

АНАЛИЗ ПРОЦЕССА ВЫХОДА НА РАВНОВЕСНЫЙ РЕЖИМ ТРАНСМУТАЦИИ ^{135}Cs *

В.А. Апсэ*, А.Н. Шмелев*, Г.Г. Куликов*, М. Саито, В.В. Артисюк****

** Московский государственный инженерно-физический институт
(технический университет), г. Москва*

*** Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology*



Рассматривается процесс выхода на режим равновесной трансмутации долгоживущего радионуклида ^{135}Cs в рамках двух альтернативных подходов, а, именно, с выделением ^{135}Cs из смеси изотопов элементного цезия - продукта деления и без изотопного разделения. Предлагается использовать длительность переходного периода в качестве одного из критериев целесообразности разработки и промышленного освоения технологий трансмутации радиоактивных отходов. Показано, что временная задержка с разворачиванием системы трансмутаторов ^{135}Cs может заметно сократить длительность переходного периода.

Элементный цезий, входящий в состав продуктов деления, образующихся при работе энергетических ядерных реакторов, включает изотопы, существенно различающиеся по длительности распада: стабильный ^{133}Cs , короткоживущий ^{134}Cs ($T_{1/2} = 2.06$ года), долгоживущий ^{135}Cs ($T_{1/2} = 2.3 \cdot 10^6$ лет) и среднеживущий ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30$ лет). По расчетным оценкам, отработанное топливо типичного легководного реактора, выгоревшее до 33 ГВт·сут/т и выдержанное в течение 10 лет, содержит в продуктах деления примерно 72 кг элементного цезия в расчете на ГВт(э)·год со следующим изотопным составом $^{133}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}/^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} = 0.442/0.003/0.139/0.416$.

В долговременном аспекте радиологическая опасность изотопов цезия связана только с ^{135}Cs , т.к. радионуклиды ^{134}Cs и ^{137}Cs распадаются значительно быстрее. При хранении в течение 1000 лет содержание ^{137}Cs уменьшается на 10 порядков, ^{134}Cs практически исчезает, а содержание ^{135}Cs остается в сущности неизменным. Поэтому, можно сказать, что в долговременном аспекте проблема трансмутации цезия сводится к проблеме трансмутации долгоживущего радионуклида ^{135}Cs либо после его изотопного выделения, либо без применения потенциально опасных технологий изотопного разделения радиоактивных материалов. В последнем случае трансмутация ^{135}Cs осуществляется в присутствии других изотопов цезия, которые могут играть роль паразитных поглотителей нейтронов и источников подпитки ^{135}Cs через нейтронные реакции.

Уравнения выгорания элементного цезия в системе, состоящей из ядерных реакторов, в которых изотопы цезия образуются как продукты деления, и ядерных уста-

© В.А. Апсэ, А.Н. Шмелев, Г.Г. Куликов, М. Саито, В.В. Артисюк, 1999

* Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства общего и профессионального образования РФ в рамках гранта по фундаментальным исследованиям в области ядерной техники и физики пучков ионизирующих излучений.

новок - трансмутаторов, в которых изотопы цезия уничтожаются в нейтронных реакциях, могут быть записаны следующим образом:

$$\begin{aligned}dG_{133}/dt &= Y_{133} \cdot N_f - \lambda_{133} \cdot G_{133}; \\dG_{134}/dt &= Y_{134} \cdot N_f + \lambda_{133} \cdot G_{133} - \lambda_{134} \cdot G_{134}; \\dG_{135}/dt &= Y_{135} \cdot N_f + \lambda'_{134} \cdot G_{134} - \lambda_{135} \cdot G_{135}; \\dG_{137}/dt &= Y_{137} \cdot N_f - \lambda_{137} \cdot G_{137}; \\\lambda_i &\equiv \sigma^i_{n,\gamma} \cdot \varphi + \lambda^i_{\beta}; \lambda'_i \equiv \sigma^i_{n,\gamma} \cdot \varphi;\end{aligned}$$

где G_i - количество i -го изотопа цезия; Y_i - изотопный состав элементного цезия в отработанном топливе; N_f - скорость накопления элементного цезия в ядерных реакторах с учетом выдержки отработанного топлива, кг/(ГВт(э)·год); $\sigma^i_{n,\gamma}$ - микросечение (n,γ) -реакции i -го изотопа цезия; φ - плотность потока нейтронов в трансмутаторе; λ^i_{β} - постоянная β -распада i -го изотопа цезия.

Для решений этих уравнений $G_i(t)$ характерен асимптотический выход на равновесные уровни $G_{i,eq}$ при которых скорость образования изотопов цезия в ядерных реакторах уравнивается скоростью их уничтожения в трансмутаторах. Равновесные массы изотопов определяются приравниванием нулю левой части уравнений:

$$\begin{aligned}G_{133,eq} &= N_f \cdot Y_{133} / \lambda_{133}; \\G_{134,eq} &= N_f \cdot (Y_{133} + Y_{134}) / \lambda_{134}; \\G_{135,eq} &= N_f \cdot [Y_{135} + (Y_{133} + Y_{134}) \cdot \lambda'_{134} / \lambda_{134}] / \lambda_{135}; \\G_{137,eq} &= N_f \cdot Y_{137} / \lambda_{137}.\end{aligned}$$

Длительность переходного периода (ДПП) до выхода на равновесный режим представляется важной характеристикой используемой технологии трансмутации. По существу, именно эта характеристика определяет целесообразность разработки и реализации технологии в настоящее время. Действительно, только после выхода на равновесие прекращается накопление соответствующих радионуклидов в ядерной энергетической системе. И, если ДПП для трансмутационной технологии составляет сотни или даже тысячи лет, то представляется разумным отложить разработку и развертывание этой технологии в промышленном масштабе на сопоставимый по длительности временной интервал, поскольку эти усилия потребуют значительных денежных и трудовых затрат.

Важность ДПП можно продемонстрировать на примере трансмутации изотопно-выделенного долгоживущего радионуклида ^{135}Cs . Решение уравнения выгорания для этого изотопа может быть записано в следующем виде:

$$G_{135}(t) = G_{135,eq} + [G_{135}(t_0) - G_{135,eq}] \cdot \exp(-\lambda_{135} \cdot (t - t_0)), \quad (1)$$

где $G_{135,eq} = N_f \cdot Y_{135} / \lambda_{135}$; $G_{135}(t_0)$ - количество ^{135}Cs , накопленное в системе ядерных реакторов к моменту начала трансмутации t_0 .

До трансмутации изотоп ^{135}Cs накапливается в продуктах деления практически линейно из-за очень длительного периода полураспада, т.е. $G_{135}(t_0) \approx N_f \cdot Y_{135} \cdot t_0$. Из сопоставления выражения для $G_{135,eq}$ с выражением для $G_{135}(t_0)$ следует, что равновесное количество ^{135}Cs будет накоплено в продуктах деления ядерных реакторов к моменту $t_{0,eq} = 1/\lambda_{135}$.

В других обозначениях уравнение (1) можно записать так:

$$G_{135}(t) = N_f \cdot Y_{135} \cdot [t_{0,eq} + (t_0 - t_{0,eq}) \cdot \exp(-\lambda_{135} \cdot (t - t_0))].$$

Если трансмутация будет начата в момент $t_0 = t_{0,eq}$, то $G_{135}(t) = G_{135,eq}$ при $t \geq t_{0,eq}$, т.е. равновесный режим наступит сразу же после начала трансмутации, и ДПП будет

равна времени предшествовавшего функционирования ядерной энергетической системы $t_{0,eq}$. Если трансмутация начата раньше или позже $t_{0,eq}$, то, строго говоря, выход на равновесие осуществится асимптотически, т.е. через бесконечно большой промежуток времени. Определим ДПП в этом случае как промежуток времени $T_{0.1}$, после которого количество ^{135}Cs войдет в 10%-окрестность около равновесного значения. Анализируя решение уравнения выгорания ^{135}Cs , можно показать, что

$$T_{0.1} = t_0 \text{ при } |t_0/t_{0,eq} - 1| \leq 0.1;$$

$$T_{0.1} = t_0 + t_{0,eq} \cdot \ln(10 \cdot |t_0/t_{0,eq} - 1|) \text{ при } |t_0/t_{0,eq} - 1| \geq 0.1.$$

Оценим ДПП для случая раннего начала трансмутации ^{135}Cs ($t_0 = 0$) в различных ядерных установках, используя опубликованные данные по их параметрам.

1. Легководный реактор [1].

$\sigma_{n,\gamma}(^{135}\text{Cs}) = 1.3$ барн; $\phi = 10^{14}$ н/(см²·сек).

Тогда $\lambda_{135} = 4.1 \cdot 10^{-3}$ 1/год; $t_{0,eq} \approx 240$ лет; $T_{0.1} \approx 560$ лет.

2. Активная зона быстрого реактора [1].

$\sigma_{n,\gamma}(^{135}\text{Cs}) = 0.07$ барн; $\phi = 10^{15}$ н/(см²·сек).

Тогда $\lambda_{135} = 2.2 \cdot 10^{-3}$ 1/год; $t_{0,eq} \approx 450$ лет; $T_{0.1} \approx 1040$ лет.

3. Бланкет быстрого реактора [2].

Спектр нейтронов смягчен введением в ТВС гидрида циркония $\text{ZrH}_{1.6}$ (25% по объему ТВС). В работе [2] приведена только скорость трансмутации $\lambda_{135} = 1.44 \cdot 10^{-2}$ 1/год, т.е. $t_{0,eq} \approx 70$ лет; $T_{0.1} \approx 160$ лет.

Из этих оценок следует, что трансмутация ^{135}Cs в активных зонах ядерных реакторов в настоящее время вряд ли целесообразна из-за того, что время накопления равновесной загрузки для них составляет сотни лет. Если же начать трансмутацию ^{135}Cs , не дожидаясь накопления равновесной загрузки, то ДПП будет примерно в 2 раза больше. Строительство таких реакторов-трансмутаторов приобретет смысл лишь тогда, когда их ввод установит равновесный режим и прекратит накопление ^{135}Cs , т.е. через сотни лет. Лучший из перечисленных вариантов, бланкет быстрого реактора со смягченным спектром нейтронов потребует еще примерно 30-40 лет для накопления равновесной загрузки ^{135}Cs (с учетом длительности предшествовавшей работы ядерной энергетической). Но, если начать трансмутацию ^{135}Cs в таком бланкете сейчас, то время выхода на равновесный режим отодвинется еще на 120-130 лет.

Итак, ДПП от начала накопления радионуклида в продуктах деления до выхода на равновесную трансмутацию определяет целесообразность капиталовложений в развитие и промышленное освоение соответствующей технологии в настоящий момент. Лишь технология с достаточно короткой ДПП может оцениваться как целесообразный способ трансмутации.

В этом свете трансмутация ^{135}Cs в бланкете термоядерной установки (ТЯУ) типа ITER представляется достаточно перспективной. В работах [3, 4] рассматривалась трансмутация элементного цезия в бланкете ТЯУ типа ITER, моделирующем условия жесткого и мягкого нейтронного спектра. Используя данные, приведенные в этих работах, можно оценить ДПП для трансмутации изотопно-выделенного ^{135}Cs .

1. Бланкет ТЯУ с жестким спектром (бланкет содержит сплав Pb-15%Cs).

$\sigma_{n,\gamma}(^{135}\text{Cs}) = 2.01$ барн; $\phi = 4.46 \cdot 10^{14}$ н/(см²·сек).

Тогда $\lambda_{135} = 2.83 \cdot 10^{-2}$ 1/год; $t_{0,eq} \approx 35$ лет; $T_{0.1} \approx 80$ лет.

2. Бланкет ТЯУ с мягким спектром (центральная часть бланкета, содержащая сплав Pb-15%Cs, окружена бериллием).

$\sigma_{n,\gamma}(^{135}\text{Cs}) = 3.12$ барн; $\phi = 4.76 \cdot 10^{14}$ н/(см²·сек).

Тогда $\lambda_{135} = 4.68 \cdot 10^{-2}$ 1/год; $t_{0,eq} \approx 21$ год; $T_{0.1} \approx 48$ лет.

Из этих оценок можно сделать вывод, что трансмутация ^{135}Cs в ТЯУ типа ITER уже в настоящее время могла бы осуществляться в равновесном режиме.

Теперь рассмотрим с точки зрения ДПП трансмутацию ^{135}Cs без изотопного разделения, т.е. в составе элементного цезия - продукта деления, содержащего, как уже упоминалось, наряду с ^{135}Cs , еще три изотопа: ^{133}Cs , ^{134}Cs и ^{137}Cs .

Радионуклид ^{137}Cs является наиболее трудно трансмутируемым изотопом цезия из-за очень низких сечений захвата нейтронов. Поэтому, при трансмутации ^{135}Cs без изотопного разделения элементного цезия изотоп ^{137}Cs играет роль слабого паразитного поглотителя нейтронов. Основным каналом, приводящим к заметному уменьшению количества ^{137}Cs , является его естественный радиоактивный распад, и $T_{0,1}$ для ^{137}Cs составляет около 100 лет.

Другие изотопы цезия, ^{133}Cs и ^{134}Cs играют роль не только паразитных поглотителей нейтронов, но и, что более важно, роль источников подпитки основного трансмутируемого изотопа ^{135}Cs через цепочку нейтронных реакций $^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134}\text{Cs}(n,\gamma)^{135}\text{Cs}$. Из-за этой подпитки возрастает равновесное количество ^{135}Cs . К тому же, время накопления этого количества в ядерных реакторах $t_{0,\text{eq}}(^{135}\text{Cs})$ в случае элементного цезия уже не является оптимальным моментом начала трансмутации, выводящим ее сразу на равновесный режим по ^{135}Cs . Происходит это потому, что к этому моменту будет накоплено большое количество ^{133}Cs , примерно в 3 раза большее, чем ^{135}Cs , и после начала трансмутации он будет переходить в ^{134}Cs , а затем в ^{135}Cs . Из-за этого количество ^{135}Cs сначала резко возрастет, затем, по мере выгорания ^{133}Cs , пройдет через максимум и асимптотически вернется на равновесный уровень. В результате ДПП существенно увеличится, и нейтроны в течение длительного времени будут непроизводительно расходоваться. Поэтому начинать трансмутацию ^{135}Cs в составе элементного цезия надо несколько раньше, чем $t_{0,\text{eq}}(^{135}\text{Cs})$, с тем, чтобы максимум количества ^{135}Cs в ходе трансмутации не превышал равновесного значения, а асимптотически приближался к нему.

На рис.1 приведены временные зависимости количества ^{135}Cs (в расчете на единицу мощности ядерных реакторов, где он образуется) при трансмутации в составе элементного цезия в бланкете ТЯУ типа ITER (вариант мягкого спектра) при раннем начале трансмутации ($t_0 = 0$) и при начале трансмутации через 21 год после начала работы

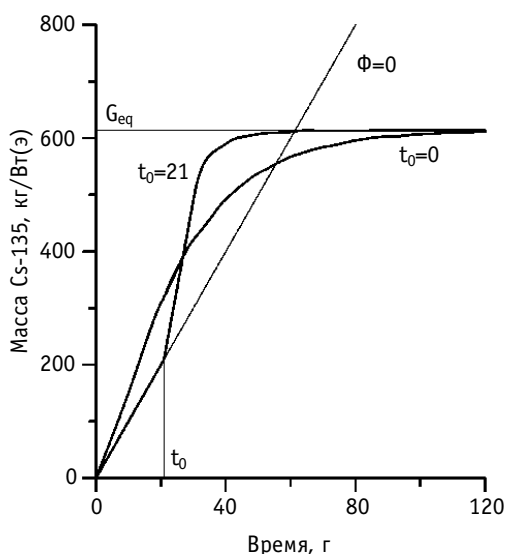


Рис.1. Трансмутация Cs-135 в бланкете ТЯУ типа ITER

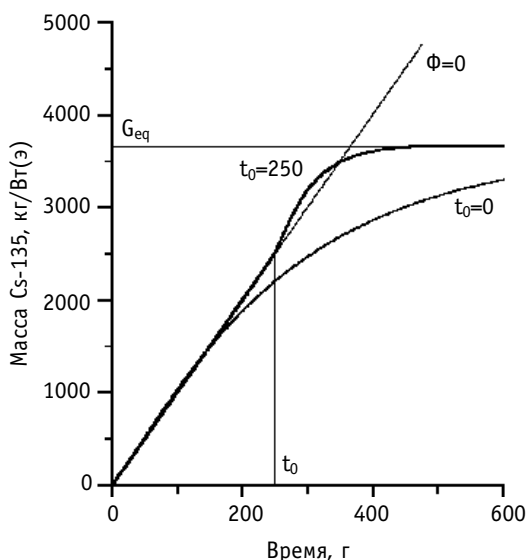


Рис.2. Трансмутация Cs-135 в активной зоне легководного реактора

ядерных реакторов. Видно, что при раннем начале трансмутации $T_{0.1}$ составляет примерно 90 лет, а при $t_0 = 21$ год полная ДПП составляет около 36 лет (15 лет после начала трансмутации), т.е. в 2.5 раза короче.

На рис.2 для сравнения приведены временные зависимости количества ^{135}Cs при его трансмутации в составе элементного цезия в активной зоне легководного реактора при раннем начале трансмутации ($t_0 = 0$) и при начале трансмутации через 250 лет после начала работы ядерных реакторов. Видно, что при раннем начале трансмутации $T_{0.1}$ составляет около 580 лет, а при $t_0 = 250$ лет полная ДПП составляет 310 лет (60 лет после начала трансмутации), т.е. примерно в 2 раза короче. Но и в этом случае ДПП трансмутации в легководном реакторе оказывается примерно на порядок продолжительнее, чем при трансмутации в бланкете ТЯУ типа ITER.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты проведенного исследования позволяют сделать следующие выводы:

1. Длительность переходного периода от начала накопления радионуклидов в ядерных реакторах до выхода на равновесный режим трансмутации является важной характеристикой трансмутационной технологии, определяющей целесообразность ее разработки в настоящее время.

2. Трансмутация ^{135}Cs в составе элементного цезия в ядерных реакторах характеризуется переходным периодом длительностью порядка сотен лет и, поэтому, является нецелесообразной в настоящее время.

3. Трансмутация ^{135}Cs в составе элементного цезия в бланкете термоядерной установки типа ITER характеризуется переходным периодом длительностью порядка 30-40 лет и, с учетом предшествовавшего периода работы ядерной энергетической системы, в принципе могла бы осуществляться в равновесном режиме уже в настоящее время.

Список литературы

1. Salvatores M., Slessarev I.S., Tchistiakov A. The transmutation of long-lived fission products by neutron irradiation// Nuclear Science and Engineering. - 1998. - V. 130. - P. 309-319.
2. Kobayashi K., Kawashima K., Ohashi M., Tohkura A., Saito M., Fujii-e Y. Applicability evaluation to a MOX fueled fast breeder reactor for a self-consistent nuclear energy system// Progress in Nuclear Energy. - 1998. - V. 32. - № 3/4. - P. 681-688.
3. Ансэ В.А., Артисюк В.В., Саито М., Шмелев А.Н. Трансмутация элементного цезия в бланкете термоядерной установки типа ITER. Трансмутация в жестком нейтронном спектре// Известия вузов. Ядерная энергетика. - 1998. - № 5. - Ч.1. - С. 54-60.
4. Ансэ В.А., Артисюк В.В., Саито М., Шмелев А.Н. Трансмутация элементного цезия в бланкете термоядерной установки типа ITER. Трансмутация в смягченном нейтронном спектре// Известия вузов. Ядерная энергетика. - 1998. - № 6. - Ч.2. - С. 36-44.

Поступила в редакцию 28.09.99.

that irradiation should be made up to burning out of 50 or 95%, then two-four cycles of radiochemical purification of ruthenium are necessary with the complete separation factor of 104 – 108 for various fields of its further application. It is shown, that the relative ^{99}Tc environmental losses are determined by the first cycle of Ru purification and should be equal to about 0.5% if permissible total losses are 1%.

УДК 621.039.51

Applicability of Accelerator-Driven Systems to Enhancement of MOX-Fuel Proliferation Resistance by Creating a Radiation Barrier \ V.B. Glebov, A.E. Sintsov, A.N. Shmelev, V.A. Apse; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 1999. – 6 pages, 1 illustration. – References, 9 titles.

The results are presented on evaluating the potential capability of an accelerator-driven system (ADS) to enhance proliferation resistance of MOX fuel sub-assemblies for power light-water reactors by short-term irradiation in the ADS blanket. Such an irradiation makes it possible to create inherent radiation barrier against unauthorized diversion and illegal use of plutonium-containing fuel.

УДК 621.039.574

An Analysis of Process of Getting Equilibrium Mode of Transmutation of ^{135}Cs \ V.A. Apse, A.N. Shmelev, G.G. Kulikov, M. Saito, V.V. Artisyuk; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 1999. – 5 pages, 2 illustrations. – References, 4 titles.

The process of getting the mode of equilibrium transmutation of the long-lived radionuclide ^{135}Cs is considered within the framework of two alternate approaches, namely with eduction ^{135}Cs from the mixture of isotopes of element caesium as the fission product and without radioactivity partitioning. It is offered to utilize duration of the transient period as one of criteria of expediency of development and industrial assimilation of technologies of the transmutation of radioactive wastes. It is shown that the time delay with unfolding of system transmutators of ^{135}Cs can noticeably reduce duration of the transient period.