вниз вершиной).

Промежуточное хранение

Из-за быстрой дезинтеграции основных изотопов кюрия с временами полураспада 163 дня (кюри-242) и 18,1 года (кюри-244) масса кюрия, присутствующего в отработавшем топливе, уменьшается на порядок величины через 50 лет после удаления из активной зоны (смотрите рисунок 12). Хотя критическая масса кюриевой сферы без оболочки уменьшается примерно на 25%, его чрезмерно высокая интенсивность источника нейтронов спонтанного деления мало изменяется за время хранения (смотрите рисунок 13).

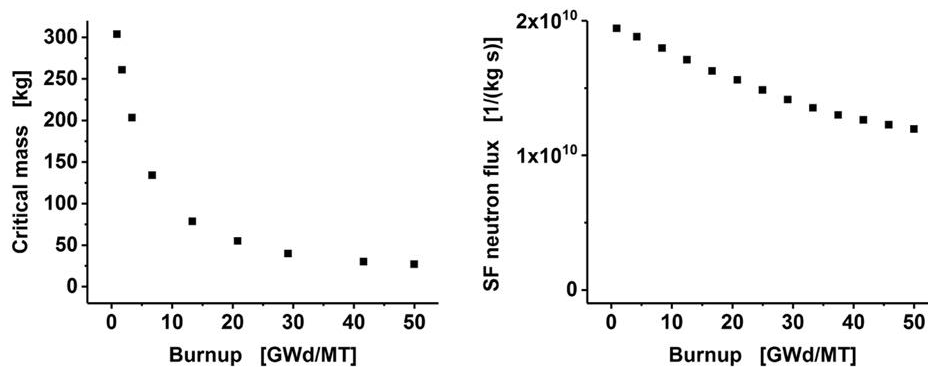


Рисунок 11. Критическая масса металлической сферы без оболочки (слева, в кг) и поток нейтронов спонтанного деления (справа, в нейтронах/кг·с) кюрия, произведенного в топливе реакторов с водой под давлением. По горизонтальной оси отложена степень выгорания (в ГВт·день/т).

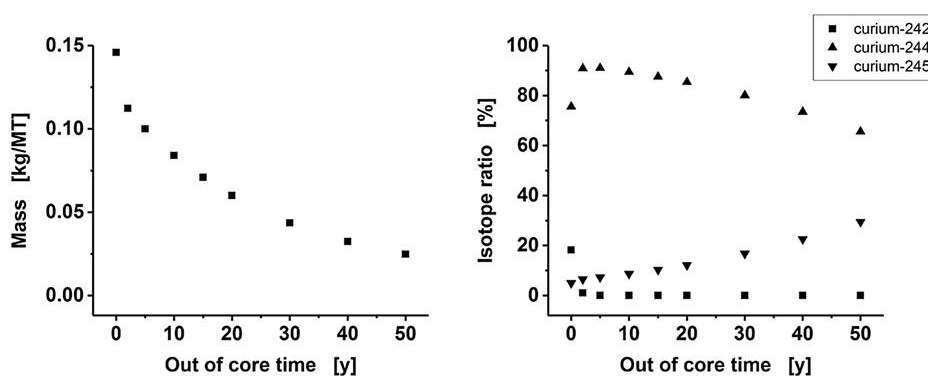


Рисунок 12. Изменение критической массы (слева, в кг) и потока нейтронов спонтанного деления (справа, в нейтронах/кг·с) америция, присутствующего в облученном топливе по время промежуточного хранения. По горизонтальной оси отложена длительность хранения вне активной зоны (в годах). Изотопы отмечены маркерами (кюрий-242 – квадратным, кюрий-244 – треугольным с направленной вверх вершиной, и кюрий-245 – треугольным с направленной вниз вершиной).

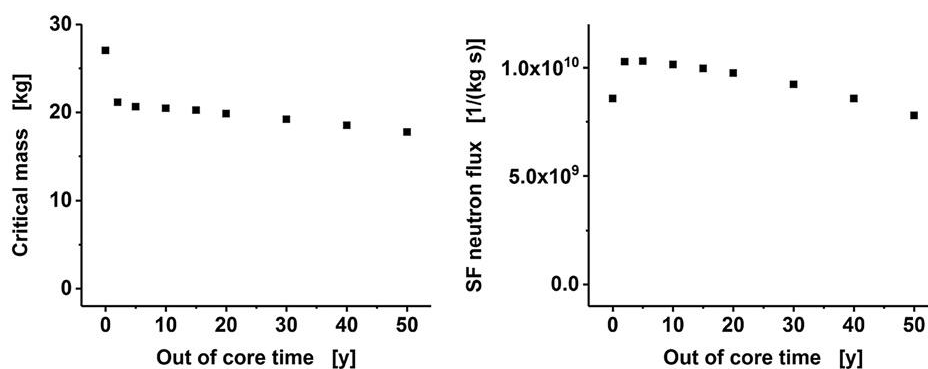


Рисунок 13. Изменение критической массы (слева, в кг) и потока нейтронов спонтанного деления (справа, в нейтронах/кг·с) кюрия, присутствующего в облученном топливе по время промежуточного хранения. По горизонтальной оси отложена длительность хранения вне активной зоны (в годах).

Америций плюс кюрий

Если будет принят вариант ухода от химически сложного отделения кюрия от америция после совместной экстракции обеих трехвалентных актинидов из потока отходов, то в рамках цикла разделения и трансмутации

придется обращаться со смесью америция и кюрия. Его масса и изотопный состав как функции степени выгорания топлива и времени после выгрузки отработавшего топлива из реактора могут быть легко выведены из приведенных выше данных для чистых элементов. По сравнению с чистым америцием, критическая масса смеси из-за присутствия кюрия несколько уменьшится (смотрите рисунок 14, слева). Однако, поток нейтронов спонтанного деления смеси увеличится примерно в 10^5 раз (смотрите рисунок 14, справа) несмотря на то, что массовая доля кюрия через 50 лет после облучения топлива уменьшится с 25% до 1%. Даже после длительного промежуточного хранения отработавшего топлива, обращение со смесью америция и кюрия потребует массивной защиты.

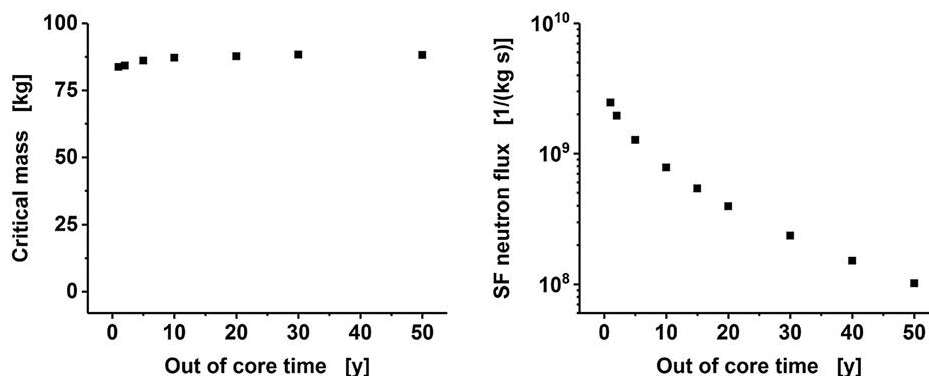


Рисунок 14. Изменение критической массы (слева, в кг) и потока нейтронов спонтанного деления (справа, в нейтронах/кг·с) америция плюс кюрия, присутствующего в облученном топливе по время промежуточного хранения. По горизонтальной оси отложена длительность хранения вне активной зоны (в годах).

Последствия для топливного цикла

Риски распространения для различных элементов и смесей элементов, которые предполагается изолировать и обращаться с ними в топливном цикле разделения и трансмутации, можно вывести из таблицы 2. В ней показаны критические массы и потоки нейтронов в различные времена после облучения топлива, и, для сравнения, типичных урана и плутония оружейного качества. Эти данные показывают, что нептуний и америций, образующиеся в реакторах с обычной водой, могут быть существенно чувствительными для распространения, потому что их ядерные свойства (критическая масса и интенсивность источника нейтронов спонтанного деления) схожи со свойствами высокообогащенного урана.

Таблица 2. Критические массы металлических сфер без оболочки из трансурановых элементов, образующихся в реакторах с обычной водой, и интенсивности источника нейтронов спонтанного деления.

Элемент	Критическая масса (кг)			Поток нейтронов спонтанного деления (1/кг·с)		
	Время вне активной зоны (лет)			Время вне активной зоны (лет)		
	1	10	50	1	10	50
Плутоний	14,7	14,8	15,1	$4,8 \cdot 10^5$	$5,0 \cdot 10^5$	$5,3 \cdot 10^5$
Нептуний	65,1	65,1	65,1	0,1	0,1	0,1
Америций	184,2	113,6	94,6	865	1080	1150
Кюрий	22,2	20,4	17,8	$9,9 \cdot 10^9$	$1,0 \cdot 10^{10}$	$7,8 \cdot 10^9$
Америций+ кюрий	83,7	87,1	88,2	$2,5 \cdot 10^9$	$7,8 \cdot 10^8$	$1,0 \cdot 10^8$
Для сравнения						
ВОУ ^а	69,5	69,5	69,5	5,5	5,5	5,5
Плутоний ^б	10,3	10,3	10,3	$1,1 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^5$

^а 80% урана-235
^б Плутоний оружейного качества. 95% плутония-239, 5% плутония-240.

Оценки масс плутония, нептуния и америция, которые надо будет переработать, если отработавшее топливо из реакторов с обычной водой будет предназначено для использования в цикле разделения и трансмутации, приведены в таблице 3. Они основаны на общем количестве накопившегося отработавшего облученного топлива в 10 000 тонн, произведенного в реакторах на легкой воде²². Для сравнения включены массы, ежегодно

выгружаемые из коммерческого реактора на легкой воде. В таблице 3 дополнительно представлены соответствующие количества критических масс. Чтобы указать на возможные вариации, эти массы были рассчитаны как для металлических сфер без оболочки, так и для сфер, окруженных бериллиевым отражателем. Эти данные документально подтверждают, что внедрение полномасштабного промышленного топливного цикла разделения и трансмутации будет оперировать с значимыми для распространения массами не только плутония, но и нептуния и америция, независимо от степени выгорания топлива и времени хранения вне активной зоны. Для этих элементов потребуются полные гарантии на всех предприятиях и операциях топливного цикла, включая хранение, транспортировку, переработку, изготовление топлива и облучение в ядерном реакторе²³.

Таблица 3. Запасы плутония и чувствительных к распространению неосновных актинидов, и количества их критических масс, ежегодно выгружаемых из реактора, и накопленных в 10 000 тонн отработавшего топлива реакторов на легкой воде.

Элемент	Выгрузка ^а (кг)	Число критических масс		Запасы ^б (т)	Число критических масс	
		Голая сфера	Рефлектор		Голая сфера	Рефлектор
Плутоний	233,6	16	4,2 (? 42)	111,4	7530	19820
Нептуний	13,4	0,2	0,3	6,86	105	148
Америций	6,4	0,03	0,04	9,86	87	128

^а 20 тонн, 1 ГВт (эл.), выгорание 50 ГВт·день/т
^б 10 000 т, выгорание 50 ГВт·день/т, 10 лет вне активной зоны

Наконец, были рассмотрены временные периоды, необходимые для уменьшения количества чувствительных к распространению элементов посредством трансмутации. Обычно они различны для конструкций активных зон реакторов, соответственно оптимизированных для трансмутации плутония и неосновных актинидов. В таблице 4 приведены изменения массы плутония и неосновных актинидов для этих двух вариантов в результате работы реактора на быстрых нейтронах мощностью 1200 МВт (эл.) для рассматриваемых периодов времени. В расчетах предполагается, что запасы плутония и неосновных актинидов достаточно высоки для предоставления топливных элементов с актинидами при каждой перезагрузке. Вариации длительности периодов нахождения вне активной зоны незначительно влияют на результаты моделирования. Наиболее примечательным результатом было то, что даже в оптимизированных реакторах трансмутация актинидов была неэффективным процессом. Это происходило в первую очередь потому, что высокие поперечные сечения поглощения нейтронов урана-238 и других актинидов приводят к накоплению дополнительного плутония и неосновных актинидов, конкурирующему с их делением. При оптимизации для трансмутации плутония такой реактор даже будет увеличивать запасы неосновных актинидов на массу, которая будет расщепляться в конверторе актинидов только после 75 лет его эксплуатации. Теоретически это накопление актинидов может быть уменьшено заменой урана-238 на инертный материал топлива. Однако, по соображениям безопасности уран-238 незаменим, поскольку его высокий отрицательный доплеровский коэффициент реактивности ограничивает риск серьезных аварий из-за выброса мощности²⁴.

Таблица 4. Массы, преобразованные в реакторе на быстрых нейтронах с активными зонами, соответственно спроектированными для конверсии плутония и неосновных актинидов (НОА)^а.

Время работы (лет)	Конвертор плутония		Конвертор НОА	
	Плутоний (т)	НОА (т)	Плутоний (т)	НОА (т)
25	-6,6	+3,6	-4,7	+0,9
50	-11,6	+4,4	-7,0	-2,3
75	-15,8	+4,8	-9,3	-5,6
100	-20,1	+5,1	-11,6	-9,2
125	-24,7	+5,4	-13,9	-12,6
150	-29,5	+5,6	-16,8	-16,1

^а Численные значения определены из рисунка 2 в работе «Plutonium and Minor Actinides Incineration Options» (ссылка 11)

Сравнение с таблицей 3 показывает, что запасы плутония и неосновных актинидов, произведенные в стране, которая генерирует значительную часть своей электроэнергии в реакторах на легкой воде, будут значительно сокращены, только если реакторы трансмутации будут работать в течение более ста лет. Например, Веззони и др. оценили, что потребуется работа шести или семи реакторов на быстрых нейтронах мощностью 1200 МВт (тепл.) в течение 150 лет, чтобы ликвидировать запасы плутония и неосновных актинидов в отработавшем топливе, накопленном в Германии до выключения ее последнего коммерческого реактора²⁵. Этот результат все еще слишком оптимистичен, потому что их моделирования предполагают нереалистично короткие времена промежуточного хранения между последовательными облучениями (смотрите раздел «Материалы и

методы»). Если предположить, что разработка и испытания прототипа полномасштабного промышленного топливного цикла разделения и трансмутации потребует нескольких десятилетий, то для того, чтобы ограничить риски, создаваемые внедрением такой технологии, понадобится существование глобально принятого договора, включающего соглашения по всеобъемлющим гарантиям, подобного Договору о нераспространении, в течение следующих 200 лет.

Из таблицы 4 видно, что среднегодовое уменьшение количества плутония примерно равно 0,2 тонны, если реактор оптимизирован для конверсии плутония, и около 0,1 тонны, если он оптимизирован для конверсии неосновных актинидов. Из данных, представленных в таблице 3, следует, что такой реактор может ежегодно утилизировать плутоний, присутствующий в 20 тоннах отработавшего топлива, и неосновные актиниды, находящиеся в 60 тоннах отработавшего топлива. Замечая, что из современных реакторов на легкой воде с высокой степенью выгорания выгружается приблизительно 20 тонн отработавшего топлива на 1 ГВт (эл.) (смотрите таблицу 1)²⁶, становится очевидным, что в странах, генерирующих существенную долю потребляемой электроэнергии на реакторах с легкой водой, даже наличие парка реакторов для трансмутации сможет только ослабить накопление плутония и неосновных актинидов. Стабилизация или даже постепенное уменьшение их запасов потребует перемещения почти 100% генерации электричества на реакторы на быстрых нейтронах, некоторые из которых должны быть оптимизированы для конверсии плутония и неосновных актинидов²⁷. Экономический анализ такой системы генерации ядерной энергии отсутствует. Однако, прошлый опыт документально подтверждает, что реакторы на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением и предприятия топливного цикла с переработкой актинидов могут быть экономически неконкурентоспособными по сравнению с современными реакторами на легкой воде, базирующимися на однократных топливных циклах²⁸.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Реализация топливного цикла разделения и трансмутации в промышленном масштабе вызовет потенциально проблемные вопросы распространения. Текущие концепции предусматривают выделение плутония и неосновных актинидов нептуния, америция, и потенциально кюрия из отработавшего топлива реакторов на легкой воде, и уменьшение их массы делением в реакторах на быстрых нейтронах. В данной статье мы представляем данные по критическим массам и фону нейтронов от спонтанного деления для изотопных составов интересующих нас актинидов и их эволюции в топливе реакторов на легкой воде с различными степенями выгорания и во время хранения отработавшего топлива. Эти данные дополняются общими оценками общих запасов этих элементов, присутствующих в полномасштабном топливном цикле разделения и трансмутации, и периодов времени, требующихся для существенного уменьшения их потенциала для распространения.

Приведены критические массы (от малых до умеренных значений) и потоки нейтронов спонтанного деления для изотопных смесей плутония, нептуния и америция, присутствующих в отработавшем топливе реакторов на легкой воде, для рассматриваемых степеней выгорания и для времен хранения до 50 лет. Таким образом, все три элемента весьма чувствительны к распространению и их выделение и обращение с ними в ядерном топливном цикле разделения и трансмутации требует полных гарантий. Совместная переработка америция и кюрия эффективно уменьшит его риск распространения, но чрезмерно усилит требования по защите и профессиональное радиационное облучение во время изготовления, транспортировки и обращения с топливом, содержащим актиниды.

Риск распространения в концепции разделения и трансмутации подтверждается тем фактом, что даже в топливном цикле среднего размера потребуется выделять, хранить, транспортировать, обращаться и облучать большое количество критических масс чувствительных элементов. Скорости удаления ограничены даже в реакторах на быстрых нейтронах, сконструированных и оптимизированных для трансмутации плутония и неосновных актинидов. Следовательно, для эффективного сокращения их начальных запасов будет необходима многократная переработка этих элементов, требующая работы реактора в течение более ста лет. Поэтому разделение и трансмутация должна будет продолжаться намного дольше времени действия любых глобально принятых соглашений о нераспространении, включающих всеобъемлющие гарантии, что еще более увеличит риск распространения.

ПРИМЕЧАНИЯ И ССЫЛКИ

1. Активными членами являются Канада, Китайская народная республика, Евратом, Франция, Япония, Республика Корея, Российская Федерация, Республика Южной Африки, Швейцария, и Соединенные Штаты; к не активным членам относятся Аргентина, Австралия, Бразилия и Великобритания.
2. К ним относятся реактор на быстрых нейтронах с газовым охлаждением, реактор на быстрых нейтронах с

охлаждением расплавленным свинцом, реактор с расплавленными солями, реактор на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением, реактор с охлаждением надкритической водой, и очень высокотемпературный реактор. Подробности смотрите в "Technology Road Map Update for Generation IV Nuclear Energy Systems," Generation IV International Forum, accessed 1 August 2017, https://www.gen-4.org/gif/jcms/c_60729/technology-roadmap-update-2013.

3. International Atomic Energy Agency, Implications of Partitioning and Transmutation in Radioactive Waste Management, Technical Reports Series No. 435 (Vienna: IAEA, 2004), 4–7.
4. Для соли как вмещающей породы: Dieter Buhmann, "Relevance of Partitioning and Transmutation to Long-Term Safety of a Repository in Rock Salt under Realistic Disposal Conditions," 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Nagoya, Japan, 26-30 September 1999. Для глины как вмещающей породы: Nagra (Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle), Project Opalinus Clay. Safety Report. Demonstration of Disposal Feasibility for Spent Fuel, Vitrified High-Level Waste and Long-Lived Intermediate-Level Waste (Entsorgungsnachweis), Technical Report 02-05 (Wettingen, Switzerland, 2004). Для гранита как вмещающей породы: SKB (Svensk Karnbränslehantering AB), Long-term Safety for the Final Repository for Spent Nuclear Fuel at Forsmark, Technical Report TR-11-01. Stockholm, Sweden. Для туфа как вмещающей породы был предсказан некоторый вклад плутония в потенциальную лучевую экспозицию человека при пессимистических предположениях; смотрите U.S. Department of Energy, Office of Civilian Radioactive Waste Management, Yucca Mountain Repository License Application – SAFETY ANALYSIS REPORT, Chapter 2: Repository Safety After Permanent Closure, Report DOE/RW-0573, Rev. 0, (Washington, DC, 2008).
5. Реакторы на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением в настоящее время работают в России, Индии и Японии (где они были выключены после аварии в Фукусиме в 2011 году), тогда как проблемы безопасности, опасения распространения и низкая эксплуатационная готовность привели к прекращению программ реакторов на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением во Франции, Германии, Великобритании и Соединенных Штатах.
6. Пример последовательности событий, инициирующей такой выброс реактивности, является утечка масла из подшипника первичного насоса в натрий в первичном контуре, приведен в работе Gerald Kirchner, "Reactivity Effects of Oil Contamination in the Primary Cooling Loop of a Sodium-cooled Fast Reactor," Proceedings of the International Conference on Nuclear Criticality Safety, Oxford, U.K., 9-13 September 1991, pp. V-167 - V-173.
7. Jungmin Kang and Frank von Hippel, "Limited Proliferation-Resistance Benefits from Recycling Unseparated Transuranics and Lanthanides from Light-Water Reactor Spent Fuel," Science and Global Security 13 (2005): 169–181.
8. E. D. Clayton, "Fissionability and Criticality: From Protactinium to Californium and Beyond," Nuclear Science and Engineering 52 (1973): 417–420. R. M. Westfall, "Critical Masses for the Even-Neutron-Numbered Transuranium Actinides," Nuclear Science and Engineering 79 (1981): 237-239. R. Q. Wright, W. C. Jordan, and R. M. Westfall, "Critical Masses of Bare Metal Spheres Using SCALE/XSDRN," Proceedings of the Annual Meeting of the American Nuclear Society, San Diego, 4-8 June 2000, 167, cited by Kang and von Hippel, "Limited Proliferation-Resistance," 172 (ссылка 7).
9. Альтернативно, пирометаллическое разделение представляет многообещающую технологию. Однако, ее разработка и успешная демонстрация в промышленном масштабе потребует больших усилий в исследованиях и разработках, "Status of Developments in the Back End of the Fast Reactor Fuel Cycle," International Atomic Energy Agency, Nuclear Energy Series, No. NF-T-42 (Vienna, 2011).
10. G. Modolo, A. Wilden, A. Geist, D. Magnusson, and R. Malmbeck, "A Review of the Demonstration of Innovative Solvent Extraction Processes for the Recovery of Trivalent Minor Actinides from PUREX Raffinate," Radiochimica Acta 100 (2012): 715–725.
11. Barbara Vezzoni, Fabrizio Gabrielli, Andrei Rineiski, Alexandra Schwenk-Ferrero, Vincenzo Romanello, Werner Maschek, Concetta Fazio, and Massimo Salvatores, "Plutonium and Minor Actinides Incineration Options Using Innovative Na-Cooled Fast Reactors: Impacting on Phasing-out and On-going Fuel Cycles," Progress in Nuclear Energy 82 (2015): 58–63.
12. Это значение было установлено в качестве минимального периода промежуточного хранения в проекте немецкого коммерческого завода переработки топлива в Вакерсдорфе, строительство которого было остановлено в 1989 году из-за неожиданного большого увеличения стоимости.
13. "Plutonium and Minor Actinides Incineration Options". (ссылка 11)
14. RSICC Computer Code Collection, CCC-732, SCALE: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design, Version 6.1, Oak Ridge National Laboratory, Technical Report ORNL/TM-2005/39 (Oak Ridge, TN, 2011).

15. В течение своего первого цикла облучения топливная сборка моделировалась как окруженная сборками третьего цикла, во время второго цикла – сборками второго цикла и во время третьего цикла – сборками первого цикла.
16. Mark D. de Hart, and Stephen M. Bowman, "Reactor Physics Methods and Capabilities in SCALE", Nuclear Technology 174 (2011): 196–213.
17. Germina Ilas, Ian C. Gauld, and Georgeta Radulescu, "Validation of New Depletion Capabilities and ENDF/B-VII data libraries in SCALE", Annals of Nuclear Energy 46 (2012): 43–55.
18. Значения плотности были взяты из David R. Lide (Editor), "CRC Handbook of Chemistry and Physics, 85th Edition," CRC Press (Boca Raton, FL, 2004).
19. Sedat Goluoglu, Lester M. Petrie, Jr., Michael E. Dunn, Daniel F. Hollenbach, and Bradley T. Rearden, "Monte Carlo Criticality Methods and Analysis Capabilities in SCALE," Nuclear Technology 174 (2011): 214–235.
20. "SCALE: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design, Version 6.1". (ссылка 14)
21. J. Carson Mark, Frank von Hippel, and Edward Lyman, "Explosive Properties of Reactor-Grade Plutonium," Science and Global Security 17 (2009): 170–185.
22. Для сравнения в Соединенных Штатах на конец 2009 года накопилось 62 683 тонны коммерческого отработавшего топлива (U.S. Nuclear Regulatory Commission, accessed 27 October 2017, <https://www.nrc.gov/waste/spent-fuel-storage/faqs.html>), а в Германии на конец 2014 года – 8 379 тонны (Federal Ministry for the Environment, Nature Conservation, Building and Nuclear Safety, Inventory of Radioactive Wastes, 2015).
23. Это было установлено Министерством энергетики, смотрите U.S. Department of Energy, "Nuclear Material Control and Accountability," DOE O 474.2 Chg 4 (PgChg), (Washington, D.C, 13 September 2016).
24. Обычно реакторы на быстрых нейтронах показывают общий положительный коэффициент реактивности, приводящий к риску выбросов мощности и серьезных аварий с разрушением активной зоны, часто называемых авариями «Бете-Тэйта». Конструкция реактора на быстрых нейтронах с топливом с плутонием и неосновными актинидами, обладающая отрицательным коэффициентом реактивности, все еще остается нерешенной проблемой.
25. "Plutonium and Minor Actinides Incineration Options". (ссылка 11)
26. Для сравнения, установленные мощности в Канаде равны 13,6 ГВт (эл.), в Китае – 33,6 ГВт (эл.), во Франции – 63,1 ГВт (эл.), в России – 26,9 ГВт (эл.), и в Соединенных Штатах – 99,6 ГВт (эл.), "World Nuclear Power Reactors & Uranium Requirements, August 2017", World Nuclear Association, accessed 21 August 2017, <http://www.world-nuclear.org/informationlibrary/facts-and-figures/world-nuclear-power-reactors-and-uranium-requireme.aspx>.
27. "Plutonium and Minor Actinides Incineration Options". (ссылка 11)
28. Это стало главной причиной остановки единственного коммерческого реактора на быстрых нейтронах с натриевым охлаждением «Супер-Феникс» во Франции, смотрите "Liquid Metal Cooled Reactors: Experience in Design and Operation," International Atomic Energy Agency, IAEA-TECDOC-1569 (Vienna, 2007). For economic challenges of building and operating fuel cycle installations, see "Mixed-Oxide Fuel Fabrication Plant and Plutonium Disposition: Management and Policy Issues," Congressional Research Service, R43125 (14 December 2017).