УДК 621.039.526:621.039.59

# ВЫЖИГАНИЕ ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ В ЖЕСТКОМ СПЕКТРЕ НЕЙТРОНОВ

# Г.Л.Хорасанов, А.И.Блохин, В.В.Синица

ГНЦ РФ-Физико-энергетический институт им. А.И.Лейпунского, г. Обнинск



На основе константного обеспечения БНАБ-93 (ABBN-93) и библиотек оцененных ядерных данных BROND-2, ENDF/B-VI, JEF-2 и Jendl-3 рассчитаны коэффициенты размножения нейтронов при делении трансурановых элементов - нептуния, плутония, америция и кюрия - в различных спектрах нейтронов. Приведены ядерные характеристики трансуранов в спектре нейтронов деления и в расчетном спектре нейтронов активной зоны быстрого реактора со свинцовым теплоносителем. Показано, что в спектре нейтронов деления большинство изотопов трансуранов являются хорошо делящимися ядрами с коэффициентами размножения нейтронов  $K \ge 1$ . В спектре нейтронов активной зоны РБН ряд изотопов плутония сохраняет свои свойства размножения нейтронов на уровне  $K \ge 1$ , в то время как младшие актиниды — нептуний и америций - характеризуются существенно более низкими коэффициентами размножения нейтронов  $K \le 1$ . Отмечена возможность использования ядерных взрывных технологий для выжигания нептуния и америция в спектре нейтронов деления.

# **ВВЕДЕНИЕ**

Атомная энергетика, обладая рядом преимуществ перед другими видами производства энергии, имеет один существенный недостаток - при ее длительном функционировании нарабатываются долгоживущие радиоизотопы трансурановых элементов (ТУЭ) - нептуния, плутония, америция и кюрия. Нормы радиационной безопасности устанавливают наиболее жесткий регламент на контакты с этими веществами - согласно НРБ-96 допустимая удельная активность ТУЭ не должна превышать 10<sup>4</sup> Бк/кг, что связано с высокой радиотоксичностью их альфа-излучения. Количество уже наработанных в масштабе мировой атомной энергетики альфа-активных ТУЭ исчисляется сотнями и тысячами тонн, что обусловлено большим парком действующих АЭС и длительным сроком их функционирования. Между тем, стратегия обращения с отработавшим ядерным топливом еще полностью не определилась. Если в отношении энергетического плутония имеется некоторый положительный опыт обращения с ним, заключающийся в сжигании в АЭС смешанного уран-плутониевого топлива, то для остальных ТУЭ промышленная технология их извлечения и переработки в твэлы практически отсутствует.

Следует также отметить, что до последнего времени отсутствовало надежное обеспечение расчетов ядерными константами, которые необходимы для выработки стратегии выжигания или трансмутации ТУЭ. Достаточно указать на то, что в

опубликованном справочнике групповых констант БНАБ-78 [1] приводятся данные лишь для двух изотопов ТУЭ - Pu-239 и Pu-240. В новой версии групповых констант БНАБ-93 [2] сведения об изотопах ТУЭ существенно расширены, что позволяет более уверенно намечать и анализировать возможные пути ликвидации наиболее опасных изотопов Np, Pu, Am и Cm.

Цель настоящего сообщения - на основе групповых констант БНАБ-93 оценить возможности расщепления ядер ТУЭ в жестких спектрах нейтронов и на этой основе проанализировать перспективы выжигания младших актинидов - Np, Am и Cm.

# **МЕТОД РАСЧЕТА**

Решалась задача нахождения коэффициента размножения мгновенных нейтронов на один акт деления в условиях действующего спектра нейтронов. При этом единственным механизмом гибели нейтрона принимался его захват ядром, сопровождающийся либо гамма-излучением, либо делением ядра с испусканием у мгновенных нейтронов. Следуя работе [3], можно полагать, что величина

$$\overline{\alpha} = \sum_{g} \left( \frac{\sigma_{c}}{\sigma_{f}} \right)_{g} f(E_{g}) , \qquad (1)$$

где g - номер энергетической группы,  $\sigma_c$  и  $\sigma_f$  - сечения радиационного захвата и деления соответственно,  $f(E_g)$  - групповой спектр нейтронов деления, определяет среднее отношение поглощения нейтронов процессами захвата и деления, а величина

$$K = \frac{\overline{v}}{1 + \overline{\alpha}}$$
 (2)

соответствует коэффициенту размножения нейтронов на один акт деления. В выражении (2) величина

$$\overline{v} = \sum_{g} v_g f(E_g) \tag{3}$$

является средним числом мгновенных нейтронов на один акт деления.

В качестве наиболее жесткого спектра был рассмотрен спектр нейтронов деления, групповая форма которого приведена в работе [1]. Константы  $\sigma_c$ ,  $\sigma_f$  и  $\nu$  заимствовались из новой системы групповых констант БНАБ-93, разработанной в ГНЦ РФ-ФЭИ [2]. Усреднение величин  $\alpha$  и  $\nu$  проводилось в пределах 14-ти энергетических групп,  $g=0\div13$ , для которых  $f(E_g)\neq0$ . Расчеты проведены для следующих нуклидов: урана U-235, -238, нептуния Np-237, плутония Pu-238, Pu-239, -240, -241, -242, америция Am-241, -243 и кюрия Cm-242, -244, -246, -248.

С целью определения коэффициентов размножения при делении ТУЭ в спектре нейтронов РБН были проведены расчеты, аналогичные выше приведенным, но отличающиеся от них тем, что спектр нейтронов деления был замещен на стандартный спектр нейтронов, действующий в активной зоне (АЗ) быстрого реактора. Для сравнения был выбран расчетный спектр нейтронов АЗ РБН со свинцовым теплоносителем. На рис.1 приведены спектры нейтронов деления и нейтронов АЗ РБН.

# РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты выполненных расчетов приведены в табл.1, в которой наиболее известные изотопы урана и трансуранов перечислены в порядке убывания величины коэффициента размножения нейтронов на один акт деления. Рассмотренные нуклиды условно можно разбить на четыре группы.

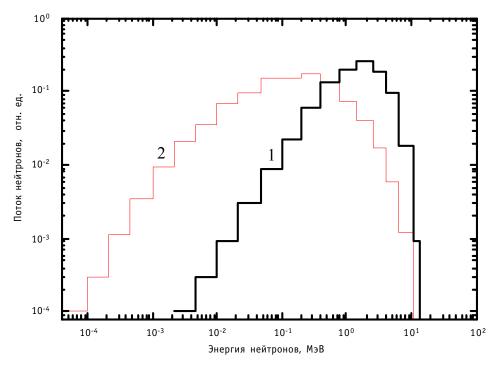


Рис.1. Спектры нейтронов деления (1) и нейтронов активной зоны РБН со свинцовым теплоносителем (2)

Таблица 1 Ядерные характеристики изотопов урана и трансуранов, усредненные по спектру нейтронов деления

Нуклид	Коэффициент размножения нейтронов						
,	ABBN-93	BROND-2	ENDF/B-VI	JEF-2	Jendl-3		
Cm-242	3.24621	3.14970	1.45172	3.18454	3.24727		
Pu-241	3.08349	3.08928	3.02882	2.82128	3.00457		
Pu-239	3.04998	3.03997	3.08220	3.03031	3.04988		
Pu-238	2.99277	2.92354	2.86231	3.18510	2.95095		
Cm-246	2.47907		0.38123	0.38123	2.56148		
U-235	2.46280	2.47356	2.46273	2.45492	2.43418		
Cm-244		2.05346	2.14511	2.35853	2.27251		
Cm-248	2.42919		2.97279	2.97279	2.59760		
Pu-240	2.37716	2.42817	2.35240	2.25599	2.24415		
Pu-242	1.27237	2.41149	1.57361	1.52313	1.54149		
Np-237	0.76978	0.75066	0.59875	0.58049	0.85192		
Am-241	0.57113	0.53582	0.52247	0.44695	0.59493		
Am-243	0.95606	0.42117	0.47491	0.24284	0.34344		
U-238	0.02882	0.00056	0.00005	0.00005	0.00005		

К первой группе можно отнести нуклиды с коэффициентом размножения нейтронов К>3. Это короткоживущий изотоп кюрия Ст-242 (162.94 дня) и изотопы плутония: Pu-241 (14.34 лет), Pu-239 (2.411·10<sup>4</sup> лет) и Pu-238 (87.74 лет). Последние находят применение в известных оружейных устройствах с неуправляемой цепной реакцией деления.

Вторую группу, характеризуемую величиной К $\cong$ 2.4-2.5, образуют делящиеся материалы, используемые в управляемых энергетических реакторах. К ним относятся, в первую очередь, изотоп урана U-235, изотоп плутония Pu-240, а также изотопы кюрия Cm-244 ( $T_{1/2}$ =18.11 лет), Cm-246 ( $T_{1/2}$ =4.73·10<sup>3</sup> лет) и Cm-248 ( $T_{1/2}$ =3.51·10<sup>5</sup> лет), нарабатываемые в малых количествах на тепловых АЭС.

Третью группу делящихся материалов составляют младшие актиниды (МА): изотоп нептуния Np-237 и два изотопа америция Am-241 и Am-243, характеризующиеся коэффициентом размножения нейтронов K $\cong$ 0.6-1.0. Эти изотопы MA представляют собой наибольшую экологическую опасность, поскольку они сравнительно хуже делятся, являются высокотоксичными долгоживущими нуклидами со временами периода полураспада от 432.2 лет для Am-241 до 2.14·10 $^6$  лет для Np-237, а их количество, нарабатываемое в единичном энергетическом реакторе, составляет до 50-100 кг/год. К этой же группе можно отнести и изотоп плутония Pu-242 с коэффициентом размножения K $\approx$ 1.3.

Табл. 1 замыкает изотоп урана U-238, который делится с сечением  $\sigma_f$ >40 мбарн в интервале первых номеров энергетических групп, от g=-1 до g=5. При g>5 его сечение радиационного захвата нейтрона  $\sigma_c$  намного превосходит сечение деления  $\sigma_f$ , в результате чего усредненный по спектру деления коэффициент размножения нейтронов падает до величины  $K\cong 0.03$ .

В табл.2 приводятся результаты выполненных расчетов коэффициентов размножения нейтронов для урана и трансуранов в условиях стандартного спектра

Таблица 2 Усредненные по спектру нейтронов АЗ РБН коэффициенты размножения нейтронов при делении ядер урана и трансуранов

Нуклид	Коэффициент размножения нейтронов					
	ABBN-93	BROND-2	ENDF/B-VI	JEF-2	Jendl-3	
Pu-241	2.6604	2.6609	2.6442	2.4781	2.5810	
Pu-239	2.4375	2.4084	2.4508	2.4282	2.4371	
U-235	2.0155	2.0162	2.0153	2.0212	1.9797	
Pu-238	1.9143	2.0397	1.7035	2.9459	1.8058	
Cm-242	1.4689	1.6161		0.9142	1.5143	
Pu-240	0.5810	0.7254	0.5175	0.4802	0.4641	
Cm-244		0.4703	0.3089	0.4168	0.4267	
Cm-246	0.3921		0.0193	0.0193	0.5091	
Cm-248	0.3585		0.5377	0.5377	0.5748	
Pu-242	0.0787	1.1755	0.1156	0.0928	0.0894	
Np-237	0.0316	0.0459	0.0254	0.0241	0.0540	
Am-241	0.0541	0.0435	0.0452	0.0404	0.0467	
Am-243	0.0085	0.0353	0.0383	0.0142	0.0238	
U-238	0.0050	0.0001	0.0001	0.0001	0.0001	

АЗ РБН. Из нее следует, что в спектре РБН нуклиды U-235, Pu-241, -239, -238, Cm-242 делятся достаточно хорошо (K>1). Что касается Pu-242, Np-237, Am-241, -243, то их коэффициенты размножения нейтронов в спектре РБН в 10-100 раз меньше, нежели в спектре нейтронов деления. Это указывает на низкую эффективность выжигания МА в стандартных спектрах РБН. Некоторое увеличение эффективности выжигания нептуния и америция, в пределах 20-30%, можно получить за счет ужестчения спектра нейтронов РБН известными способами [4] или подбором специального слабозамедляющего свинцового теплоносителя, обогащенного изотопом свинца Pb-208 [5], однако этих мер может оказаться недостаточно для приближения вплотную к спектру нейтронов деления.

Достаточно высокие коэффициенты размножения нейтронов, присущие МА в спектре нейтронов деления, К≅0.6-1.0, дают основание для рассмотрения возможности использования ядерных взрывных технологий для выжигания МА. Как известно, с 1988 г. в мире не используются ядерные взрывные технологии для мирных целей [6]. Договор о всеобъемлющем запрещении ядерных испытаний был одобрен Генеральной ассамблеей ООН в 1996 г. Вместе с тем договор окончательно не перечеркивает вопрос об использовании мирных ядерных взрывных технологий. С учетом новых научно-технических достижений и на основе консенсуса государств-участников соглашения договор позволяет рассматривать возможность получения разрешения на проведение подземных ядерных взрывов в мирных целях. В этом случае мировое сообщество могло бы получить способ уничтожения долгоживущих делящихся отходов ядерной энергетики, альтернативный глубокому захоронению радиоактивных отходов или их выжиганию в дорогостоящих ускорительно-управляемых комплексах.

#### **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

- На основе константного обеспечения БНАБ-93 и библиотек оцененных ядерных данных BROND-2, ENDF/B-VI, JEF-2 и Jendl-3 рассчитаны коэффициенты размножения нейтронов при делении трансурановых элементов нептуния, плутония, америция и кюрия в различных спектрах нейтронов. Приведены ядерные характеристики трансуранов в спектре нейтронов деления и в расчетном спектре нейтронов активной зоны быстрого реактора со свинцовым теплоносителем.
- Показано, что в спектре нейтронов деления большинство изотопов трансуранов являются хорошо делящимися ядрами с коэффициентами размножения нейтронов К≥1.
- В спектре нейтронов активной зоны РБН со свинцовым теплоносителем изотопы плутония Pu-241, -239, -238 сохраняют свои свойства умножения нейтронов на уровне K>1, в то время как младшие актиниды Np-237, Am-241,-243, а также изотоп плутония Pu-242 характеризуются существенно более низкими коэффициентами размножения нейтронов K<<1.
- Отмечена возможность использования ядерных взрывных технологий для выжигания нептуния и америция в спектре нейтронов деления.

# Литература

- 1. Абагян Л.П., Базазянц Н.О., Николаев М.Н., Цибуля А.М. Групповые константы для расчета реакторов и защиты. М: Энергоиздат, 1981. 232 с.
- 2. Мантуров Г.Н., Николаев М.Н., Цибуля А.М. Система групповых констант БНАБ-93. Ч.1. //ВАНТ, Сер. Ядерные константы. 1996. Вып.1. С. 59-98.
- 3. Дмитриевский В.П., Сергеева Н.В. Уран-238 как источник получения энергии электроядерным методом. // Краткие сообщения ОИЯИ. 1999. №5,6. С. 85-91.
- 4. *Павленко С.С., Усынина С.Г., Чирков В.А.* Влияние действующего спектра нейтронов в РБН на утилизацию плутония в безурановых твэлах // Известия вузов. Ядерная энергетика. 1997. №2. С. 67-70.
- 5. *Хорасанов Г.Л., Иванов А.П., Коробейников В.В., Блохин А.И., Шимкевич А.Л.* Свинцовый теплоноситель для быстрого реактора-выжигателя с жестким спектром нейтронов//Известия вузов. Ядерная энергетика. − 1999. №1. С. 80-84.
- 6. *Битков В., Левченко Н*. Есть ли будущее у ядерных взрывных технологий? Бюллетень ЦОИ. М.: ЦНИИатоминформ. 2000. №1. С.8-14.

Поступила в редакцию 22.08.2000

A.V. Danilytshev, D.G. Elistratov, I.A. Kuznetsov, V.Yu. Stogov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2000. – 8 pages, 5 illustrations, 3 tables. – References, 10 titles.

The role of reactivity coefficients determining the feedback on the channel «temperature-reactivity» in the unprotected accidents of fast reactors is discussed. For the reactor cores with different capacity, configuration and structure the potential opportunities of BN-type reactors in UTOP and ULOF accidents are demonstrated. It is shown that traditional oxide fuel has exhausted its opportunities for creation of perspective cores with the maximal self-protection.

#### УДК621.039.526

Influence of Calculation Accuracy of TCR Doppler Components on Substantiation of Fast Reactor Safety\
A.V. Danilytshev, V.Yu. Stogov, A.V. Tichomirov, V.A. Cherny; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering)
– Obninsk, 2000. – 7 pages, 5 illustrations, 4 tables. – References, 6 titles.

The influence of discrepancy of Doppler constant on a substantiation of safety of fast reactors is submitted in the paper. The error observed in calculations with various Russian versions of ABBN data set and diffusion codes ( $\pm 3\%$ ), as well as the maximum probable errors are discussed. Reliability of the domestic calculation instrument for obtained values is proved by comparison with the experiment on the SEFOR reactor.

#### УДК 621.039.526

Calculation-Optimization Investigations of Safety Characteristics of High Power Fast Reactors Cooled by Heavy Metals and their Alloys\V.S. Okunev; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2000. – 8 pages, 2 illustrations. – References, 3 titles.

The possibilities of achievement of inherent self-protection of high power LMFRs cooled by lead, bismuth and their alloys are examined. The different variants of layout of the core self-protection are presented. Behavior of the LMFR in the most dangerous ATWS is analyzed.

# УДК 621.039.536

Influence of Impurities of Silver, Tin and Antimony on Oxidation Potential of the Lead-Bismuth Coolant \B.A. Shmatko, A.E. Rusanov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2000. – 7 pages, 4 illustrations. – References, 9 titles.

Thermodynamics of interaction of metal impurities Ag, Sn and Sb with oxygen in an eutectic alloy lead-bismuth at temperature 500°C is investigated experimentally. Dependence of the melt Gibbs energy of concentration of each of impurities is defined by the electromotive force method.

# УДК621.039.6:539.17

Transmutation of Fission-Fragment Palladium in Blanket of Fusion Facility with Resonance Neutron Spectrum\A.E. Sintsov, V.A. Apse, A.N. Shmelev, M. Saito, V.A. Artisiyk; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2000. – 11 pages, 5 illustrations, 8 tables. – References, 9 titles.

Transmutation of a radioactive fission product - palladium without preliminary radioactivity partitioning is considered. The fission-fragment palladium transmutation is assumed to be performed in a blanket of specialized fusion facility by irradiation of palladium isotopes in resonance neutron spectrum with transformation into stable silver and cadmium isotopes. Transmutation is considered in three variants of the fusion facility: with equal-components dt-plasma, with plasma containing a diminished amount of hyzone (with ddt-plasma) and with dd-plasma, i.e. the transmutation efficiency at transition from dt-plasma to dd-plasma.

# УДК 621.039.526:621.039.59

Incineration of Transuranics in Hard Neutron Spectrum \G.L.Khorasanov, A.I.Blokhin, and V.V.Sinitsa; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2000. – 6 pages, 1 illustration, 2 tables. – References, 6 titles.

Neutron multiplication coefficients for transuranics in various neutron spectra are calculated. Corresponding neutron cross-section data are taken from the new Russian group data set ABBN-93 in comparison with the national evaluated nuclear data libraries BROND-2, ENDF/B-VI, JEF-2 and Jendl-3. It is shown that in a fission neutron spectrum without any moderation, the most of transuranics have high coefficients of neutron multiplication K≥1. In the standard fast reactor spectrum with a lead coolant some plutonium isotopes keep their high fissile features while minor actinides, Np-237, Am-241, Am-243 and plutonium isotope Pu-242 are characterized by very low coefficients of neutron multiplication, K<<1. The ways for incineration of minor actinides in hard neutron spectra are also discussed.

#### УДК 621.039.7

On Significance of Principle of Radiation Equivalence between Mined Uranium and Radiowastes Buried \A.N. Shmelev; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2000. – 5 pages. – References, 9 titles.

Significance of principle of radiation equivalence between uranium mined and radiowastes buried in study of future large scale nuclear power fuel cycle is analyzed. It is concluded that the role of this principle could be negligible in appropriate fuel cycle.

# УДК 621.643.536.24

Efficiency of Heat-Exchange of Transversally Streamlined Pipe Bundles with Different Schemes of Surface Element Location \V.T. Buglaev, A.K. Anisin, A.A. Anisin; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2000. – 10 pages, 3 illustrations, 2 tables. – References, 6 titles.

Results of experimental research of heat-aerodynamic characteristics of convective surfaces as pipe bundles of different diameters under change of their orientation angle relatively to coolant flow are given. On the basis of the analysis of the obtained data methods to increase the efficiency of pipe heat-exchange devises are offered.

#### УДК 51-74:621.039.534

Simulation of Parametric Oscillations in a Cooling System of Nuclear Reactors \K.N. Proskuryakov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2000. – 5 pages. – References, 3 titles.

The mathematical model of parametric oscillations in the two-phase coolant appearing at periodic elasticity change is developed. The relations for calculation of critical value of modulation of an acoustical compressibility of the two-phase medium when undamped oscillations of pressure and coolant consumption appear.

# УДК 621.039.517.5

Experimental Research of Temperature Fields on Inner Surface of Technological Channel of the RBMK-Reactor by Thermoscanning Method \A.I. Trofimov, I.A. Chusov, M.A. Trofimov, I.A. Shevtsov, S.P. Pashkov, V.V. Maksimovskiy, A.Ja. Ustujanin; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2000. – 12 pages, 14 illustrations, 2 tables. – References, 6 titles.

Results of experimental research of allocation of temperature on inner wall of the technological channel are given. It is shown, that the thermoscanning method allows to define change of clearance between the technological channel and graphite on change of temperature fields on the inner surface of the technological channel. The results of experiments with water and air as the coolant and different types of scanners are given.