

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ Ам-ФРАКЦИИ МЛАДШИХ АКТИНИДОВ ДЛЯ НАРАБОТКИ ПЛУТОНИЯ, ПРИГОДНОГО ДЛЯ РАДИОИЗОТОПНЫХ ТЕРМОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ ГЕНЕРАТОРОВ

© 2024 г. А. Н. Шмелев^а, Н. И. Гераскин^а, В. А. Апсэ^а,
В. Б. Глебов^{а,*}, Г. Г. Куликов^а, Е. Г. Куликов^а, А. Е. Кругликов^а

^аНациональный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, 115409 Россия

*E-mail: vbglebov@mephi.ru

Поступила в редакцию 29.06.2023 г.

После доработки 03.07.2023 г.

Принята к публикации 10.07.2023 г.

В статье рассмотрена возможность наработки плутония, пригодного для радиоизотопных термоэлектрических генераторов (РИТЭГ) космических аппаратов, при использовании америциевой фракции младших актинидов (МА) в качестве стартового материала. Предполагалось размещение такого стартового материала в центральной ТВС легководного реактора ВВЭР-1000 и быстрого реактора БРЕСТ-1200 со свинцовым теплоносителем. Показана предпочтительность использования только Ам-фракции МА вместо Нр-фракции и смешанной Нр–Ам-фракции МА. Главным преимуществом Ам-фракции является принципиальная невозможность появления в плутонии нежелательного изотопа ^{236}Pu с жестким γ -излучением продуктов его распада. Сравнение условий наработки плутония, пригодного для РИТЭГ, в реакторах ВВЭР-1000 и БРЕСТ-1200 говорит о более высоких темпах производства такого плутония в быстром реакторе БРЕСТ-1200.

Ключевые слова: плутоний, радиоизотопные термоэлектрические генераторы, младшие актиниды, легководные реакторы, быстрые реакторы со свинцовым теплоносителем

DOI: 10.56304/S2079562923010256

1. ВВЕДЕНИЕ

Плутоний становится пригодным для радиоизотопных термоэлектрических генераторов (РИТЭГ) только при соблюдении следующих двух требований к его изотопному составу: доля ^{238}Pu должна быть выше 80%, а доля ^{236}Pu — ниже 2 ppm [1, 2]. Изотоп ^{238}Pu является мощным тепловым источником (570 Вт/кг) с достаточно длительным периодом полураспада (87.7 лет). Поэтому использование ^{238}Pu в качестве источника тепловой энергии в РИТЭГ делает возможным стабильное и продолжительное энергообеспечение космических аппаратов. При этом доля изотопа ^{238}Pu не должна опускаться ниже 80%, поскольку только при этом условии плутоний не может быть использован для изготовления ядерных взрывных устройств [1]. Низкое содержание изотопа ^{236}Pu позволит ослабить жесткое γ -излучение продуктов его распада (в основном, ^{208}Tl).

В работах [3, 4] оценена возможность крупномасштабного производства плутония, пригодного для РИТЭГ, в легководном реакторе типа ВВЭР и в легководном реакторе типа ВВЭР-СКД со сверхкритическими параметрами теплоноси-

теля. В качестве стартового материала для наработки плутония использованы нептуниевая и америциевая фракции младших актинидов (МА). Как известно, в состав МА входят три фракции: нептуниевая (^{237}Np), америциевая (^{241}Am , ^{243}Am) и кюриевая (^{244}Cm , ^{245}Cm). Кюриевая фракция МА не представляет никакого интереса для наработки плутония, так как изотопы кюрия не могут образовывать изотопы плутония в нейтронных реакциях. Нейтронное облучение Нр-фракции МА ведет к накоплению плутония через $^{237}\text{Np}(n, \gamma)$ и $^{237}\text{Np}(n, 2n)$ реакции. Нейтронное облучение Ам-фракции МА превращает ^{241}Am в ^{242}Cm , который в результате сравнительно короткого α -распада ($T_{1/2} = 162.8$ сут) переходит в ^{238}Pu .

В упомянутых выше работах [3, 4] основное внимание было уделено возможности наработки плутония с использованием либо только Нр-фракции МА, либо с использованием смеси Нр-фракции с Ам-фракцией. Стартовый материал помещался в центральную ТВС реактора и окружался слоем свинца для создания барьера против быстрых нейтронов деления из соседних урановых сборок. Дело в том, что только быстрые нейтроны

Таблица 1. Темп наработки и изотопный состав плутония в AmO_2 -ТВС

$t(\text{AmO}_2)$, Мм	Pu, кг/год	$^{238}\text{Pu}/\text{Pu}$, %	Pu/Am, %
12.75	1.52	82.5	0.31
20	1.47	82.3	0.73
30	1.57	81.6	1.75
40	1.63	80.3	3.24

способны инициировать пороговую $^{237}\text{Np}(n, 2n)$ реакцию, ведущую к накоплению нежелательно-го изотопа ^{236}Pu . В итоге были найдены условия, при которых легководные энергетические реакторы типа ВВЭР или ВВЭР-СКД способны обеспечить крупномасштабную наработку плутония, пригодного для РИТЭГ.

В настоящей работе рассмотрена возможность использования только Ам-фракции МА для производства плутония. Основное преимущество Ам-фракции перед Нр-фракцией заключается в полном исключении самой возможности образования ^{236}Pu и, следовательно, исключение необходимости создания свинцового барьера против быстрых нейтронов деления. Конечно, темп наработки плутония может оказаться меньшим, чем при использовании Нр-фракции или смеси Нр-фракции с Ам-фракцией из-за более длинной цепочки изотопных переходов $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Cm}(\alpha\text{-распад})^{238}\text{Pu}$ по сравнению с $^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Pu}$. Однако Ам-фракция снимает необходимость низкой доли ^{236}Pu , поскольку его просто не будет в составе плутония.

2. МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Расчеты темпа наработки и изотопного состава плутония, образуемого в нейтронных реакциях только изотопов Ам-фракции МА, проводились с помощью компьютерной программы TIME26 [5] для одномерных цилиндрических моделей теплового реактора ВВЭР-1000 и быстрого реактора БРЕСТ-1200 в 26-групповом диффузионном приближении. Микросечения нейтронных реакций брались из библиотеки оцененных ядерных данных БНАБ-78 [6].

3. РАСЧЕТЫ НАРАБОТКИ ПЛУТОНИЯ В РЕАКТОРЕ ВВЭР-1000

Рассматривалась цилиндрическая модель активной зоны реактора ВВЭР-1000, состоящая из 169 урановых ТВС (8 слоев гексагональных сборок). Основные параметры модели активной зоны:

Тепловая мощность — 3200 МВт

Топливо — двуокись обогащенного урана (4.4% ^{235}U)

Оболочка — сплав 99% Zr—1% Nb

Диаметр топливной таблетки — 7.57 мм

Диаметр центрального отверстия — 1.40 мм

Толщина зазора “топливо—оболочка” — 0.075 мм.

Толщина оболочки — 0.65 мм.

Шаг треугольной решетки ТВЭлов — 12.75 мм

Размер гексагональной ТВС “подключ” — 23.4 см.

Высота активной зоны — 353 см

Облучаемая сборка, в которой урановое топливо заменено на двуокись америция AmO_2 , помещалась в центр активной зоны. Доли изотопов америция соответствовали темпам их накопления в реакторах типа ВВЭР [7], а именно 1.3 кг $^{241}\text{Am}/\text{ГВт}(\text{э})$ год и 2.5 кг $^{243}\text{Am}/\text{ГВт}(\text{э})$ год. Шаг решетки AmO_2 -ТВЭлов изменялся с целью найти оптимальные спектральные условия для наработки плутония, пригодного для РИТЭГ. Результаты этих расчетов представлены в табл. 1.

Видно, что темп наработки плутония слабо меняется с увеличением шага решетки AmO_2 -ТВЭлов, оставаясь на уровне 1.5–1.6 кг/год. Эти величины заметно меньше темпа наработки плутония при использовании Нр-фракции МА и смеси Нр-фракции с Ам-фракцией как стартового материала [1]. Там темп наработки плутония, пригодного для РИТЭГ, составлял ~3.0 кг/год в варианте с Нр-фракцией и ~2.7 кг/год в варианте смеси Нр-фракции с Ам-фракцией. Но эти значения получены при окружении центральной ТВС слоем из шестиборок, заполненных природным свинцом. Этот слой не пропускал быстрые нейтроны деления из окружающих урановых ТВС, способные усилить накопление ^{236}Pu через $^{237}\text{Np}(n, 2n)$ реакцию. Только такое свинцовое окружение обеспечивало приемлемую долю ^{236}Pu (не более 2 ppm) в плутонии. Использование только Ам-фракции снимает необходимость защитного слоя, поскольку нет нейтронных реакций, ведущих к образованию ^{236}Pu из изотопов америция.

Более мягкий спектр в просторных решетках AmO_2 -ТВЭлов способствует накоплению ^{239}Pu в реакции $^{238}\text{Pu}(n, \gamma)^{239}\text{Pu}$ и ^{242}Pu в реакции $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Pu}$. В итоге снижается доля ^{238}Pu в плутонии. При шаге решетки более 40 мм доля ^{238}Pu может опуститься ниже 80%, что делает такой плутоний непригодным для РИТЭГ.

4. РАСЧЕТЫ НАРАБОТКИ ПЛУТОНИЯ В РЕАКТОРЕ БРЕСТ-1200

В качестве потенциальной альтернативы тепловому легководному реактору ВВЭР-1000 оценена возможность наработки плутония, пригодного для РИТЭГ, в быстром реакторе БРЕСТ-1200 со свинцовым теплоносителем.

Основные параметры модели активной зоны [8]:

Тепловая мощность — 2800 МВт

Таблица 2. Темп наработки и изотопный состав плутония в NpO_2 -ТВС

$t(\text{NpO}_2)$, мм	Pu, кг/год	$^{238}\text{Pu}/\text{Pu}$, %	$^{236}\text{Pu}/\text{Pu}$, ppm	Pu/Np, %
13.6	4.85	99.3	85.0	2.13
20	3.37	99.2	24.4	3.20
30	2.28	98.9	7.74	4.87
40	1.68	98.4	3.65	6.36
50	1.29	98.1	2.10	7.64
55	1.15	98.0	1.68	8.26

Таблица 3. Темп наработки и изотопный состав плутония в AmO_2 -ТВС

$t(\text{AmO}_2)$, мм	Pu, кг/год	$^{238}\text{Pu}/\text{Pu}$, %	Pu/Am, %
13.6	4.76	81.5	2.04
20	2.43	81.4	2.25
30	1.25	81.2	2.61

Диаметр активной зоны — 475.5 см

Высота активной зоны — 110 см

Топливо — смешанное нитридное уран–плутониевое топливо (оружейный плутоний и обедненный уран)

Диаметр топливной таблетки по зонам реактора — 7.7/8.2/9.0 мм

Толщина зазора “топливо-оболочка” — 0.2 мм

Толщина оболочки — 0.5 мм

Материалоболочки — нержавеющая сталь ЭП-823

Шаг треугольной решетки ТВЭлов — 13.6 мм

Количество ТВС по зонам разного диаметра — 148/108/76.

Сборка, предназначенная для наработки плутония с требуемым изотопным составом, представляла собой стандартную ТВС реактора БРЕСТ-1200, в которой топливо заменено сначала на Np -фракцию МА, а затем и на Am -фракцию в виде их двуокисей.

При использовании NpO_2 в качестве стартового материала требуемый изотопный состав плутония был получен только при окружении центральной ТВС двумя слоями (18 ТВС) свинцовых сборок и при достаточно просторной решетке NpO_2 -ТВЭлов. Результаты расчетов темпа наработки и изотопного состава плутония для этих вариантов приведены в табл. 2.

Видно, что основная трудность в наработке плутония, пригодного для РИТЭГ, состоит в обеспечении приемлемо низкого содержания ^{236}Pu . Для этого приходится окружать NpO_2 -ТВС слоем из 18 свинцовых сборок и увеличивать шаг решетки NpO_2 -ТВЭлов. Эти меры позволяют создать спектральные условия, необходимые для наработки плутония с требуемым изотопным составом. Темп наработки такого плутония оказывается на уровне 1.2–1.3 кг/год, что заметно ниже аналогичных

значений, достижимых в реакторе ВВЭР-1000 (см. табл. 1).

В другой серии расчетов уран-плутониевое топливо центральной ТВС было заменено двуокисью америция AmO_2 . Результаты расчетов темпа наработки и изотопного состава плутония для этих вариантов приведены в табл. 3.

Видно, что использование Am -фракции МА вместо Np -фракции позволяет существенно повысить темп наработки плутония, пригодного для РИТЭГ. Правда, доля ^{238}Pu упала с 98–99% в вариантах с Np -фракцией до 81% в вариантах с Am -фракцией, но и такой плутоний сохраняет свою приемлемость для использования в РИТЭГ. Снижение содержания ^{238}Pu вызвано усилением притока нейтронов в центральную AmO_2 -ТВС из соседних топливных сборок и более интенсивным накоплением тяжелых изотопов плутония. При использовании Am -фракции отпадает необходимость окружать центральную AmO_2 -ТВС сборками, препятствующими миграции быстрых нейтронов деления из соседних топливных сборок для достижения приемлемо малого содержания ^{236}Pu .

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представлены расчетные оценки возможности наработки плутония с изотопным составом, пригодным для РИТЭГ, в тепловом реакторе ВВЭР-1000 и в быстром реакторе БРЕСТ-1200 при использовании америциевой фракции МА в качестве стартового материала. Показана предпочтительность применения Am -фракции вместо Np -фракции и смешанной Np – Am -фракции МА. Кроме того, быстрый реактор БРЕСТ-1200 показал лучшие результаты по темпу наработки плуто-

ния, пригодного для РИТЭГ, в сравнении с реактором ВВЭР-1000.

БЛАГОДАРНОСТИ

Данная работа выполнена в рамках гранта Российского научного фонда, проект № 22-22-00287.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. *INFCIRC/153*. The Structure and Content of Agreements Between the Agency and States Required in Connection with the Treaty on the Non-Proliferation of Nuclear Weapons. 2008. Austria: IAEA.
2. *Miller W.F.* Start-Up Plan for Plutonium-238 Production for Radioisotope Power Systems. 2010. Washington: United States Department of Energy.
3. *Shmelev A.N. et al.* // J. Nucl. Eng. 2022. V. 3 (4). P. 263.
4. *Шмелёв А.Н., Гераскин Н.И., Апсэ В.А. и др.* // Известия вузов. Ядерная энергетика. 2023. № 3. С. 118.
5. *Кузьмин А.М., Шмелев А.Н., Апсэ В.А.* Моделирование физических процессов в энергетических ядерных реакторах на быстрых нейтронах. 2015. Москва: МЭИ.
6. *Абаган Л.П. и др.* Групповые константы для расчета реакторов и защиты. 1981. Москва: Энергоатомиздат.
7. *Апсэ В.А. и др.* Основы безопасного обращения и обезвреживания радиоактивных отходов. 2019. Москва: НИЯУ МИФИ.
8. *Борисов О.М. и др.* // Тр. конф. “Быстрый реактор и топливный цикл естественной безопасности для крупномасштабной энергетики: топливный баланс, экономика, безопасность, отходы, нераспространение”. 2000. Т. 15. С. 15.

Use of the Am Fraction of Minor Actinides for the Production of Plutonium Suitable for Radioisotope Thermoelectric Generators

A. N. Shmelev¹, N. I. Geraskin¹, V. A. Apse¹, V. B. Glebov¹*,
G. G. Kulikov¹, E. G. Kulikov¹, and A. E. Kruglikov¹

¹National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

*e-mail: vbglebov@mephi.ru

Received June 29, 2023; revised July 3, 2023; accepted July 10, 2023

Abstract—The article considers the possibility of producing plutonium suitable for radioisotope thermoelectric generators (RTG) of space vehicles, using the americium fraction of minor actinides (MA) as a starting material. It was supposed to place such a starting material in the central fuel assembly of the VVER-1000 light water reactor and the lead-cooled fast reactor BREST-1200. The preference for using only the Am-fraction of MA instead of the Np-fraction and the mixed Np–Am-fraction of MA is shown. The main advantage of the Am fraction is the fundamental impossibility of the appearance of undesirable ²³⁶Pu with hard γ -radiation of its decay products. A comparison of the conditions for the production of plutonium suitable for RTGs in the VVER-1000 and BREST-1200 reactors indicates a higher rate of production of such plutonium in the BREST-1200 fast reactor.

Keywords: plutonium, radioisotope thermoelectric generators, minor actinides, light water reactors, lead-cooled fast reactors