

5. КОНЦЕПЦИЯ ЭКВИВАЛЕНТНОСТИ РАДИОТОКСИЧНОСТИ ПРИРОДНЫХ И РЕАКТОРНЫХ РАДИОАКТИВНЫХ СЕМЕЙСТВ

В качестве примера практического использования сдвигов радиоактивных равновесий рассмотрим проблему сравнительной характеристики радиационно-экологической опасности природных и техногенных радиоактивных семейств.

В связи с развитием ядерной энергетики в мире накоплены и продолжают накапливаться большие количества радиоактивных отходов (РАО), требующих утилизации с целью обеспечения радиационной безопасности населения. Концепция обращения с РАО основывается на принципе эквивалентности радиотоксичности природных и искусственных семейств радионуклидов: возвращаемая в землю радиоактивность (как природная, так и техногенная) должна равняться радиоактивности извлеченных за это время из земли природных радионуклидов. Эта концепция стала определяющей при выборе типа наиболее экологически благоприятного ядерного реактора. Нарботка актинидов зависит как от соотношений сечений захвата и деления их нейтронами, так и от спектра нейтронов, а, следовательно, от вида топлива и типа реактора. Реактор с тепловым спектром нейтронов создает больший процент семейства нептуния ($4n+1$), чем быстрый реактор (Табл. 4).

Табл.4. Соотношение изотопов радиоактивных семейств в урановом топливе (ат.%)

Ряд	Материнский изотоп	Реакторы		Дочерние изотопы урана, T
		Тепловой	Быстрый	
		ВВЭР-440	БН-600	
4n	^{240}Pu	20.65	3.5	^{236}U 2.3x10 ⁷ лет
	^{244}Cm	0.20	3.6x10 ⁻⁷	
	Сумма	20.85	3.5	
4n+1	^{237}Np	2.75	1.32	^{233}U 1.6x10 ⁶ лет
	^{241}Pu	11.67	0.07	
	^{241}Am	2.07	0.01	
	^{245}Cm	0.01	4.6x10 ⁻⁹	
	Сумма	16.5	1.4	
4n+2	^{238}Pu	0.7	0.1	^{238}U 4.5x10 ⁹ лет
	^{242}Pu	3.8	0.0013	
	$^{242\text{m}}\text{Am}$	-	7.2x10 ⁻⁶	
	Сумма	4.15	0.1	
4n+3	^{239}Pu	57.71	95.0	^{235}U 7.1x10 ⁸ лет
	^{239}Am	0.79	1.6x10 ⁻⁵	
	^{243}Cm	-	2.9x10 ⁻⁷	
	Сумма	56.5	95.0	

По соотношениям радиоактивных семейств, наработанных в реакторах наилучший спектр у реактора на быстрых нейтронах БН-600 (топливо - уран):

- основную массу (95%) составляют актиниды уран-актиниевого семейства ($4n+3$), которые превращаются в ядерное топливо - долгоживущий дочерний продукт ^{235}U ;
- минимальное количество актинидов нептуниевого ($4n+1$) семейств (1.4%), что делает реальным выполнение принципа эквивалентности радиотоксичности (В природе ряда нептуния нет, следовательно не должно его быть и в отходах);
- наименьшее количество актиноидов (3.5%) ториевого семейства ($4n$), в ряду которого находится радиоопасный ^{232}U .

На работающем реакторе идут переходы нуклидов между радиоактивными семействами за счет ядерных реакций; на остановленном реакторе взаимопревращения элементов происходят за счет альфа- и бета-распадов только внутри определенного семейства. Соотношение семейств зависит от продолжительности работы реактора и от продолжительности остановов. Идеальным реактором для выполнения принципа эквивалентности радиоактивности урановых руд и РАО является реактор, не образующий актинидов нептуниевого семейства. Любой изотоп нептуниевого семейства (^{249}Cf , ^{249}Bk , ^{245}Cm , ^{241}Am , ^{241}Pu) является родоначальником для природного нептуниевого семейства.

Для оценки радиоактивности реакторных радиоактивных семейств необходимо знать абсолютное количество наработанных актинидов на единицу массы реакторного топлива. Количество и соотношение актинидов, определяется физическими параметрами реактора, химическим и изотопным составом ядерного топлива, мощностными и временными режимами эксплуатации реактора, продолжительностью хранения топлива. Поэтому спектр актинидов и их абсолютное количество для разных ТВЭЛов и различных типов реакторов будут отличаться. Обычно наибольшее количество нарабатывается изотопов плутония, на порядок меньше нарабатывается изотопов нептуния и америция,

и приблизительно на два порядка меньше по отношению к плутонию изотопов кюрия, т.е. количество актинидов в ОЯТ подчиняется соотношению Pu:(Np, Am):Cm как 1:0.1:0.01 (Табл. 5).

Табл.5. Состав трансурановых изотопов в отработанном ядерном топливе для реакторов с тепловым спектром нейтронов.

Семейства	Содержание, ат%	Изотопы	Содержание, ат.%
4n ториевое	31.19	²⁴⁰ Pu ²⁴⁴ Cm ²⁴⁸ Cm ²⁵² Cf	10.49 17.85 2.77 0.08
4n+1 нептуниевое	16.18	²³⁷ Np ²⁴¹ Pu ²⁴¹ Am ²⁴⁵ Cm ²⁴⁹ Bk ²⁴⁹ Cf	5.51 9.48 0.54 1.27 0.05 0.03
4n+2 урановое	20.00	²³⁸ Pu ²⁴² Pu ^{242m} Pu ²⁴² Cm ²⁴⁶ Cm ²⁵⁰ Cf	4.17 3.69 0.02 0.16 11.71 0.03
4n+3 уран-актиниевое	31.93	²³⁹ Pu ²⁴³ Am ²⁴³ Cm ²⁴⁷ Cm ²⁵¹ Cf	23.03 8.11 0.02 0.75 0.02
Общее количество	100		100

Как уже упоминалось, основной подход к разработке концепции обращения с радиоактивными отходами ядерной энергетики основан на принципе эквивалентности радиоактивности природных и искусственных радиоактивных семейств. Принимая за основу замкнутый ядерный топливный цикл, который предусматривает включение в него урана, плутония, нептуния, можно оценить радиоактивность семейств, накопившихся в реакторных отходах.

Для примера за основу материнского изотопа можно взять 1 грамм соответствующего изотопа кюрия с выдержкой 1 год и 1000 лет (Табл. 6). Расчеты показывают, что с учетом отношения урана к кюрию $1:10^{-5}$ радиоактивности природных и реакторных радиоактивных урановых семейств (4n+2, 4n+3) соизмеримы и принцип эквивалентности радиоактивности для этих семейств может быть выполнен (ср. табл. 3 и 6). Для ториевого семейства реализация этого принципа может осуществиться через десятки тысяч лет хранения.

Табл.6. Радиоактивность наработанных в реакторе семейств.

Ряд	Материнский изотоп, МИ	Период выдержки	
		1 год	1000 лет
		Бк/г (МИ)	Бк/г (МИ)
4n	²⁴⁴ Cm	2.8×10^{12}	7.58×10^{10}
4n+1	²⁴⁵ Cm	6.6×10^9	1.66×10^{10}
4n+2	²⁴² Cm	2.8×10^{13}	4.73×10^8
	²⁴⁵ Cm	1.14×10^{10}	9.85×10^9
4n+3	²⁴³ Cm	1.16×10^{12}	4.50×10^9

Для радиоактивного семейства нептуния принцип эквивалентности радиоактивности невыполним, так как в природе это семейство имеет фоновую радиоактивность, а реакторное семейство нептуния увеличивает в течение сотни тысяч лет свою радиоактивность.

Таким образом, общность семейств природных и реакторных элементов необходимо учитывать при системном анализе ядерного топливного цикла. Для реализации концепции эквивалентности радиотоксичности долгоживущих РАО (актинидов) и радиотоксичности урановых и ториевых руд необходимо использовать принцип дифференцированного расчета радиотоксичности. Для прогнозируемых расчетов: радиоактивности ОЯТ, радиоактивности технологических процессов его радиохимической переработки с различной глубиной фракционирования, радиоактивности продуктов иммобилизации радиоактивных отходов, содержащих актиниды, необходимо учитывать в полном объеме не только взаимопревращения в радиоактивных семействах, но и степень открытости систем, так как время является технологическим параметром при образовании актинидов в работающем реакторе, в режимах остановов реактора при хранении ОЯТ и его радиохимических фракций.

Некоторые другие случаи использования радиоактивных рядов в науке и технике (определение возраста горных пород и минералов, датировка событий, расчет возраста аэрозолей, эманационно-термический анализ и др.) будут рассмотрены в следующих лекциях.