

УДК 621.039.51

УВЕЛИЧЕНИЕ БАРЬЕРА ПРОТИВ НЕСАНКЦИОНИРОВАННОГО РАСПРОСТРАНЕНИЯ ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ ЧЕРЕЗ НАКОПЛЕНИЕ ДОЗЫ ИЗЛУЧЕНИЯ ОТ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ГАММА-ЭМИТТЕРОВ

А.И. Дьяченко*, В.В. Артисюк, С.Н. Филимонов****

**Обнинский институт атомной энергетики НИЯУ МИФИ, г. Обнинск,*

***Негосударственное образовательное учреждение «Центральный институт
повышения квалификации», г. Обнинск, Россия*



Проводится анализ радиационных барьеров, направленных на уменьшение привлекательности трансурановых материалов с точки зрения распространения. Барьер формируется посредством допинга редкоземельных гамма-эмиттеров, для выбора которых производится анализ ядерно-физических свойств, включая их особенности накопления при облучении топлива ядерных реакторов. Рассмотрены и сформулированы необходимые количественные требования к присутствию примесей изотопов группы лантаноидов для формирования барьеров с учетом существующих критериев оценки защищенности.

Ключевые слова: нераспространение, доза излучения, редкоземельные элементы.

Keywords: nonproliferation, dose rate, rare earth.

ВВЕДЕНИЕ

Проблема несанкционированного распространения ядерных материалов является одним из основных сдерживающих факторов широкого внедрения ядерных технологий в развивающиеся страны. До сих пор помимо институциональных мер традиционным барьером распространению являлась так называемая денатурация ядерных материалов, под которой понимается прежде всего изотопная защита ключевых оружейных ядерных материалов. Для урана денатурация представляет собой защиту изотопа ^{235}U изотопом ^{238}U , т.е. вовлечение урана в ядерную энергетику происходит в виде использования низкообогащенного топлива. Для плутония денатурация означает увеличение в его изотопном векторе доли четных изотопов ^{238}Pu и ^{240}Pu , повышающих внутреннее энерговыделение (относится к изотопу ^{238}Pu), и нейтронный источник спонтанного деления (характерно для обоих изотопов). К настоящему времени уже имеются количественные характеристики

защищенности указанных оружейных материалов. Так, для урана обогащение ниже 20%, согласно рекомендациям МАГАТЭ, позволяет идентифицировать его как материал непрямого назначения [1]. Содержание ^{238}Pu 6–8% приводит к расплавлению химической взрывчатки в устройстве имплозивного типа, поэтому он предлагается в виде количественного критерия защищенности плутония [2]. Для минорных актинидов подобных количественных критериев еще не существует, хотя некоторые из них, например, нептуний, являются довольно уязвимыми с точки зрения распространения. Его критическая масса без отражателя составляет 70 кг [3], что почти на порядок меньше чем для урана с 20-процентным обогащением и всего лишь в 1.4 раза больше, чем чистого ^{235}U . После выгрузки из реактора нептуний оказывается в виде моноизотопа ^{237}Np , не способного к традиционной изотопной денатурации.

Развиваемая с 1960-х гг. неводная технология переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) в настоящее время получила новое положительное качество именно с точки зрения защиты против распространения [4]. Неглубокая очистка урана и трансурановых элементов от продуктов деления (ПД), характерная для нее, приводит к неизбежным примесям ПД, которые могут существенно снижать привлекательность ядерных материалов (ЯМ) для их немирного использования. Известен факт сходства химических свойств редкоземельных (РЗЭ) и трансурановых элементов. Радиационный барьер РЗЭ, таким образом, может оказаться существенным фактором, защищающим тяжелые металлы от несанкционированного использования. Среди недавних исследований в этой области уместно отметить работу [5], в которой рассматриваются вопросы увеличения мощности дозы от референтных количеств трансурановых элементов с примесями изотопа ^{144}Ce (0.78 лет), распад которого приводит к образованию ^{144}Pr (17.3 мин) – эмиттера высокоэнергетического гамма-излучения. Однако период полураспада ^{144}Ce составляет всего 0.78 года; таким образом, создаваемый им радиационный барьер носит краткосрочный характер.

Целью работы является исследование количественных характеристик допинга редкоземельных элементов в нептуний и смесь трансурановых элементов, создающих долгосрочный радиационный защитный барьер против несанкционированного распространения. Дается анализ ядерно-физических свойств РЗЭ гамма-эмиттеров, включая особенности их накопления при облучении топлива ядерных реакторов; определяются количественные характеристики их допинга, приводящие к защищенности.

ХАРАКТЕРИСТИКИ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ГАММА-ЭМИТТЕРОВ

Для создания барьера против несанкционированного распространения следующие характеристики являются определяющими:

- период полураспада изотопа (не должен быть мал по сравнению со временем переработки и транспортировки ЯМ);
- энергия гамма-квантов (должна быть значительной для обеспечения высокой проникающей способности);
- выход в процессе деления.

В таблице 1 приведены характеристики подходящих для создания защитного барьера РЗЭ гамма-эмиттеров в сравнении с изотопом ^{137}Cs , который практически находится на пике выхода тяжелых осколков от всех основных делящихся материалов. Низкое сечение захвата нейтронов и жесткое гамма-излучение позволяют использовать его для мониторинга выгорания топлива и неразрушающего контроля изотопного состава плутония. Однако, с точки зрения формирования защит-

Таблица 1

Характеристики РЗЭ гамма-эмиттеров

Изотоп	$T_{1/2}$, год	Энергия кванта, кэВ	Относительный выход гамма-квантов, %
^{137}Cs	30.1	661.7	85.1
$^{144}\text{Ce}-^{144}\text{Pr}^*$	0.78	696.5	1.3
		1449.2	0.3
		2185.6	0.7
^{146}Pm	5.53	633.2	2.1
		747.2	34
^{152}Eu	13.5	344	26.6
		411	2.2
		778.9	13
		1089.1	1.7
^{154}Eu	8.6	996.8	10.3
		1004.8	17.4
		1274.4	35.5

* линии гамма-квантов дочернего ядра ^{144}Pr с периодом полураспада, равным 17.3 мин.

ного барьера, у него есть ряд недостатков: цезий восприимчив к выщелачиванию в случае водных методов переработки ОЯТ и не присутствует в трансурановой смеси, получаемой в результате применения пирохимического метода переработки [6, 7]. Относительные выходы гамма-квантов и периоды полураспада представленных изотопов свидетельствуют о возможности получения высоких интенсивностей излучения при малом количестве примесей данных изотопов, а высокие энергии гамма-квантов могут привести к формированию значительных доз ионизирующего излучения. Наибольшие энергии гамма-квантов соответствуют изотопам ^{144}Ce , ^{152}Eu и ^{154}Eu . Относительные выходы высокоэнергетических гамма-квантов ^{154}Eu являются наибольшими для представленных РЗЭ гамма-эмиттеров. Наряду с ^{137}Cs изотопы ^{144}Ce и ^{154}Eu также применяются в целях неразрушающего контроля ОЯТ в качестве индикаторов глубины выгорания и истории облучения ядерного топлива [6], и оба могут рассматриваться в качестве барьера против распространения ЯМ. Недостатки церия были отмечены выше. Что касается ^{154}Eu , он действительно выглядит предпочтительнее. Однако, в силу главного акцента на нераспространение плутония, этот изотоп не рассматривался, так как в PUREX-процессе он отделялся от плутония с Am-Cm-фракцией. При формировании же перспективных топливных циклов, включающих в себя рецикл трасплутониевых элементов, важно учесть эффект присутствия ^{154}Eu в качестве защитного барьера. Эта задача и является основным мотивирующим фактором для проведения настоящего исследования.

Таблица 2 дает представление о масштабе выходов РЗЭ продуктов деления от основных изотопов урана и трансурановых изотопов, делящихся в тепловом и быстром спектрах нейтронов [8]. Выход ^{154}Eu растет с увеличением массового числа делящегося ядра, а выход ^{144}Ce практически одинаков. В свою очередь изотоп ^{146}Pm не подходит для формирования барьера по критерию выхода продукта деления, так как выход данного изотопа значительно уступает выходам ^{154}Eu и ^{144}Ce , что приводит к его малому накоплению в ОЯТ.

На рисунке 1 показаны зависимости накопления ^{144}Ce и ^{154}Eu от выгорания топлива, полученные с использованием контрольного модуля SAS2[9] программного

Таблица 2
Выход продуктов деления (на 100 актов деления)

Изотоп	²³³ U		²³⁵ U		²³⁹ Pu		²⁴¹ Pu		²⁴¹ Am	
	T	F	T	F	T	F	T	F	T	F
¹⁴⁴ Ce	4.72	4.38	5.5	5.27	3.74	3.72	4.22	4.17	3.49	3.41
¹⁵⁴ Eu	0.046	0.043	0.074	0.072	0.26	0.27	0.38	0.36	0.38	0.42
¹³⁷ Cs	6.75	6.75	6.19	6.22	6.61	6.59	6.65	6.38	6.41	5.83
¹⁴⁶ Pm	1.10E-08	1.59E-08	4.50E-10	7.23E-12	7.89E-09	1.74E-08	1.09E-11	5.25E-11	1.27E-08	9.19E-08
	²³⁷ Np		²⁴⁰ Pu		²⁴² Pu		^{246m} Am		²⁴³ Am	
¹⁴⁴ Ce	4.84	4.14	3.92	3.96	4.19	4.26	4.43	-	-	4.15
¹⁵⁴ Eu	0.10	0.097	0.32	0.39	0.43	0.43	0.55	-	-	0.42
¹³⁷ Cs	6.17	6.25	6.55	6.56	6.72	6.31	6.14	-	-	7.5
¹⁴⁶ Pm	8.05E-11	5.81E-09	6.07E-10	8.77E-10	4.43E-12	3.18E-11	8.26E-09	-	-	1.69E-07
	²⁴² Cm		²⁴³ Cm		²⁴⁴ Cm		²⁴⁶ Cm		²⁴⁸ Cm	
¹⁴⁴ Ce	4.84	4.14	3.72	3.69	-	4	-	4.67	-	5.05
¹⁵⁴ Eu	0.10	0.097	0.9	0.63	-	0.68	-	0.84	-	0.94
¹³⁷ Cs	6.17	6.25	6.61	6.81	-	6.68	-	6.61	-	6.56
¹⁴⁶ Pm	-	2.00E-05	2.93E-07	1.09E-06	-	4.53E-07	5.71E-09	5.71E-09	-	3.28E-11

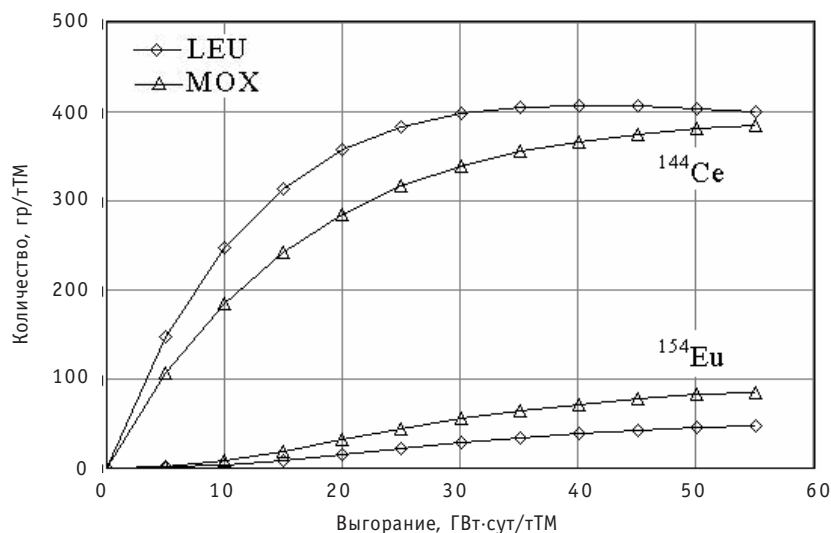


Рис.1. Накопление ключевых РЗЭ гамма-эмиттеров в зависимости от глубины выгорания

комплекса SCALE-5[10]. Были рассмотрены два вида топлива: урановое с обогащением по изотопу ^{235}U 4.2% и уран-плутониевое с относительным содержанием плутония 6.54%, что соответствует 4.2% обогащению по ^{235}U . Вовлечение в ядерное топливо плутония приводит к увеличению содержания изотопа ^{154}Eu в ОЯТ за счет большего выхода ^{154}Eu в результате деления ядер ^{239}Pu и ^{241}Pu . Относительно малый период полураспада ^{144}Ce при достижении глубоких выгораний приводит к насыщению данного изотопа, в то время как ^{154}Eu продолжает копиться в отработавшем топливе. Изотоп ^{152}Eu обладает высоким сечением захвата тепловых нейтронов ($12.78\text{E}+3$ barn), что приводит к его малому накоплению в ОЯТ, тем самым не позволяя рассматривать его в качестве возможной примеси для создания барьера против распространения.

ДОЗА ИЗЛУЧЕНИЯ КАК БАРЬЕР ПРОТИВ НЕСАНКЦИОНИРОВАННОГО РАСПРОСТРАНЕНИЯ

В настоящее время не существует четко сформулированного подхода к определению количественных характеристик дозового барьера защищенности против несанкционированного распространения ЯМ. В таблице 3 представлена существующая практика оценки барьеров.

Минимальным критерием оценки дозы ионизирующего излучения, представленным в литературе, является максимально допустимая доза 5 бэр/год для персона-

Таблица 3

Подходы определения дозового барьера защищенности

Масса	Расстояние от источника, м	Критерий защищенности	Источник
1	1	1 Зв/ч	[5]
5	0.5	5 бэр/год*	[11]
SQ	1	4.5 Зв	[12]
BCM	1	50 Гр**	[13]

*максимально допустимая годовая доза для персонала, США;

** летальная доза краткосрочного облучения приводит к поражению ЦНС.

ла предприятий США. Максимальной дозой, приводящей к мгновенному поражению центральной нервной системы (ЦНС) является доза в размере 50 Гр. Наиболее часто применяемым критерием оценки защищенности делящегося материала является критерий МАГАТЭ – 1 Зв/ч на расстоянии одного метра, что соответствует уровню самозащитенности материала [14]; другим является критерий летальной дозы, позволяющий оценивать время работы с материалом [1]: 4,5 и 6 Зв (MLD_{50} и MLD_{100} – соответственно дозы ионизирующего излучения, летальные исходы вероятны в 50 и 100% случаев в течение двух недель после прекращения облучения).

В работе были произведены расчеты дозовых характеристик в зависимости от критических сфер нептуния и смеси трансурановых элементов, а также оценки необходимого количества сторонних примесей изотопа ^{154}Eu . Расчет доз ионизирующего излучения был произведен для точки, находящейся на расстоянии один метр от критической сферы, с учетом защиты перчаточного бокса, моделируемой путем окружения делящегося материала 10-сантиметровым слоем водной защиты [11]. Для оценки количественных характеристик примесей был выбран критерий самозащитенности МАГАТЭ, а также применена концепция летальной дозы, позволяющая оценить времена и допинги европия для формирования барьера защищенности.

В случае допинга 120 ppm ^{154}Eu дозовые нагрузки в зависимости от критической сферы из нептуния достигают уровня самозащитенности МАГАТЭ (рис.2), в то

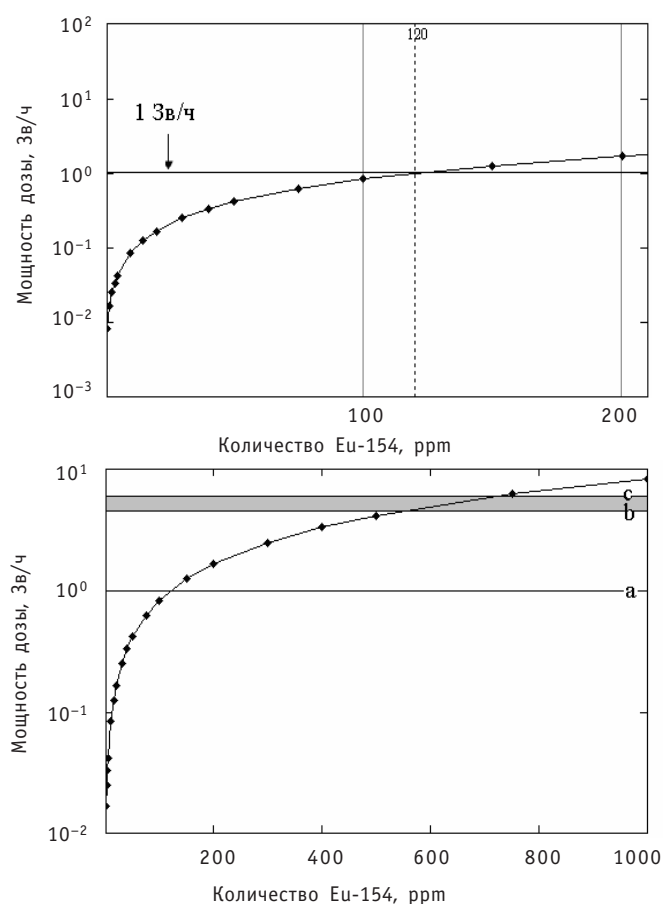


Рис. 2. Зависимость мощности дозы ионизирующего излучения от нептуниевой критической сферы при различном содержании изотопа ^{154}Eu : а – 1 Зв/ч; б – 4,5 Зв/ч; с – 6 Зв/ч

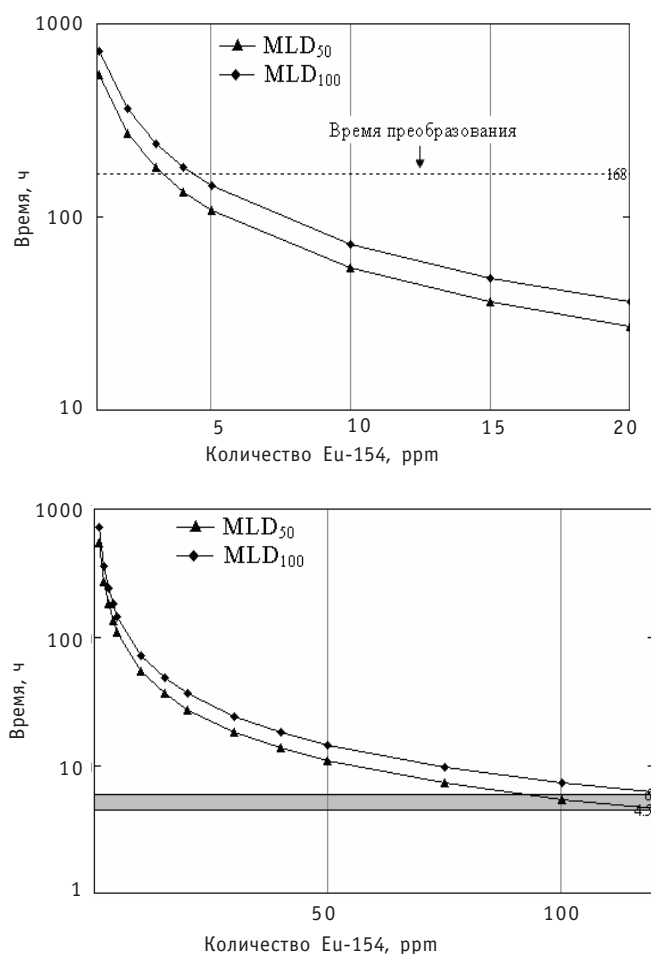


Рис. 3. Время, необходимое для накопления летальной дозы от критической плутониевой сферы в зависимости от допинга ^{154}Eu

время как присутствие 600 ppm удовлетворяет тенденциям изменения уровня самозащитенности материала, для которых критерием является повышение дозы до 5 Зв/ч [15]. Допинг 5 ppm ^{154}Eu сокращает время, необходимое для накопления поглощенной дозы 4.5 Зв в 50 раз (рис. 3) по сравнению с периодом времени, необходимым для накопления такой же дозы от критической сферы без примесей изотопов европия.

Наряду с отдельно выделяемыми трансурановыми элементами существует гипотетическая вероятность использования смеси трансуранов для производства взрывного устройства. На рисунках 4 и 5 показаны необходимое содержание примеси ^{154}Eu для достижения уровня самозащитенности материала (рис. 4), а также времена накопления летальной поглощенной дозы при различных начальных содержаниях ^{154}Eu (рис. 5).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Применение неводных методов переработки ОЯТ приводит к вовлечению в ядерный топливный цикл гамма-эмиттеров, позволяющих повысить уровень защищенности делящегося материала от несанкционированного распространения. Таковыми гамма-эмиттерами могут быть продукты деления группы лантаноидов ^{154}Eu и ^{144}Ce . Применение ^{144}Ce ограничено зависимостью от времени после прекращения

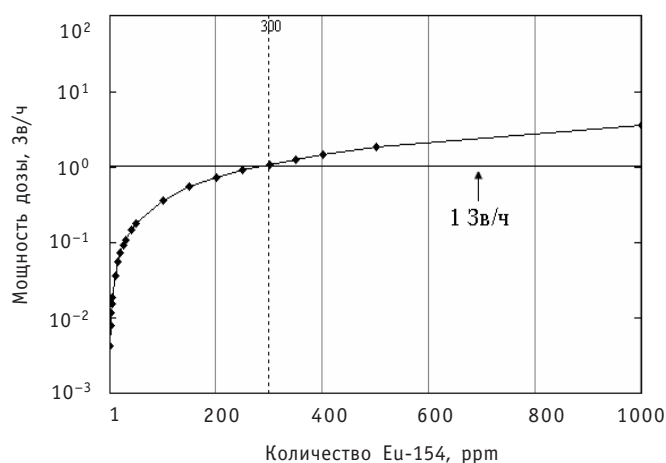


Рис. 4. Зависимость мощности дозы ионизирующего излучения от критической сферы из смеси трансурановых элементов при различном содержании изотопа ^{154}Eu

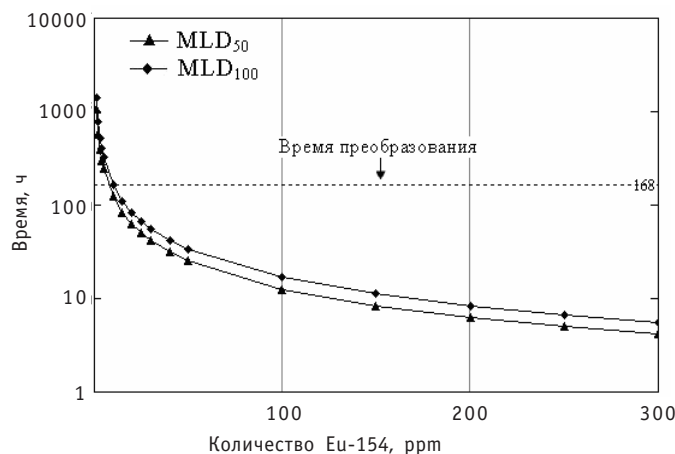


Рис. 5. Время, необходимое для накопления летальной дозы от критической сферы из смеси трансурановых элементов при различном содержании изотопа ^{154}Eu

облучения. Присутствие ^{154}Eu в качестве сторонней примеси понижает привлекательность материала за счет увеличения дозовых нагрузок. Присутствие 120 ppm ^{154}Eu позволяет достичь уровня самозащитности 1 Зв/ч от критической непутийевой сферы. Для достижения уровня самозащитности критической сферы из смеси трансурановых элементов необходимо присутствие 300 ppm ^{154}Eu . В случае отсутствия примесей продуктов деления требуется 50 дней для накопления поглощенной дозы в размере 4,5 Зв, а допинг 5 ppm ^{154}Eu уменьшает требуемое время для накопления MLD_{50} более чем в три раза, тем самым затрудняя возможность переключения данного материала для производства ВУ.

Литература

1. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, IAEA Safeguards Glossary (2001 edition), International Nuclear Verification Series No. 3, IAEA, Vienna (2002). G.
2. Kessler. Plutonium Denaturing by ^{238}Pu / NUCLEAR SCIENCE AND ENGINEERING: 155, 5373 2007.
3. Mme Van den Berghe. Final report: Evaluation of nuclear criticality safety data and limits for actinides in transport. C4/TMR2001/200-1.

4. Goff K.M., Simpson M.F. Dry Processing of Used Nuclear Fuel (Paris, France, September 6-11, 2009).
5. Kang J., von Hippel F.N. Limited Proliferation-Resistance Benefits from Recycling Unseparated Transuranics and Lanthanides from Light-Water Reactor Spent Fuel//Science and Global Security. – 2005. 13:169-181.
6. Райлли Д., Энслин Н., Смит Х. (мл.), Крайнер С. Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов. – Washington, DC, 1991- NUREG/CR-5550/Пер. с англ. – М.: ЗАО «Издательство Бином», 2000.
7. Madic C., Hudson M.J., Ouvrier N., Warin D., Baron P., Hill C., Arnaud F. Main Results of EUROPART project for actinide partitioning/ ENC 2007 16-20 September, Brussels, Belgium.
8. England T., Rider B. ENDF-349 Evaluation and Compilation of Fission Product Yields. Tech. Rep. LA-UR-94-3106, Los Alamos National Laboratory. – 1994.
9. Gauld C., Hermann O.W. SAS2: a coupled one-dimensional depletion and shielding analysis module NUREG/CR-0200 Revision 7 Vol. I, Section S2 ORNL/NUREG/CSD-2/V2/R7 May 2004.
10. SCALE-5, SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing evaluation// RSICC, CCC-7252.
11. Kang J., von Hippel F.N. U-232 and the Proliferation-Resistance of U-233 in Spent Fuel// Science & Global Security. – 2001. – V. 9. – P. 1-32.
12. Artisyuk V., Saito M., Takibaev A., Sagara H. Radiation Dose as Barrier against proliferation for Advanced Fuel Composition//Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY. – 2008. – V. 45. – № 10. – P. 1009-1015.
13. Filimonov S., Artisyuk V., Shmelev A., Kessler G. Proliferation Resistant Fuel Cycles Based on Reprocessed Uranium-Plutonium Mix (Paris, France, September 6-11, 2009).
14. International Atomic Energy Agency. The physical Protection of Nuclear Materials and Nuclear Facilities, INFCIRC/225/rev.4, IAEA (1999).
15. Coates C.W., Broadhead B.L., Krichinsky A.M., Leggett R.W., Emmett M.B., Hines J.B. Radiation Effects on Personnel Performance Capability and a Summary of Dose Levels for Spent Research Reactor Fuels. ORNL/TM-2005/261. December 2005.

Поступила в редакцию 14.09.2010

УДК 621.039.51

Enhancement TRU Proliferation Resistans through Gamma Buildup from Rare Earths \A.I. Dyachenko, V.V. Artisyuk, S.N. Filimonov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2010. – 9 pages, 3 tables, 5 illustrations. – References, 15 titles.

his paper deals with analysis of radiation barriers to reduce the attractiveness of transuranic materials from the view of nonproliferation. The barrier is formed by doping of rare earth gamma emitters. The selection of appropriate rare earth nuclides was the main focus of the present paper. The quantitative requirements for the presence of rare earth nuclide impurities to form barriers formulated, taking into account the existing criteria for evaluating security.

УДК 621.039.543.6

Comparative Analysis of Fission Materials for Uranium-Plutonium and Thorium-Uranium Cycles on Nonproliferation Criteria \V.V. Korobeynikov, B.B. Tikhomirov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2010. – 10 pages, 10 tables, 3 illustrations. – References, 15 titles.

The approaches to estimation of relative attractiveness of materials on the base of uranium-233 in thorium cycle with proliferation risk point of view are studied. Preliminary assessment of relative attractiveness for uranium-233 on the base approach developed for plutonium fuel was executed. It was shown that attractiveness depends from uranium-232 content and time of cooling very strong. Findings were compared with analogue characters of materials using in uranium-plutonium fuel cycle.

УДК 621.039.1

Prospectives of Nuclear Industry Development in Siberia. Ecology, Safety, Economics \V.I. Boyko, F.P. Koshelev, G.M. Pshakin, O.V. Selivanikova; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2010. – 10 pages, 3 tables. – References, 24 titles.

Rosatom projects for Krasnoyarsk, Tomsk and Irkutsk regions are briefly analyzed. Special attention is paid to construction of Seversk NPP in Tomsk region. Necessity and principles for construction of NPP are argument. Estimations of severe accident consequences alternative (using coal, natural gas or other type of fuel) electricity production plant same capacity (2300 MWe) were done.

УДК 621.039.534.63

Modelling of Mass Transfer of Corrosion Products in the Circuit of NPP with Sodium Coolant \V.V. Alexeev, A.S. Kondratiev; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2010. – 10 pages, 2 tables, 7 illustrations. – References, 9 titles.

The article describes the process model of mass transfer of impurities according to their chemical interactions in the system sodium – structural material – impurity. The data for the primary circuit of reactor BN-600, both for the nominal mode, and for the cases of a hypothetical accident with increasing facility parameters. The data obtained can be used to perform the safety analysis of facility.

УДК 621.039.58:536.423

Calculation and Experimental Study of Noncondensable Gases Influence on the Operation of VVER Steam Generator Model in Condensation Mode in the Event of the Beyond Design Basis Accident \A.A. Zaytsev, D.S. Kalyakin, A.A. Lukyanov, A.V. Morozov, T.V. Popova, O.V. Remizov, O.V. Supotnitskaya, A.A. Tsyganok; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2010. – 11 pages, 9 illustrations. – References, 5 titles.

The results of calculation and experimental study of the influence of noncondensable gases on the operation of VVER steam generator model in condensation mode are presented. The experiments have been performed at the GE2M-PG large-scale facility under conditions of natural circulation of the first and second circuits for the vapor pressure of the first circuit 0.36 – 0.38 MPa. Numerical simulation of the experiments was conducted using the computer code KUPOL-M. As a result of work the experimentally determined the effect of noncondensable gases on the condensation power of the steam generator model and found that the computer code KUPOL-M satisfactorily simulates the process under investigation.