

УДК 621.039.54

АНАЛИЗ ВОЗМОЖНОСТИ ПОВЫШЕНИЯ ВНУТРЕННЕЙ ЗАЩИЩЕННОСТИ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ОТ НЕКОНТРОЛИРУЕМОГО РАСПРОСТРАНЕНИЯ

А.С. Краснобаев, Э.Ф. Крючков, В.Б. Глебов, В.А. Апсэ, А.Н. Шмелев

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



Работа посвящена задаче повышения внутренней защищенности ядерных материалов от несанкционированного распространения. Исследуются возможности формирования повышенного радиационного барьера отработанных ТВС реакторов ВВЭР-1000 и ИРТ в условиях длительного хранения за счет внесения в топливо изотопных добавок.

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время возможное неконтролируемое распространение делящихся материалов рассматривается как одно из главных препятствий на пути дальнейшего широкого развития мировой ядерной энергетики. Снижение угрозы переключения ядерных материалов (ЯМ) может достигаться как внешними мерами безопасности, так и за счет создания внутренних радиационных барьеров, в том числе барьера, обеспечиваемого эмиттерами жесткого гамма-излучения.

Среди основных исследований по данной тематике необходимо отметить работу специалистов Ок-Риджской национальной лаборатории [1]. В рамках этой работы рассмотрена возможность создания повышенного радиационного барьера отработанного ядерного топлива (ОЯТ) за счет добавления в топливные композиции изотопов ^{60}Co , ^{106}Ru и ^{144}Ce , рассмотрены практические аспекты их использования, включая переработку топлива по Duplex-технологии, влияние на параметры топлива. Но введение моратория на переработку ОЯТ в США привело к свертыванию крупномасштабных исследований, посвященных вопросам использования добавок в топливе для предотвращения распространения ЯМ.

Данная работа посвящена повышению внутренней защищенности делящихся материалов, содержащихся в отработанной тепловыделяющей сборке (ТВС) реакторов ВВЭР-1000 и ИРТ (ТВС «ИРТ-ЗМ»). Исследуются возможности формирования повышенного радиационного барьера ТВС энергетических и исследовательских реакторов в условиях длительного хранения.

Облученное в реакторе топливо содержит большое количество продуктов деления, которые обеспечивают мощный, но быстро спадающий со временем радиационный барьер (рис. 1).

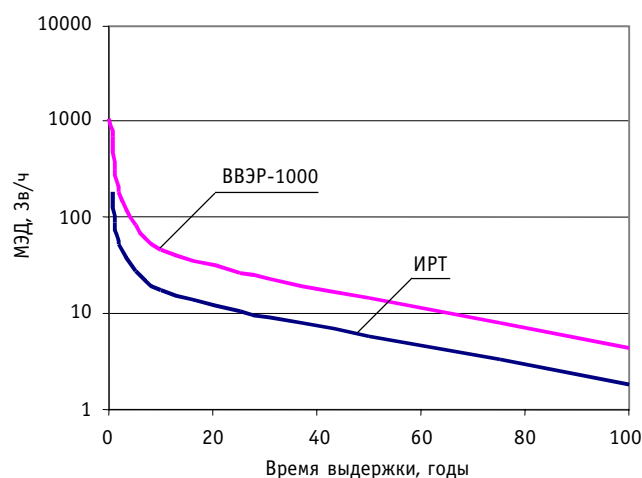


Рис. 1. Мощность эквивалентной дозы (МЭД) на расстоянии 30 см от ОТВС исследовательского реактора типа ИРТ и энергетического реактора типа ВВЭР-1000

Если рассматривать действие радиационного барьера во времени, то для его описания можно использовать следующие параметры [2]:

- уровень – минимальная МЭД на определенном расстоянии от ТВС в течение заданного временного интервала, характеризующая защищенность ЯМ, содержащихся в топливе (также уровень может быть выражен через время получения летальной дозы на определенном расстоянии от источника излучения);
- длительность – время, в течение которого МЭД превышает заданный минимальный уровень.

Для сравнительной оценки уровня действия радиационного барьера воспользуемся критериями защищенности отработанного топлива, которые были предложены в разное время Академией наук США.

1. Стандарт защищенности делящихся материалов в ОТВС, в соответствии с которым МЭД не должна быть ниже 1 Зв/ч на расстоянии 1 м от сборки (SFS_F, [4]).

2. Стандарт повышенной защищенности ядерных материалов, принятый Академией наук США в настоящее время (SFS_C, [5]). В соответствии с этим стандартом, защищенность делящихся материалов не должна быть ниже, чем средняя защищенность плутония в отработанном ядерном топливе (ОЯТ) энергетических реакторов. По оценкам [5] МЭД, создаваемая объектом с ЯМ, должна составлять не менее 20 Зв/ч на расстоянии 30 см от него.

МЭД от ОТВС рассматривается как основная характеристика внутреннего радиационного барьера. Причем, в данной работе все рассчитанные значения МЭД относятся к расстоянию 30 см от ТВС. Защищенность ядерных материалов удобно также выражать в терминах времени T получения фиксированной дозы γ -излучения, которое определяется как

$$T_{Dose} = \frac{Dose}{МЭД} \cdot 60, \quad (1)$$

где $Dose$ – выбранная доза γ -излучения, Зв; T_{Dose} – время получения дозы, мин; МЭД – мощность эквивалентной дозы на расстоянии 30 см от ОТВС, Зв/ч.

Воздействие γ -излучения на человека анализируется с помощью двух граничных значений доз облучения:

1. Доза $SD = 1$ Зв. При облучении человека в дозах от SD и выше (в течение времени от нескольких секунд до 3 сут) возникает развернутый симптомокомплекс ост-

рой лучевой болезни [3]. Тогда в соответствии с формулой (1) для стандарта защищенности SFS_F T_{SD} (ИРТ-3М) ≈ 8 мин, а T_{SD} (ТВС ВВЭР-1000) ≈ 20 мин.

2. Доза $LD = 4,5$ Зв, получение которой приводит к смертельному исходу в 50% случаев [1, 3]. По формуле (1) определяем, что стандарту защищенности SFS_C соответствует время получения LD -дозы T_{LD} (ИРТ-3М) = T_{LD} (ТВС ВВЭР-1000) $\approx 13,5$ мин.

Можно заключить, что стандарты защищенности делящихся материалов в ОТВС: SFS_F и SFS_C соответствуют кратковременному получению SD - и LD -доз.

Пользуясь описанными выше стандартами защищенности ЯМ – SFS_F , SFS_C , можно оценивать длительность действия радиационных барьеров. В табл. 1 приведены оценки длительности действия радиационных барьеров ОТВС легководного и исследовательского реакторов по критериям SFS_F и SFS_C . Общий вывод, вытекающий из приведенных в табл. 1 данных, заключается в недостаточной защищенности ЯМ по стандарту SFS_C при длительном (> 25 лет) хранении ОТВС. В первую очередь это касается ОТВС исследовательских реакторов, где недостаточная защищенность фиксируется даже по менее жесткому критерию SFS_F .

Таблица 1

Длительность (годы) действия радиационного барьера с МЭД $\geq SFS_F$ и МЭД $\geq SFS_C$ для ОТВС энергетического и исследовательского реакторов

	SFS_C	SFS_F
ВВЭР	36	117
ИРТ	4	20

Таким образом, длительное хранение ОТВС приводит к резкому возрастанию уязвимости ЯМ по отношению к несанкционированным действиям с ними. Снижение угрозы возможно либо за счет оперативного осуществления переработки ОЯТ, либо за счет использования топлива с улучшенными параметрами внутренней защищенности, например, с повышенным радиационным барьером. Учитывая, что в настоящее время программы развития переработки ОЯТ связывают с крупными международными технологическими центрами [6], создание которых потребует значительного времени, в работе рассматривается вариант хранения ОЯТ с повышенными внутренними защитными свойствами.

В связи с этим была сформулирована задача: проанализировать возможности улучшения параметров радиационных барьеров ОТВС путем внесения изотопных добавок в свежее топливо энергетических и исследовательских реакторов. В качестве объекта исследования выбраны ТВС реактора ВВЭР-1000 и ТВС ИРТ-3М. Для основных расчетов использовался программный комплекс SCALE 4.3 [7], позволяющий проводить анализ радиационных характеристик ОЯТ легководных систем (в том числе МЭД от облученной ТВС, содержания γ -активных нуклидов в различные моменты времени и другие параметры).

ВЫБОР ИЗОТОПОВ ДЛЯ УЛУЧШЕНИЯ ПАРАМЕТРОВ РАДИАЦИОННОГО БАРЬЕРА ОТВС ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО РЕАКТОРА

Покомпонентный анализ радиационного барьера ОТВС легководного реактора типа ВВЭР-1000

Первый этап анализа включал определение компонентов радиационного барьера ОТВС:

а) дающих основной вклад в МЭД при хранении в течение 25 лет и более;

б) потенциально способных продлить действие радиационного барьера при длительном хранении.

С этой целью на основе параметров активной зоны и ТВС реактора ВВЭР-1000 [7] были составлены модели микро- и макроячеек, необходимые для формирования файла исходных данных программы SCALE 4.3. С помощью этой программы выполнены расчеты изотопного состава топлива после его выгрузки из реактора (для десятисуточной выдержки). Исходя из условия повышения уровня радиационного барьера при хранении более 25 лет, из перечня изотопов, входящих в состав выгруженного топлива, выбраны среднеживущие и некоторые короткоживущие γ -активные изотопы. Этот список был дополнен нуклидами из справочных изданий [9] и научных публикаций [1]. Итоговый исходный список изотопов – источников γ -излучения включал в себя следующие изотопы: ^{231}Pa ; ^{232}U ; 236 , 238 , 239 , 240 , ^{241}Pu ; 241 , $^{242\text{m}}$, ^{243}Am ; 243 , 244 , 245 , ^{246}Cm ; ^{249}Bk ; 249 , 250 , 251 , ^{252}Cf ; ^{90}Sr ; ^{94}Nb ; ^{106}Ru ; ^{125}Sb ; 134 , ^{137}Cs ; ^{144}Ce ; ^{147}Pm ; ^{151}Sm ; 152 , 154 , ^{155}Eu , которые рассматривались как кандидаты для дальнейшего анализа радиационного барьера ОТВС.

Для изотопов исходного списка с помощью комплекса SCALE 4.3 вычислены вклады в общую МЭД от ТВС. Как и ожидалось, при длительном хранении ОТВС основной вклад в МЭД дает изотоп ^{137}Cs .

Среди других анализируемых изотопов интерес представляли те из них, добавление которых в топливо могло бы продлить действие исходного радиационного барьера.

Исходя из этого, была выбрана группа изотопов, относящихся к актинидам, а также ^{94}Nb , для которых МЭД возрастает или остается почти постоянной со временем (рис. 2 и 3 соответственно). Как видно, при концентрациях, соответствующих содержанию в ОЯТ, их вклады невелики. Но на данном этапе (б) анализа компонентов общей МЭД не принималась во внимание сама величина вклада. Учет величины вкладов от изотопов осуществлялся на следующем этапе исследования.

В дополнение к ^{137}Cs рассмотрены другие изотопы, относящиеся к продуктам деления: ^{90}Sr , ^{106}Ru , ^{144}Ce , ^{152}Eu , ^{154}Eu и ^{155}Eu . Несмотря на существенно меньший (по сравнению с актинидной группой) период полураспада, эти изотопы являются полноценными кандидатами для увеличения длительности действия радиационного барьера. Также особо следует отметить стабильный изотоп ^{59}Co , который в результате нейтронного захвата в процессе облучения топлива превращается в высокоактивный ^{60}Co .

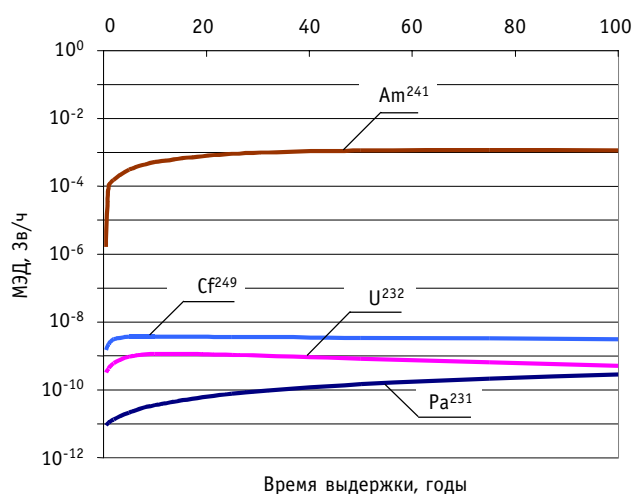


Рис. 2. МЭД, создаваемая ^{231}Pa , ^{232}U , ^{241}Am и ^{249}Cf в ОТВС ВВЭР-1000 как функция времени выдержки

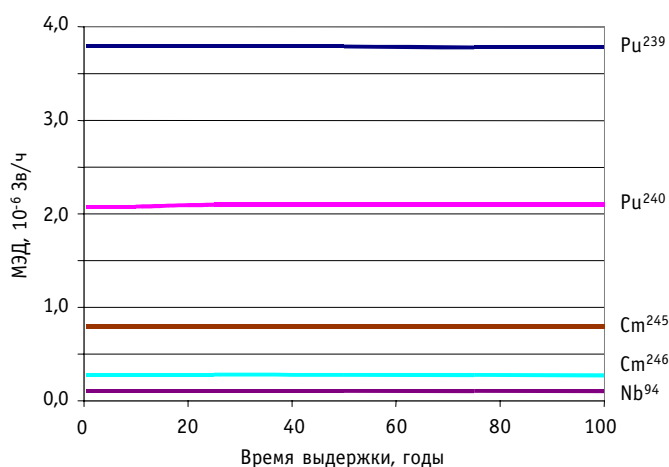


Рис. 3. МЭД, создаваемая ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{245}Cm , ^{246}Cm и ^{94}Nb в ОТВС ВВЭР-1000 как функция времени выдержки

Таким образом, оценка полученных данных по составу и радиационным характеристикам изотопов-компонентов облученного топлива реактора ВВЭР-1000 позволила выделить 17 изотопов, относящихся к долгоживущим актинидам, продуктам деления и легким элементам. Эти изотопы представляют потенциальный интерес с точки зрения повышения защищенности делящихся материалов в ОЯТ при длительном хранении и требуют дальнейшего анализа их влияния на улучшение параметров радиационного барьера.

Оценка потенциала нуклидов по продлению действия радиационного барьера ОТВС ВВЭР-1000

Для оценки потенциала нуклидов осуществлялось небольшое изменение нуклидного состава свежего топлива, а также оценивалось изменение МЭД от ТВС реактора ВВЭР-1000 при длительных выдержках. Вариация состава подразумевала добавление в состав топлива каждого из отобранных нуклидов в относительно небольшом количестве (0,2% т.а.). Для всех топливных составов были рассчитаны МЭД от облученных ТВС в течение 100-летнего периода хранения.

Применение этой процедуры показало, что лишь половина (для SFS_F менее половины) рассматриваемых нуклидов способна увеличить время действия барьера на уровне не менее рассматриваемых стандартов в течение как минимум нескольких лет. В табл.2 указаны эти изотопы и приведены оценки длительности действия радиационных барьеров при их добавлении в свежее топливо.

Для анализа действия радиационного барьера на заданном уровне удобно представить эффект от добавления изотопов в топливо в виде зависимости продления действия барьера от времени получения летальной дозы (рис. 4). Можно сделать вывод, что для продления действия высоких барьеров, характеризующихся малым временем получения летальной дозы ($T_{LD} \leq 13$ мин), могут быть использованы ^{232}U , ^{137}Cs , ^{152}Eu и ^{59}Co . Остальные изотопы не дают существенного вклада в продление из-за малости величин γ -активности и/или периода полураспада. Причем указанные изотопы европия и кобальта могут быть использованы лишь для кратковременного повышения защищенности (не более 10 лет).

Если же говорить о продлении действия невысоких радиационных барьеров ($T_{LD} > 15$ мин), то можно выделить лишь два изотопа ^{232}U и ^{137}Cs . В этом случае изотопы ^{152}Eu и ^{60}Co выпадают из рассмотрения в силу малости величин периодов полураспада (периоды полураспадов этих изотопов в 8,8 и 22,2 раз соответственно меньше

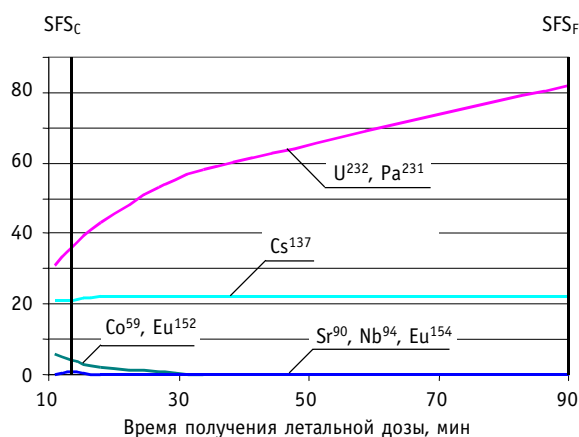
Таблица 2

Длительность действия радиационного барьера (годы) для двух уровней SFS, создаваемого ОТВС энергетического реактора при отсутствии и при введении в свежее топливо изотопных добавок

	SFS _C	SFS _F
Без добавки	36	117
c ²³¹ Pa	72	199
c ²³² U	72	199
c ⁹⁰ Sr	37	118
c ¹³⁷ Cs	57	139
c ⁹⁴ Nb	37	119
c ⁵⁹ Co	39	117
c ¹⁵² Eu	40	117
c ¹⁵⁴ Eu	37	117

рассматриваемой длительности действия радиационного барьера – 117 лет).

Следует отметить, что радиационный барьер ²³²U определяется, прежде всего, содержанием ²²⁸Th, продуктом его α-распада.


Рис. 4. Зависимость времени продления действия радиационного барьера от T_{LD}

ВЫБОР ИЗОТОПОВ ДЛЯ УЛУЧШЕНИЯ ПАРАМЕТРОВ РАДИАЦИОННОГО БАРЬЕРА ОТВС ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО РЕАКТОРА

На основе параметров ТВС ИРТ-3М [10, 11] была составлена модель ТВС для расчета по программе SCALE 4.3.

При рассмотрении возможности продления действия радиационного барьера ОТВС ИРТ-3М решались две последовательные задачи. Первая из этих задач повторяла постановку задачи предыдущего раздела (2.2), а именно:

Задача 1. Оценить влияние малых добавок отдельных нуклидов в свежее топливо на изменение МЭД, создаваемой облученной ТВС ИРТ-3М, при длительном хранении.

Для решения этой задачи была проведена вариация топливных композиций путем добавления в состав топлива каждого из следующих изотопов: ²³²U, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ⁹⁴Nb, ⁵⁹Co, ¹⁵²Eu и ¹⁵⁴Eu (в количестве 0,2% т.а.). Для всех топливных составов были

рассчитаны МЭД на расстоянии 30 см от облученных ТВС в течение 100-летнего периода хранения.

Однако результаты расчетов показали, что использование добавок в данных количествах дает относительно небольшое усиление радиационного барьера. Увеличение длительности действия барьера на уровне SFS_F представлено в табл. 3. Оно варьируется в пределах 10-20% от величины длительности.

Таблица 3

Длительность действия радиационного барьера на уровне SFS_F , создаваемого ОТВС ИРТ-3М при отсутствии и при введении в свежее топливо изотопных добавок

	Длительность, годы	Продление, годы
Без добавки	20	—
c ^{59}Co	22	2
c ^{137}Cs	24	4
c ^{152}Eu	22	2
c ^{154}Eu	22	2
c ^{94}Nb	23	3
c ^{90}Sr	22	2
c ^{232}U	24	4

Полученные результаты говорят о недостаточном влиянии принятых добавок (в количестве 0,2% т.а.) на величину и длительность действия радиационного барьера.

Задача 2. Определить минимальные концентрации вносимых в топливо изотопов, обеспечивающих действие радиационного барьера в течение определенного периода времени на уровне не менее заданного.

Для численного решения задачи 2 рассматривались два уровня радиационного барьера SFS_F и SFS_C . Если принять, что уровень радиационного барьера должен соответствовать SFS_F , а его длительность должна равняться 100 годам, то, как показали расчеты, для такого продления могут быть использованы лишь два изотопа: ^{137}Cs (5,2% т.а.) и ^{232}U (15% т.а.). Несмотря на значительное процентное содержание, количество ^{232}U в ТВС ИРТ-3М невелико и соответствует 20,3 г. Высокое содержание ^{137}Cs связано с тем, что длительность действия радиационного барьера, равная 100 годам, значительно превосходит период полураспада ^{137}Cs . Его использование в качестве топливной добавки целесообразно, когда рассматривается длительность действия радиационного барьера сопоставима с периодом полураспада ^{137}Cs .

Численное решение задачи 2 для высокого радиационного барьера (SFS_C) показало, что увеличение длительности до 40 лет приводит к повышению содержания ^{232}U и ^{137}Cs до 6,1% и 7,9% соответственно. Дальнейшее продление не представляется целесообразным, ввиду больших расходов изотопов для поддержания высокого радиационного барьера.

Содержания изотопных добавок в свежем топливе, необходимые для продления действия SFS_C -барьера от 25 до 40 лет приведены в табл. 4. Видно, что хотя длительные сроки действия барьера ($\geq SFS_C$) можно получать за счет добавления различных изотопов, однако, даже для обеспечения 25-летнего срока действия требуются значительная доля ^{152}Eu и чрезмерно большая — ^{59}Co . Это обстоятельство связано с небольшими периодами полураспада ^{152}Eu и ^{60}Co по сравнению с рассматриваемыми временными периодами. Тем не менее, содержания изотопов ^{232}U и ^{137}Cs , периоды полураспада которых сопоставимы или превышают рассматриваемые длительности действия радиационного барьера, остаются в пределах 5% т.а.

Таблица 4

Содержания топливных добавок, необходимых для продления действия SFS_c-барьера

Длительность, лет	Изотопы	Доля изотопа, % т.а.
25	²³² U	4,5
	⁵⁹ Co	34,8
	¹³⁷ Cs	4,8
	¹⁵² Eu	10,4
30	²³² U	5,0
	¹³⁷ Cs	5,7
	¹⁵² Eu	16,5
40	²³² U	6,1
	¹³⁷ Cs	7,9

ВЛИЯНИЕ ТЕХНОЛОГИЙ ПЕРЕРАБОТКИ НА УСТОЙЧИВОСТЬ РАДИАЦИОННЫХ БАРЬЕРОВ ОТВС

В настоящее время переработка ОЯТ включает ряд последовательных технологических операций, выполняемых после этапа хранения ОЯТ в приреакторных или пристанционных бассейнах выдержки, и базируется на водных технологиях, использующих разновидности PUREX-процесса [12].

Водные технологии типа PUREX достаточно сложны и, как правило, завершаются получением высокочистых делящихся материалов (включая чистый плутоний, отделенный от урана и продуктов деления), а также образованием больших объемов жидких РАО с высокой удельной и суммарной активностью.

Помимо водных технологий, активно развиваются неводные (сухие) методы переработки топлива. Они считаются технологически более простыми, чем PUREX-процесс, и их использование снижает темпы накопления РАО. Их преимущество с точки зрения нераспространения заключается в том, что сухие методы переработки, как правило, не приводят к получению высокочистых делящихся материалов. Сухие технологии переработки ОЯТ осуществляются при высоких температурах, что сопряжено с удалением легколетучих продуктов деления (ЛПД). Среди сухих технологий, прежде всего, следует отметить технологию сухой переработки, разработанную в ФГУП «ГНЦ РФ НИИАР», и DUPIC-технологию.

Переработка топлива на основе пироэлектрхимической переработки, разработанной в НИИАР [13], включает процессы вакуумно-термической обработки, растворения ОЯТ в расплаве солей, проведение электролиза, сбор и удаление вышедших из топлива продуктов деления.

DUPIC-технология [14] предполагает рефабрикацию ОТВС реакторов PWR в свежее ТВС реакторов CANDU. Схема процесса включает следующие основные этапы:

- расчехловка и разбор ОТВС;
- снятие оболочек твэлов путем окисления на воздухе при температуре 400–450°C;
- превращение топливных таблеток в порошок, что достигается чередованием окислительных и восстановительных реакций по технологии OREOX-процесса: при этом из ОЯТ уходит основная масса ЛПД;
- изготовление топливных таблеток, твэлов и ТВС для реакторов CANDU.

В отмеченных выше технологиях топливо подвергается термической обработке, в результате которой из него удаляются элементы, относящиеся к группе ЛПД. Полностью удаляются Ru и Tc, а также на 98% Kr, I, Xe и Cs [15].

Рис. 5, 6, а также данные табл. 5 показывают, что удаление этих элементов из ОЯТ приводит к резкому уменьшению МЭД. В первую очередь, это связано с удалением

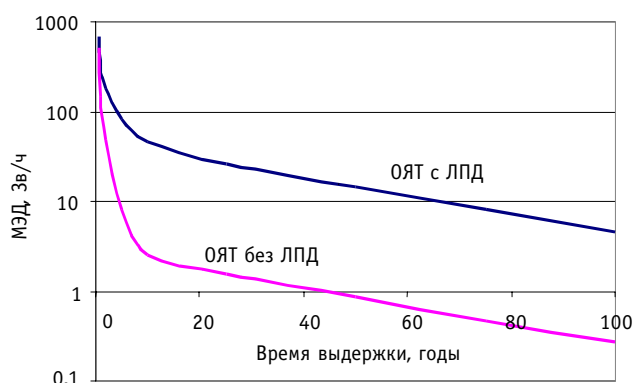


Рис. 5. Зависимость МЭД от времени выдержки для ОЯТ реактора ВВЭР-1000

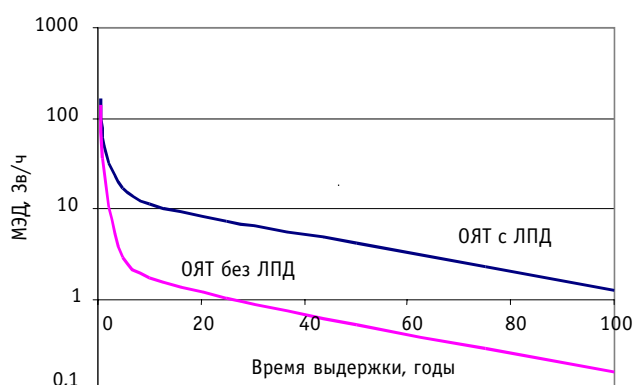


Рис. 6. Зависимость МЭД от времени выдержки для ОЯТ ИРТ-3М

из топлива ^{137}Cs , дающего основной вклад в МЭД. Выход ЛПД из ОЯТ приводит также к многократному сокращению длительности действия радиационного барьера на уровнях SFS_F и SFS_C (табл. 6) и, следовательно, ОЯТ быстро превращаются в объекты, уязвимые по отношению к несанкционированным действиям.

Таблица 5

Снижение радиационного барьера при удалении ЛПД из ОЯТ энергетического и исследовательского реакторов

Время выдержки, годы	МЭД(-ЛПД) / МЭД* для ОЯТ ИРТ-3М		МЭД(-ЛПД) / МЭД* для ОЯТ ВВЭР-1000	
	Без добавок	5% ^{232}U	Без добавок	0,2% ^{232}U
0,5	0,83	0,83	0,71	0,71
1	0,59	0,67	0,45	0,48
2	0,32	0,53	0,26	0,32
5	0,17	0,59	0,10	0,27
10	0,15	0,67	0,07	0,34
25	0,14	0,71	0,06	0,43
50	0,13	0,77	0,06	0,53
75	0,12	0,83	0,06	0,59
100	0,12	0,83	0,05	0,67

* МЭД(-ЛПД) / МЭД – отношение МЭД ОЯТ без учета вклада от ЛПД к МЭД ОЯТ.

Таблица 6

Длительность действия радиационного барьера (годы) при наличии и при удалении ЛПД из ОЯТ

	ТВС ИРТ-3М		ТВС ВВЭР-1000	
	Топливо с ЛПД	Топливо без ЛПД	Топливо с ЛПД	Топливо без ЛПД
SFS _F	20	2,5	117	9
SFS _C	4	1	36	3

Таким образом, можно заключить, что широкое распространение сухих методов переработки ОЯТ, с одной стороны, ограничивает возможности получать высокочистые делящиеся материалы и позволяет перерабатывать высокоактивные материалы, а с другой – они представляют собой относительно простые технологические инструменты для существенного снижения уровня защитного радиационного барьера ОЯТ энергетических и исследовательских реакторов.

Одним из направлений повышения устойчивости радиационного барьера ОТВС длительного хранения к операциям с термической обработкой топлива (которая входит в технологии сухой переработки) является модифицирование состава свежего топлива путем внесения специальных изотопных добавок. В этом отношении следует выделить изотоп ^{232}U . Как видно из табл. 5 радиационный барьер при его добавлении в топливо становится устойчивым к высокотемпературным процессам переработки.

Поскольку ^{232}U неотделим от основной массы урана при химической переработке ОЯТ, а содержание продуктов его распада слишком мало, чтобы отделить их существующими технологиями, то радиационный барьер, создаваемый ^{232}U , сохранится и после переработки ОЯТ [16]. Даже если предположить возможность удаления ^{228}Th ($T_{1/2} = 1,9$ года) и остальных изотопов цепочки распада ^{232}U , обладающих существенно более короткими периодами полураспада, то радиационный барьер сравнительно быстро восстанавливается – уже через 2 мес. МЭД превысит 10% от максимальной величины [17].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Длительное хранение ОТВС приводит к резкому возрастанию уязвимости ЯМ по отношению к несанкционированным действиям с ними. В связи с этим рассмотрена возможность повышения его радиационной защищенности в условиях длительного хранения. На примере ТВС энергетического реактора ВВЭР-1000 и ТВС ИРТ-3М исследовательского реактора проанализирована возможность улучшения параметров радиационных барьеров путем внесения изотопных добавок в свежее топливо.

Оценка потенциала различных изотопов по увеличению длительности действия радиационного барьера ОЯТ ВВЭР-1000 позволила выделить следующие изотопы:

- при продлении действия высокого ($\geq \text{SFS}_C$) радиационного барьера ОТВС могут быть использованы ^{232}U , ^{137}Cs , ^{152}Eu и ^{59}Co ; причем, существенное (> 20 лет) продление достигается с помощью первых двух изотопов;
- если же говорить о продлении действия барьера на уровне $\geq \text{SFS}_F$, то пригодными оказываются два изотопа ^{232}U и ^{137}Cs .

Для ТВС ИРТ-3М были определены минимальные концентрации вносимых в топливо изотопов, обеспечивающих заданный уровень и период действия радиационного барьера. При ориентировании на уровень защищенности SFS_F лишь изотопы ^{232}U и ^{137}Cs позволяют продлевать действие радиационного барьера до 100 лет и более. Создание высокого ($\geq \text{SFS}_C$) радиационного барьера в течение 100 лет для ТВС ИРТ-

ЗМ представляется затруднительным, ввиду малости массогабаритных характеристик (по сравнению с ТВС энергетического реактора), но уровень защищенности SFS_c можно поддерживать в течение 40 лет путем введения изотопов ^{232}U и ^{137}Cs в количестве до 6–8% т.а.

Таким образом, установлено, что наиболее перспективными изотопами для повышения защищенности ОЯТ являются ^{232}U и ^{137}Cs . Однако следует отметить, что барьер, создаваемый за счет добавления ^{137}Cs , является весьма уязвимым по отношению к термическому воздействию, что связано с высокой летучестью цезия. В работе [1] этот изотоп также исключен из рассмотрения из-за малой температуры кипения и высокой подверженности коррозии. Вследствие этого в качестве основного приоритетного изотопа можно рассматривать ^{232}U . В пользу выбора этого изотопа говорят также и другие обстоятельства, в том числе его химическая неотделимость от основной массы уранового топлива, а также временное поведение γ -активности.

Литература

1. *Selle J.E. et al.* Technical consideration of the use of nuclear fuel spikants for proliferation deterrence//Nuclear Technology. – 1979. – V. 45. – P. 269-286.
2. *Kryuchkov E.F., Glebov V.B., Apse V.A., Shmelev A.N., Saito M., Artisyuk V.V.* A study on High-Intensity Radiation Protection of MOX-Fuel Doped with Protactinium/ PHYSOR-2004 – The Physics of Fuel Cycle and Advanced Nuclear Systems: Global Developments. Chicago, Illinois, April 25-29, 2004, on CD-ROM, American Nuclear Society. Lagrange Park, IL. (2004).
3. *Ярмоненко С.П., Вайнсон А.А.* Радиобиология человека и животных. – М.: Высшая школа, 2004.
4. National Academy of Sciences, Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium. – Washington, D.C., 1994.
5. The Spent-Fuel Standard for Disposition of Excess Weapon Plutonium: Application to Current DOE Options. – National Academy Press, 2000.
6. *Полужтов П.П.* Многосторонние подходы к ЯТЦ: гарантии нераспространения и гарантии поддержки атомной энергетики/Тр. Международной конф. «Многосторонние технические и организационные подходы к ядерному топливному циклу для укрепления режима нераспространения» (Москва, Россия, 13-15 июля 2005).
7. SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation, NUREG/CR-0200, ORNL/NUREG/CSD-2/R5, Oak Ridge, January 1997.
8. *Колобашкин В.М., Рубцов П.М., Ружанский П.А., Сидоренко В.Д.* Радиационные характеристики облученного ядерного топлива: Справочник. – М.: Энергоатомиздат, 1983. – 384 с.
9. *Бабичев А.П., Бабушкина Н.А., Братковский А.М. и др.* Физические величины: Справочник/Под ред. И.С. Григорьевой, Е.З. Мейлихова. – М.: Энергоатомиздат, 1991. – 1232 с.
10. *Гончаров В.В., Глухов А.М., Егоренков П.М. и др.* Создание ТВС типа ИРТ-ЗМ для бассейновых реакторов и опыт их использования/В сб.: Труды совещания специалистов по обмену опытом реконструкции исследовательских реакторов в странах-членах СЭВ. – М.: Государственный комитет по использованию АЭ СССР, 1984. – С. 270-301.
11. ТВС ИРТ-ЗМ, исследовательское ядерное топливо. <http://www.nccp.ru/ir/irt-3m.html> (10 апреля 2006г.).
12. *Короткевич В., Кудрявцев Е.* Технология и безопасность обращения с облученным ядерным топливом в Российской Федерации/Бюллетень по атомной энергии. – 12/2002. – С. 24-28.
13. *Абагян А.А., Селезнев Е.Ф., Иванов В.Б.* Возможность использования реакторов типа БН-600 и БН-800 в замкнутом топливном цикле с пироэлектрохимической переработкой топлива/Материалы международной научно-технической конф. «Атомная энергетика и топливные циклы» (1-5 декабря 2003 г., Москва–Дмитровград).
14. *Апсэ В.А., Шмелев А.Н.* Разработка и перспективы использования DUPIC-технологии//Атомная техника за рубежом. – 2002. – № 8. – С. 11-17.
15. Heavy Water Reactors: Status and Projected Development//Technical Report Series. – № 407, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2002. http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/TRS407_scr/D407_start.pdf (10 мая 2006 г.).

16. Лебедев В.А. Оценка эффективности электрохимического разделения урана и тория в расплавленных хлоридах на жидкометаллических электродах//Электрохимия. – 1978. – Т. 14. – № 5.
17. *Benedict M., Pigford T.H., Levi H.W.* Nuclear Chemical Engineering (Second Edition), McGraw-Hill, Boston, 1981. – P. 383.

Поступила в редакцию 11.09.2006