

5. ТРАНСМУТАЦИЯ АКТИНИДОВ

Как уже упоминалось, помимо плутония, в ядерных реакторах нарабатываются и трансплутониевые элементы. При этом больше всего возникает минорных актинидов: нептуний, Np, америций, Am, и кюрий, Cm. Некоторые изотопы этих элементов весьма опасны, из-за осуществляемых в них процессов самопроизвольного деления, обеспечивающих возможность цепного процесса, что позволяет изготавливать небольшие по объему ядерные заряды, удобные для террористов. Например, одно время при создании новых видов оружия пристальное внимание уделяли изотопу ^{245}Cm из-за его уникальных делящихся свойств, позволяющих изготавливать на его основе не атомные бомбы, а снаряды, мины и даже пули. Однако выяснилось, что особых преимуществ у кюри по сравнению с плутонием нет (в частности, из-за низкой плотности кюрия 13 кг/см^3 по сравнению с $19,6 \text{ г/см}^3$ для плутония): по стоимости и производительности кюрий уступает плутонию в несколько раз. Тем не менее, необходимо принимать строгие меры по предотвращению накопления и распространения минорных актинидов.

Превращение изотопов плутония и долгоживущих актинидов в короткоживущие радионуклиды или даже в стабильные изотопы посредством облучения в реакторе или на ускорителе можно рассматривать как заманчивую идею, позволяющую решить проблему их обезвреживания. Для ее осуществления необходимо разработать способ извлечения из высокоактивных отходов фракции актинидов и иметь в наличии высокопоточный реактор или ускоритель. Еще перспективнее – вообще отказаться от каких-либо процессов выделения, в том числе - процесса химического отделения плутония. Есть современные технологические схемы быстрых реакторов, которые выжигают топливо, включая ^{238}U , на 50 - 60% без его переработки. Существует процедура, когда отделяется легкая часть топлива, а тяжелая – без разбивки на компоненты – вновь возвращается в активную зону реактора. Изучены непрерывные режимы, при которых на вход подается ^{238}U , а на выходе возникает прогоревшее более чем на половину топливо. В замкнутом цикле нет выброса в окружающую среду долгоживущих элементов трансурановой группы и нет выделения плутония в чистом виде.

Под реакторной трансмутацией понимают «пережигание» наиболее опасных радионуклидов в поле интенсивного нейтронного облучения. При этом уничтожаемые элементы не обязательно вводить в топливо: достаточно через реактор пропустить трубу, по которой направить компоненты перерабатываемого твэла или пульпу РАО. Этот процесс переработки ОЯТ возможен поскольку добавление нескольких процентов ВАО в реактор не ухудшает заметно его характеристики. Трансмутация подходит лишь для радионуклидов с высоким сечением захвата нейтронов. Следует сразу указать, что существуют изотопы, которые принципиально нельзя переработать данным методом.

Трансмутация как метод обезвреживания радиоактивных отходов включает в себя не только их ядерное сжигание, но и комплекс иных мер, в том числе радиохимических. Принципиальными вопросами трансмутации малых (минорных) актинидов в области радиохимии, непосредственно влияющими на перспективы реализации этого метода, являются потери минорных актинидов при будущей переработке облученных мишеней и частота их рециклирования, определяющая дозовые нагрузки на оборудование и персонал. Указанные параметры зависят от ядерно-физического способа сжигания актинидов, поэтому их оценка может служить экономически обоснованным аргументом при выборе того или иного направления трансмутации.

Несмотря на множество концепций трансмутации и предлагаемых для их реализации устройств, основная физическая задача заключается в выборе нейтронного спектра - преимущественно быстрого или теплового, хотя в рамках каждого из этих подходов жесткость спектра может заметно изменяться. Сегодня наиболее реальными считаются два пути - сжигание нежелательных нуклидов в специализированных быстрых реакторах при условии повышения жесткости нейтронного спектра по сравнению с энергетическими или создание устройств с высокой плотностью потока тепловых нейтронов. Технически первый вариант является более простым и экономически выгодным, так как основан на усовершенствовании уже существующих быстрых реакторов. Привлекательность же высокопоточных тепловых выжигателей состоит в возможности попутной трансмутации ряда долгоживущих продуктов деления, в основном ^{99}Tc и ^{129}I . При этом ^{99}Tc может быть почти полностью переведен в стабильный ценный платиноид рутений.

С точки зрения радиохимии два этих способа различаются главным образом по степени выгорания мишеней, поступающих на переработку. Фактором, лимитирующим выгорание, является радиационная стойкость реакторных материалов, лежащая для большинства из них в пределах флюенса $10^{23} - 10^{24} \text{ см}^{-2}$. Достигнутое в настоящее время выгорание топлива быстрых реакторов не превышает 20%. Однако содержащие минорные актиниды мишени являются гораздо более опасным объектом по сравнению со стандартным топливом и будут облучаться более жестким нейтронным спектром. Поэтому в проектируемых быстрых трансмутационных реакторах планируемое выгорание актинидных мишеней не превысит 5%. В устройствах с плотностью теплового потока более $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ при флюенсе 10^{23} см^{-2} выгорание может составлять свыше 90% хотя необходимость столь высокой степени выжигания минорных актинидов за одну

кампанию является дискуссионной. Это связано с экспоненциальным падением скорости сжигания нуклидов при увеличении выгорания, для поддержания которой требуются дополнительные организационно-технические меры, а также с относительно высокой стоимостью нейтронов, часть из которых будет бесполезно затрачиваться на активацию образовавшихся продуктов деления.

Полные потери минорных актинидов (МА) за счет собственно рециклирования мишеней составят:

$$W = \frac{w}{[(1-q)(1-w)]^{-1} - 1} * 100\%$$

где q - относительное количество сжигаемых за один топливный цикл МА, w - их относительные потери при переработке. (При учете неустраняемых при любых методах обращения с МА потерь w при их выделении из отработавшего топлива энергетических реакторов следует рассматривать величину $W + w = \frac{w}{1 - (1-q)(1-w)}$

однако такой подход не совсем корректен). Так, при $w = 10^{-3}$ (коэффициент извлечения МА потерь 99,9%) для выгорания $q = 0,05$ (быстрый реактор) и $q = 0,9$ (высокопоточный тепловой реактор) полные потери W составят 1,9% и $1,1 \cdot 10^{-2} \%$ соответственно, при $w = 5 \cdot 10^{-3}$ (коэффициент извлечения 99,5%) - 8,6% и $5,5 \cdot 10^{-2} \%$ соответственно, т.е. будут отличаться примерно в 150-200 раз.

Элементарный состав облученных мишеней, поступающих на переработку, зависит от их выгорания. Мишени с малым выгоранием из быстрых реакторов будут содержать сравнимые количества Np , Pu , Am , Cm , в то время как радиохимическая переработка мишеней, облученных в высокопоточном тепловом реакторе, может быть ориентирована практически лишь на кюрий, что в некоторой степени упрощает задачу.

При больших выгораниях в окружающую среду будут попадать в основном изотопы Cm , более активные по сравнению с ^{237}Np , который будет преобладать в потерях МА при малых выгораниях. Однако миграционная способность ^{237}Np в биосфере высока и его вклад в дозовую нагрузку при внутреннем облучении человека является достаточно значимым среди других минорных актинидов.

Количество циклов облучения, необходимое для полного сжигания начальной загрузки МА при малых w составляет $\approx 1/q$, а необходимые перерабатывающие мощности в радиохимической промышленности при годовой наработке актинидов m составят m/q . В 1996 г в мире на атомных станциях произведено 263 ГВт/год электроэнергии, что соответствует наработке примерно 6 т изотопов Np , Am , Cm . Для радиохимического обеспечения трансмутации их в быстрых реакторах при $q=0,05$ потребовалось бы рециклировать в год 120 т МА, в высокопоточных тепловых при $q=0,9$ - менее 7 т. Следовательно, необходимые экономические затраты и соответствующие дозовые нагрузки на работников этой сферы отличались бы в данном случае почти в 20 раз.

Таким образом, трансмутация плутония и минорных актинидов в быстрых реакторах, несмотря на относительно более низкую техническую проблемность, является радиохимически и экологически намного менее выгодной по сравнению с их сжиганием в высокопоточных тепловых.

Для существующей и перспективной крупномасштабной ядерной энергетики известны операции трансмутационного топливного цикла, позволяющие максимально приблизиться к радиационно-миграционной эквивалентности между долгоживущими и высокоактивными отходами и использованным природным ураном. Соизвлечение с ураном и расщепление радия и тория, достаточно высокие коэффициенты отделения U , Pu , минорных актинидов (Am , Cm , Np , Cf , Pa) для сжигания, Tc и йода для трансмутации, Sr , Cs для полезного использования и длительная (200 - 400 лет), контролируемая выдержка долгоживущих высокоактивных радиоактивных отходов перед окончательным захоронением являются основными операциями трансмутационного топливного цикла. Возможно передача актинидов в быстрые энергетические или специализированные реакторы-трансмутаторы для сжигания в качестве топлива. Хотя метод трансмутации принципиально осуществим, современный уровень техники недостаточен для его успешной реализации. В существующих ядерных реакторах метод трансмутации не удастся осуществить полностью, так как наряду с процессами деления протекают и процессы захвата нейтронов с образованием тяжелых элементов с большими периодами полураспада. По-видимому, такой способ обезвреживания α -излучателей из отходов мог бы стать целесообразным при облучении в реакторе с плотностью потока нейтронов $10^{16} - 10^{17}$ нейтр./ (cm^2/c) или в термоядерных реакторах. Однако такие реакторы пока не существуют.