



MTA KK Izotóp- és Felületkémiai Intézet
Sugárbiztonsági Osztály, 1525 Budapest, Pf. 77



Aktinoidák transzmutációja GeV energiájú részecskékkel

Spalláció, nukleáris hulladék, villamosenergia-termelés

Veres Árpád
E-mail: veres@iki.kfki.hu

*Az „Őszi Radiokémiai Napok” (2001. okt. 17-19, Mátraháza)
konferencia meghívott előadás bővített anyaga.*

IKI - 2002 - 01 sz. kiadvány

1. BEVEZETÉS

Hazánkban a sugárveszélyes (radioaktív) hulladékok elhelyezésének egyes kérdései már a mesterséges radioaktív izotópok első hazai felhasználását (1954) követően felvetődtek.

Akkor még az **orvosi, biológiai és mezőgazdasági** alkalmazásokban, elsősorban rövid (néhány órás, napos) felezési idejű, kis intenzitású és kevésbé veszélyes radioizotópokat használtak. Az **ipari radiográfia forrásai** pedig főleg a 75 napos ^{192}Ir és az 5.3 éves felezési idejű ^{60}Co 1-5 Ci (50-200 GBq) nagyságrendű zárt sugárforrások voltak. 1958-ban az országosan erősen növekvő izotóp-alkalmazás elősegítésére létrehozták az Izotóp Intézetet. 1959-ben felépült a KFKI **kutató reaktor** és 1961-ben beindult a hazai izotóptermelés. Ez még indokoltabbá tette a keletkező sugárveszélyes hulladékok biztonságos feldolgozásának és elhelyezésének megteremtését. Így az IKI-ben az 1969-79-s években kísérleteket folytattak a **radioaktív hulladékok mennyiségének csökkentésére**: *hamvasztással, radioaktív szennyvizek ülepítésével és bepárlásával*. Előtanulmány jelent meg a kis- és közepes aktivitású hulladékok elhelyezésére földalatti geológiai képződményekben. A felhasználások során keletkezett radioaktív hulladékok biztonságos elhelyezésére először **Solymáron** készült el egy földbe süllyesztett, zárt tartályokból álló **hulladéktároló**, majd **Püspökszilágyon** épült egy hulladék-feldolgozásra és hosszabb tárolásra is alkalmas üzem.

Újabb problémákat vetett fel a **Paksi Atomerőmű** beindulása az atomerőmű **kiégett fűtőelem-kötegeinek** felhalmozódásával. A külföldi beruházó a kiégett fűtőelemek visszavételére kötelezettséget vállalt, így csak **rövidtávú pihentető tárolók** tervei készültek. A külföldi beruházó a visszavételi kötelezettségét visszavonta, ami újabb stratégia megalapozását és kidolgozását igényelte, így átmeneti száraz tárolók építésére került sor. Az e célból létrehozott (back-end) szakértő bizottsági vélemény hangsúlyozza, hogy az üzemanyag-ciklus lezárása tekintetében tudatos kutató-fejlesztő és előkészítő tevékenységre, van szükség az „aktív ismeretszerzés” érdekében arra az időszakra, amikor a kiégett atomerőművi fűtőelemek feldolgozása műszakilag is megoldhatóvá válik.

A kiégett fűtőelemek rohamos növekedésével járó környezetvédelmi veszélyek, a nukleáris hulladék elhelyezéssel szembeni lakossági ellenállások, félelmek és a növekvő energiaigények új eljárások keresésére ösztönözték az egész világon a szakembereket, a hosszú felezési idejű nukleáris hulladékok átalakítására (elégetésére), megsemmisítésére és új, „tisztább” energiaforrások feltárására. E célok érdekében bocsátjuk útjára e kiadványt.

A kialakult helyzet előzményei, főbb okai:

A). Társadalmi megítélés terén:

A Japánra ledobott két atombomba, az atom- és a hidrogénbomba kísérletek, a csernobili reaktor-katasztrófa, a hosszú felezési idejű és nagymennyiségű nukleáris hulladékok felhalmozódásának mértéke, a félelem sugárveszélytől igen erős társadalmi elutasítást szült a sugárzó anyagok mindennemű alkalmazásával szemben az egész világon.

B). Energiaigények vonatkozásában:

Földünk népességének, (jelenleg 6,1 Milliárd fő), ~ 10 Gigatonna olaj-ekvivalens a becsült évi energiaigénye. A század végére a népességet 15 Milliárd főre és az energiaigényt ~ 40 Gt olaj-ekvivalensre prognosztizálják. (1 Gigatonna olajenergia ~ ekvivalens 10 Terawattóra villamos energiával). Az energiatermelési rendszerek lassan változnak, de „spirál-mechanizmus” szerint szén → gáz → nukleáris vagy → megújuló energiarendszerek fejlesztésével folynak. Az atomerőművek a villamosenergia termelésében a világ számos országában, így nálunk is jelentős részt (világátlag: 17 %, USA: 15 %, EU-átlag: 35 %) képviselnek. Ez számos problémát is szült, ami újabb és újabb erőforrások keresésére ösztönözte a kutatás-fejlesztőket és az energiapolitikusokat.

C). Az előadás célja:

Vázolni a spalláció adta új nukleáris hulladék-feldolgozási és energiatermelési lehetőségeket.

Az előadás keretében körvonalazzuk a:

- transzmutáció reakciómechanizmusait;
- protongyorsítók és a spallációs neutronforrások főbb jellemzőit;
- kiegített fűtőelemek és targetek kémiai elválasztás módszereit;
- nukleáris hulladékok felhalmozódásának csökkentésére és azok hasznosítására energiatermelés céljára eddig tanulmányozott eljárásokat, valamint nemzetközi programokat.

2. AZ ATOMMAG TRANSZMUTÁCIÓI

- **KISENERGIÁJÚ** magreakciók (meV-MeV).

Részecskék (p, n, stb.) befogása (>32 reakciótípus).

- **MAGHASADÁS** ($n_t = 0,025$ eV, $n_{gy} = 0,5-15$ MeV):

Hasadáskor két (90 és 130 tömegszám körüli) atommag és 2-3 neutron keletkezik.

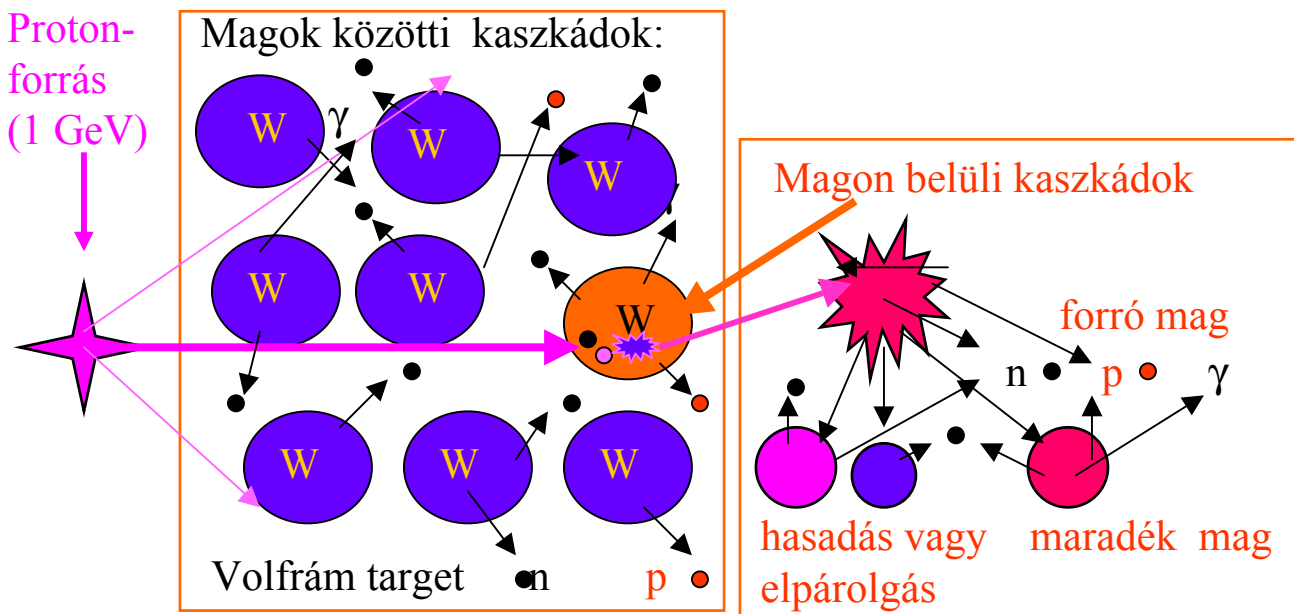
E két kölcsönhatási forma jól ismert, így a továbbiakban ezekkel nem foglalkozunk.

■ **SPALLÁCIÓ** (1947, Serber; USA)

Ha az atommagot **igen nagy energiájú (GeV) részecskékkel** (proton, foton, stb.) bombázunk, sok könnyű részecske és atommag-képződmény keletkezik. Ezt a reakciótípust **spallációnak** nevezzük.

- **Hadronos spalláció:** A hadron mezonok (*pion, kaon eta-mezon*), barionok (*p, n, hiperon, stb.*) és *antirészecskék* által kiváltott spalláció.
- **Fotonos spalláció:** (γ -foton, fékezési sugárzás)

GeV-s protonok spallációs folyamatai



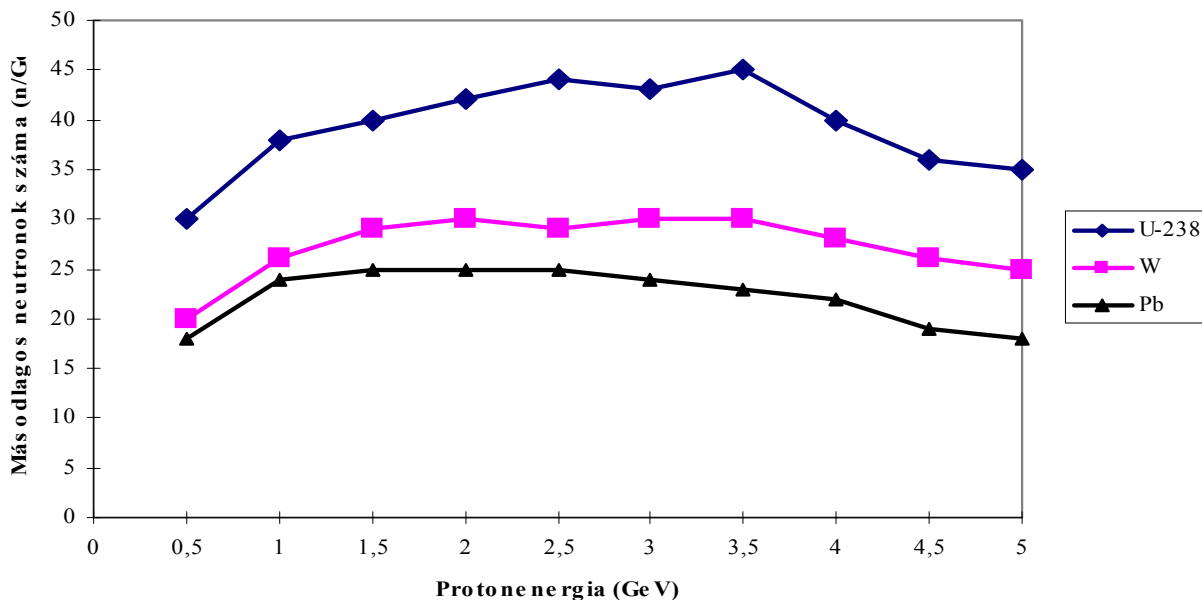
1. ábra. A nagyszámú lehetséges kaszkád folyamatok közül szemléltetésül feltüntetünk néhány részecske emissziót és más eseményt.

A nagyenergiájú protonrészecske szabad úthossza az atommag belsejében összemérhetővé válik az atommag átmérőjével, így egyszeri vagy többszöri ütközés után energiájának egy részét elvesztve is elhagyhatja még a magot. Az egyensúlyi időt könnyű magok esetében 10^{-22} s nagyságrendűnek észlelték, amely nehéz ionok által indukált reakciókban $(2-4) \times 10^{-22}$ s. Az Intra nukleáris modell-számítások szerint az egyensúlyi feltételekhez az atommagban visszamaradó részecskéknek az energiája azonban - a Fermi szeparációs energia felett - nem haladhatja meg a 40 MeV-t. Viszont az ütközések során leadott energia rovására részecske **emisszióra** is sor kerülhet. Az ilyen **kaszkád-emisszió** után is az atommag még mindig igen erősen **gerjesztett** állapotban maradhat és ezt a gerjesztési energiát is újabb részecskék, vagy különböző összetett képződmények elpárologása útján adja le.

A **protonok hatótávolsága** urán targetban ilyen GeV protonenergiáknál már **több deciméter**.

A kibocsátott neutron spektruma folytonos, találhatóak 1 keV és 1 MeV közötti (tipikus párologási spektrumra jellemző) neutronok is. Két MeV körül egy jól kifejezett csúcs is jelentkezik.

GeV-s protonok spallációs-neutronhozama



2. ábra. Neutron/proton hozam energiafüggése Pb, W és ^{238}U targetben, (W. Gudowski, Nucl. Phys. A663&664, 169c; 2000)

Hasadási neutronhozam becslése

• Ismert, hogy ^{235}U atommag 86 %-os valószínűséggel szenved hasadást : $^{235}\text{U}(n,f) \rightarrow$ hasadási termékek + **200 MeV/hasadás** energia és 2,493 neutron keletkezik. Ha a hasadást nem kísérné fenti neutron kibocsátás, akkor 500 hasadás esetén **100000 MeV** energia szabadulna fel. A felszabaduló energia 44 %-s hatásfokkal **~ 440000 MeV** villamos energiává lenne konvertálható. A gyorsító ezt 45 %-s hatásfokkal $440000 \times 0,45 =$ **198000 MeV** protonnyaláb energiává tudná átalakítani, ami egy 1600 MeV-s proton esetén $198000/1600 =$ **123,75 proton** keletkezését eredményezhetné. Ennél a protonenergiánál ~ 40 neutron/proton (2. ábra), tehát $12,375 \times 40 =$ 495 spallációs neutron keletkezik, ami $495 \times 0,86 \sim$ **425,7 ^{235}U hasadását** idézhetné elő. Ha hasadásonként nem 0, hanem a valós **2,493 neutron** keletkezését vesszük figyelembe, akkor a hasadási neutronok száma: $500 \times 2,493 =$ 1246,5 n és spallációs neutronok száma: 495 n \sim **1741,5**; illetve $1741,5/500 \sim$ **3,483 neutron/hasadás**. Ez a $3,483 - 2,493 \sim$ **1** neutron többlet hasznosítható a hosszú felezési idejű nukleáris hulladékok elégetésére, ami jelentős energiátöbblet előállítását is eredményez.

3. A GYORSÍTÓVAL HAJTOTT TRANSZMUTÁCIÓS RENDSZEREK

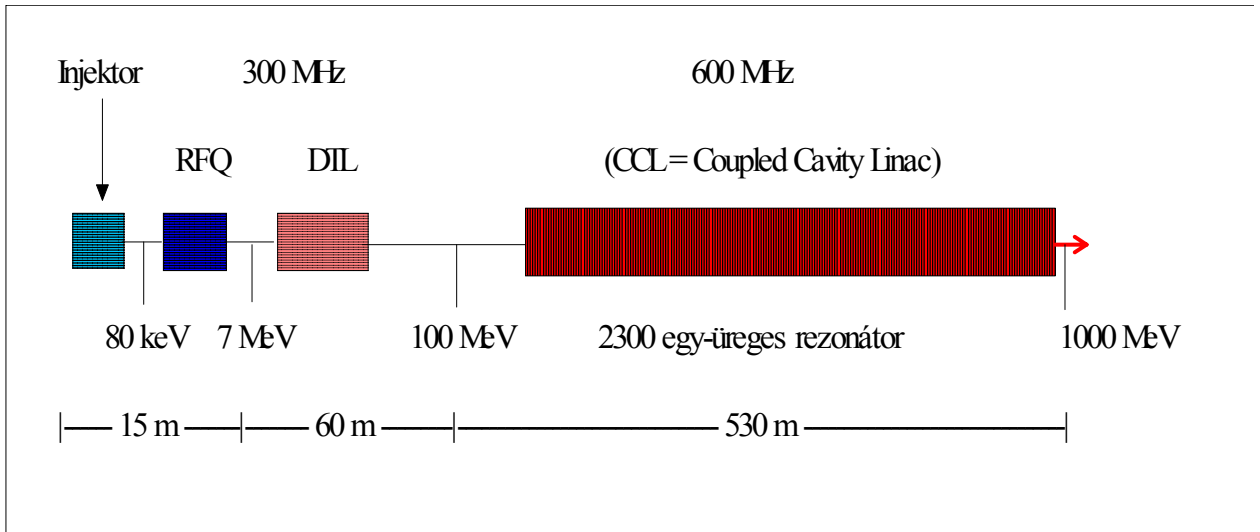
Noha az 1990-s évekig számos különböző nagy energiájú részecskegyorsítót (lásd 1. táblázat) fejlesztettek ki, azokat döntő részben fizikai (részecskék kölcsönhatásainak vizsgálata), kémiai (izotóp előállítás, egyes anyagok szerkezeti vizsgálata), orvosi (diagnosztikai) és biológiai kutatások céljaira használták. Kevésbé alkalmazták a spalláció adta új lehetőségekre (nukleáris hulladékok elégetésére és villamosenergia termelésre). Az elektrosztatikus gyorsítóknál a részecske nagy potenciálkülönbségű teret egyszer fut át. A rezonancia gyorsítóknál kis potenciálú teret többször körpályán (Ciklotron), vagy egyenes mentén (Lineáris gyorsító) fut át. Változó mágnes teret alkalmazó berendezések a betatron, protonszinkrotron. A tárológyűrűkben a fölgyorsított részecskék napokig tarthatók körpályán és ütköztethetők egymással is. Az 1980-as évektől a spallációs hulladékcsökkentés és villamosenergia termelés megoldására széleskörű kutatás-fejlesztési tevékenység folyik óriási erőfeszítésekkel nemzeti és nemzetközi programok keretében.

1. táblázat 1981-ig üzembe helyezett nagyobb részecskegyorsítók

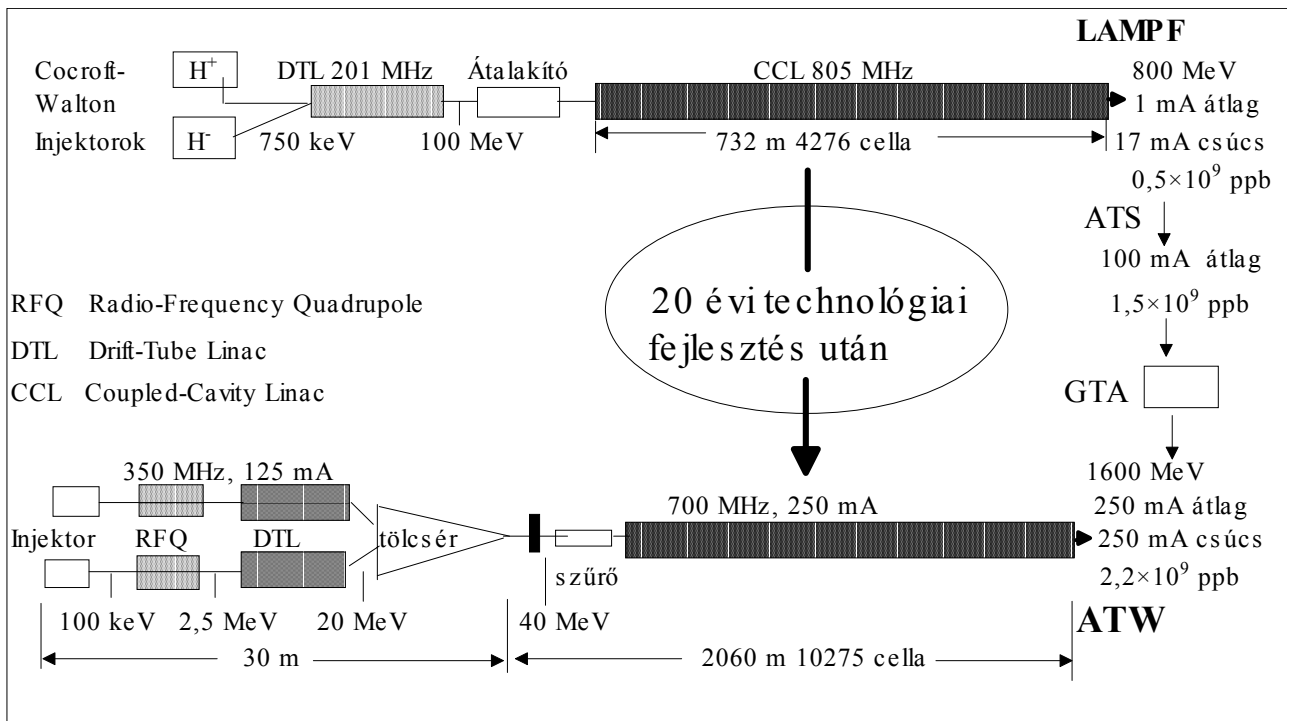
<i>Gyorsító típusa</i>	<i>Részecske</i>	<i>Név</i>	<i>Hely</i>	<i>E_{max} (GeV)</i>	<i>Indítás éve</i>
Lineáris rezonancia	elektron	SLAC 1	Stanford (USA)	20	1966
Elektron-szinkrotron	elektron	Cornell-sz.	Cornell-egy. (USA)	12	1967
Elektron-szinkrotron	elektron	DESY	Hamburg (NSZK)	7	1964
Elektron-szinkrotron	elektron	LNS	Tohoku-egy. (Japán)	1,3	
Proton-szinkrotron	proton		Szerpuhov (SZU)	76	1967
Proton-szinkrotron	proton	FNAL	Batavia (USA)	400	1972
Proton-szinkrotron	proton	SPS	Genf (CERN)	400	1976
Proton-szinkrotron	proton	Tevatron	Batavia (USA)	1000	
Proton-szinkrotron	proton	UNK	Szerpuhov (SZU)	3000	
El.-pozitr. Tárológyűrű	el., pozitron	SPEAR	Stanford (USA)	2×4	1973
El.-pozitr. Tárológyűrű	el., pozitron	DORIS	Hamburg (NSZK)	2×5	1974
El.-pozitr. Tárológyűrű	el., pozitron	VEPP	Novoszibirszk (SZU)	2×7	1978
El.-pozitr. Tárológyűrű	el., pozitron	PETRA	Hamburg (NSZK)	2×19	1978
El.-pozitr. Tárológyűrű	el., pozitron	PEP	Stanford (USA)	2×15	1980
El.-pozitr. Tárológyűrű	el., pozitron	LEP	Genf (CERN)	2×50	
Pr.-pr. Tárológyűrű	pr., pr.	ISR	Genf (CERN)	2×30	1971
Pr.-pr. Tárológyűrű	pr., pr.	Isabelle	Brookhaven (USA)	2×400	
Pr.-pr. Tárológyűrű	pr., pr.	Tevatron	Batavia (USA)	2×1000	
Pr.-antipr. Tárológyűrű	pr., antipr.	SPS	Genf (CERN)	2×270	1981

3.1. A spalláció alapvető berendezései

A) Protongyorsítók sémái



3. ábra. Az 1 GeV-s, 100 mA nyalábáramú protongyorsító blokkdiagramja (Kazaritsky és mások, Nucl. Instr. Meth. **A414**, 21, 1998).

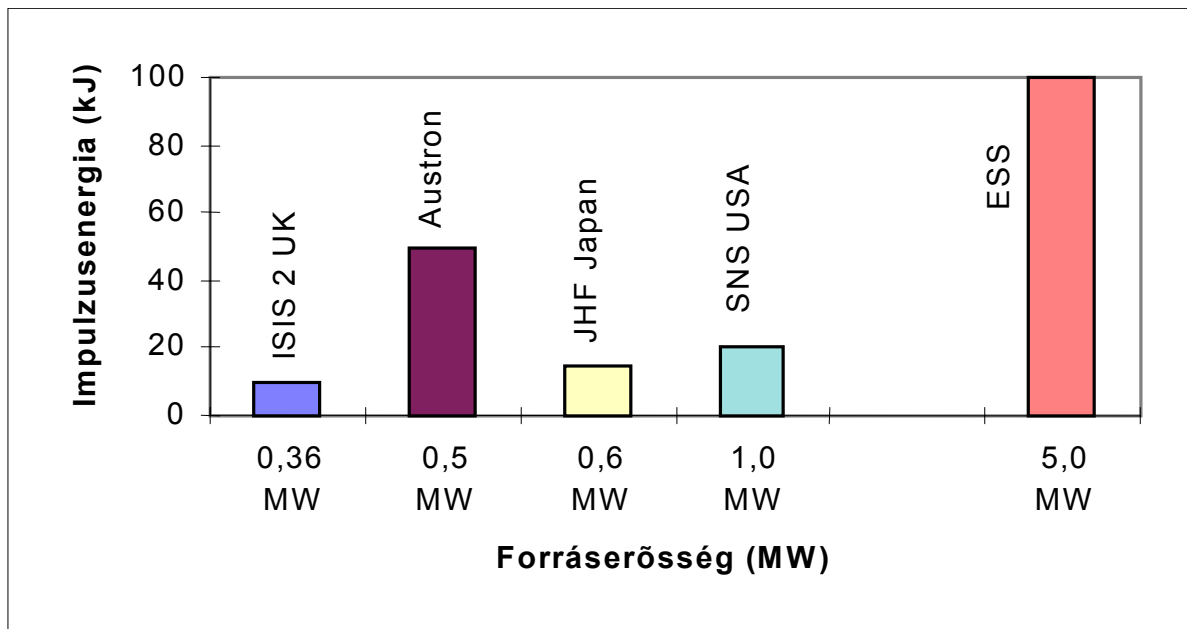


4. ábra. Lineáris protongyorsítók fejlődése (1972-92) az USA-ban, (Bowman és mások, Nucl. Instr. Meth. **A320**, 336; 1992).

A 3. ábrán bemutatott gyorsítóval hajtott szubkritikus reaktorrendszer 400 kg/év atomfegyver tisztaságú ^{239}Pu és 100 kg/év aktinoida átalakítására képes. A 4. ábrán pedig az USA-ban a gyorsítók teljesítményének 20 év alatt végbe ment fejlődését szemléltetjük.

B). Spallációs neutron források

Az üzemelő spallációs neutronforrások teljesítmény adatait és két építés alatt álló, (ESS, AUSTRON) berendezés néhány adatát az 5. ábrán láthatjuk. Ezek elsődleges céllal a különböző tudományterületek igényeinek kielégítésére készültek. A nukleáris hulladékok elégetése és a szubkritikus erőművek üzemeltetése az igen nagy intenzitású gyorsítókat és spallációs forrásokat részesítik előnyben.



Az ESS (E) létesítésének időskálája

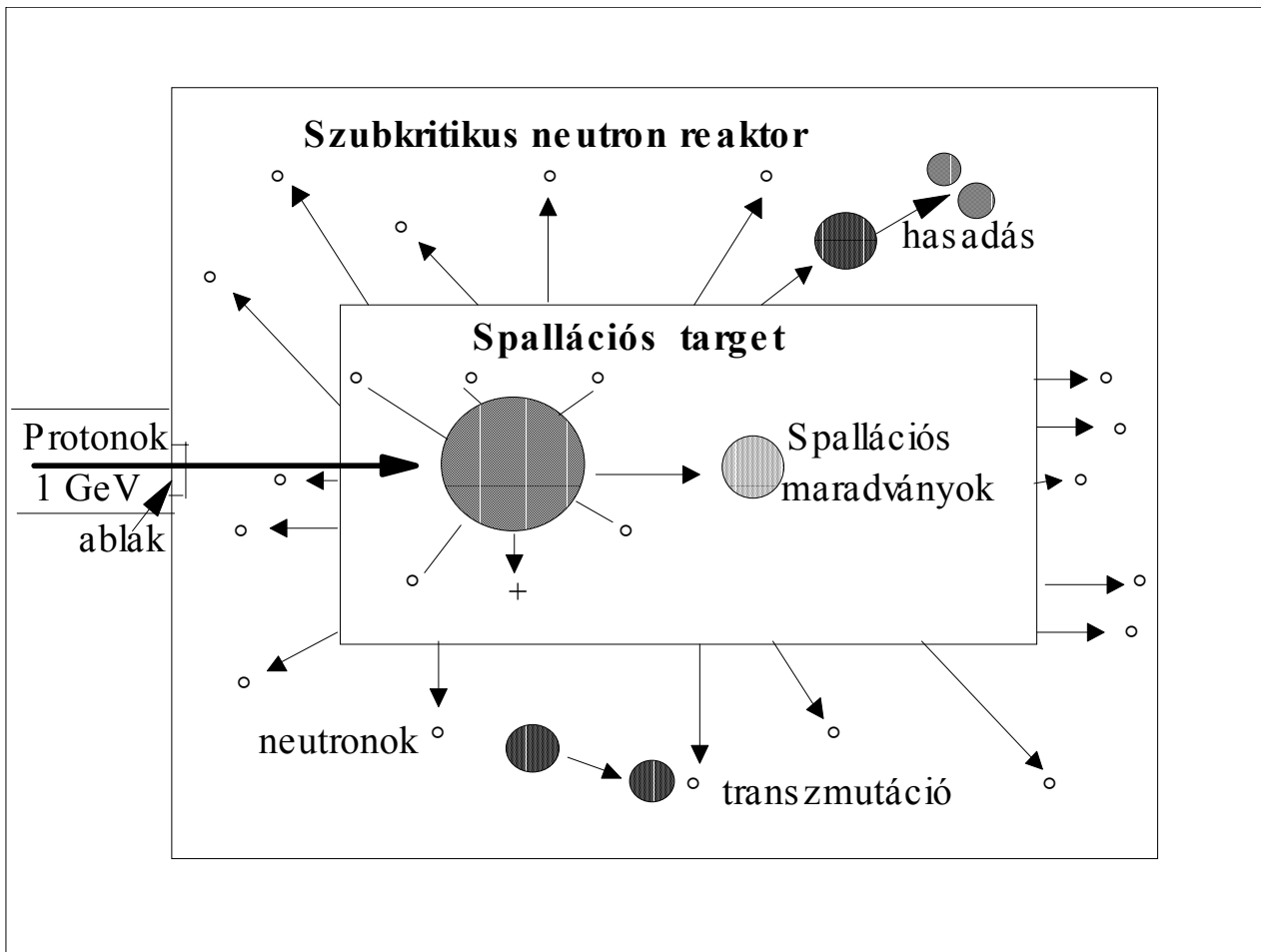
1990 91 92 93 94 95 96 97 98 99 2000 01 02 03 04 05 06 07 08 09 2010

Előtanulmány	Kivit.-tan.	K+F	Tervezés	Építés	Beüzemelés
protonhozam:		(E) $\sim 2,1 \times 10^{15}$ p/s; (A) $\sim 1,95 \times 10^{15}$ p/s;			
n-fluens (csúcs):		(E) $\sim 2,6 \times 10^{16}$ n/cm ² ; (A) $\sim 7,5 \times 10^{15}$ n/cm ² ;			
proton impulzushossz:		(E) $< 1 \mu\text{s}$; (A) = 0,44 μs ; (E)			
Össz. ktg:		(E) 935 MEcu (1992), Múltkgt/év: 85 MEcu, 570 fő;			
Össz. ktg:		(A) 337,4 MEcu (1994);			

AUSTRON (A); Tanulmányterv kezdete: 1992 év. Létesítési terv és indítás: 1998 -2007 év.

5. ábra. Az Angol, Japán, USA működő és a tervezett ESS és AUSTRON n-források főbb adatai.

C). A spallációs target

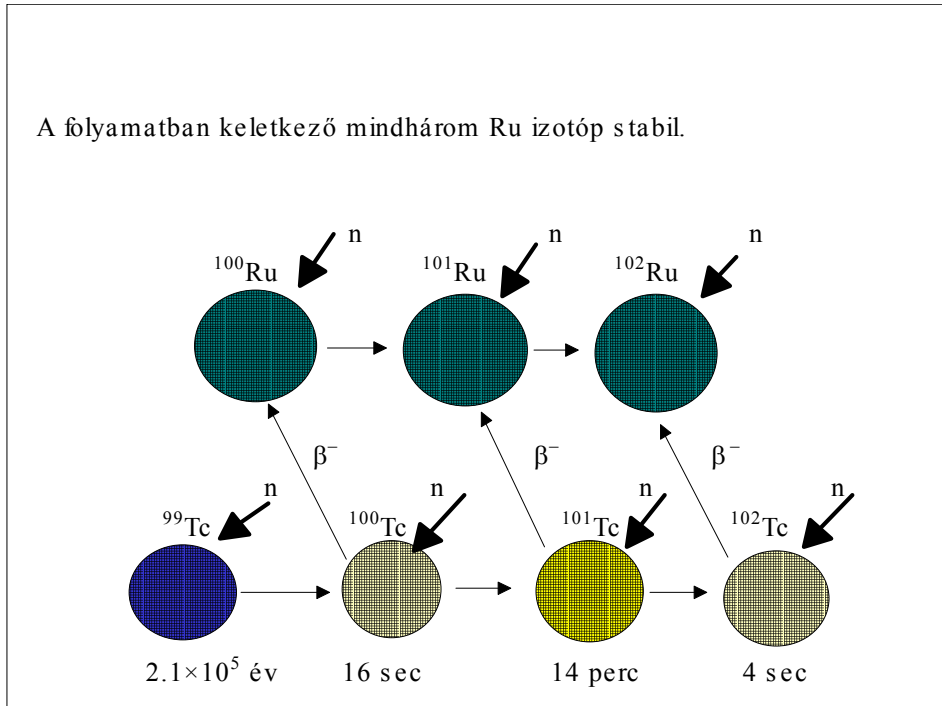


6. ábra. A spallációs target és szubkritikus reaktorzóna kapcsolat sémája

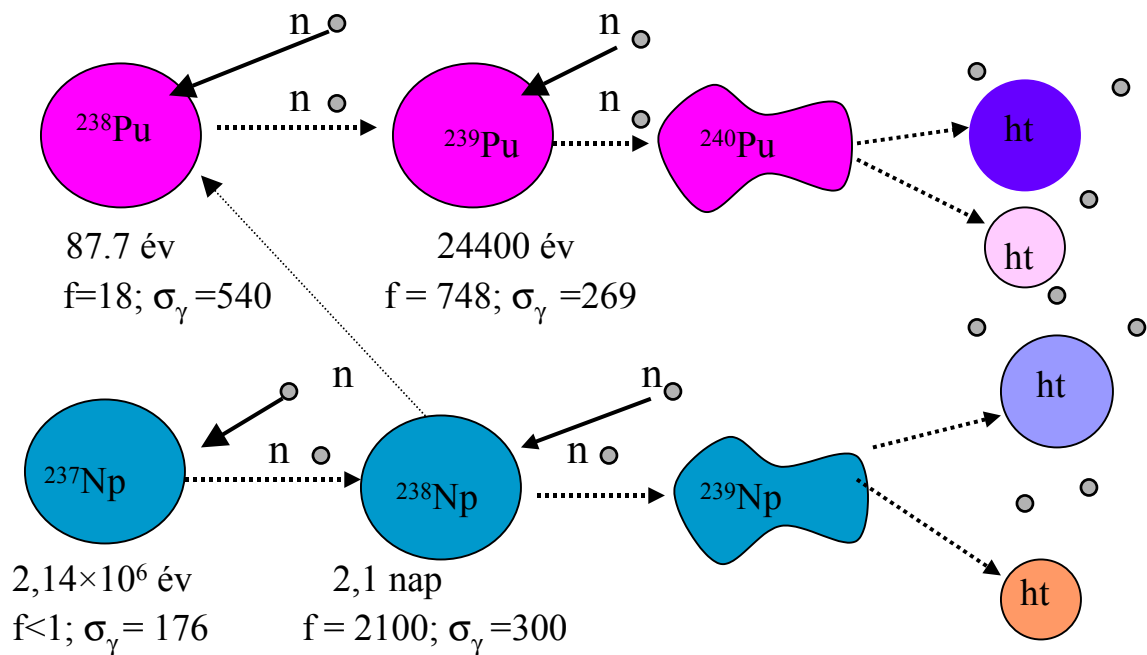
A 6. ábrán a protongyorsító → spallációs target → szubkritikus reaktor kapcsolat egyszerűsített sémáját ábrázoltuk. A target lehet urán és más nehéz fém, hasadási termék, vagy aktinoida. Két ígéretes technikai megoldás: a szilárd wolfram rozsdamentes acél tokozással, vagy a primer hűtőhurokban alkalmazott folyékony fém (ólom-bizmut eutektikum). Ez utóbbi eutektikummal 70 reaktor év tapasztalat van. Előnye a kémiai ellenálló képesség, magas hőmérsékleti stabilitás, viszonylag alacsony olvadási hőmérséklet, (123,5 C), jó hővezető-képesség és nincs jelentős szilárdulási térfogatnövekedés (ugyanis már kismértékű térfogatnövekedés is okozhat kristályosodást, ami óvatosságra int).

Bemutatjuk még a ^{99}Tc és a ^{237}Np átalakítási folyamatait (7-8 ábra). A könnyűvízes reaktorokban csak a ^{239}Pu , ^{241}Pu és a Cm izotópok termelnek többlet neutronokat, míg ^{237}Np , ^{238}Pu , és a ^{241}Am igen nagy neutronfluxust igényeknek a hasadás fenntartásához.

D. Spallációs neutronok által indukált transzmutációk



7. ábra. A ^{99}Tc transzmutációs folyamata

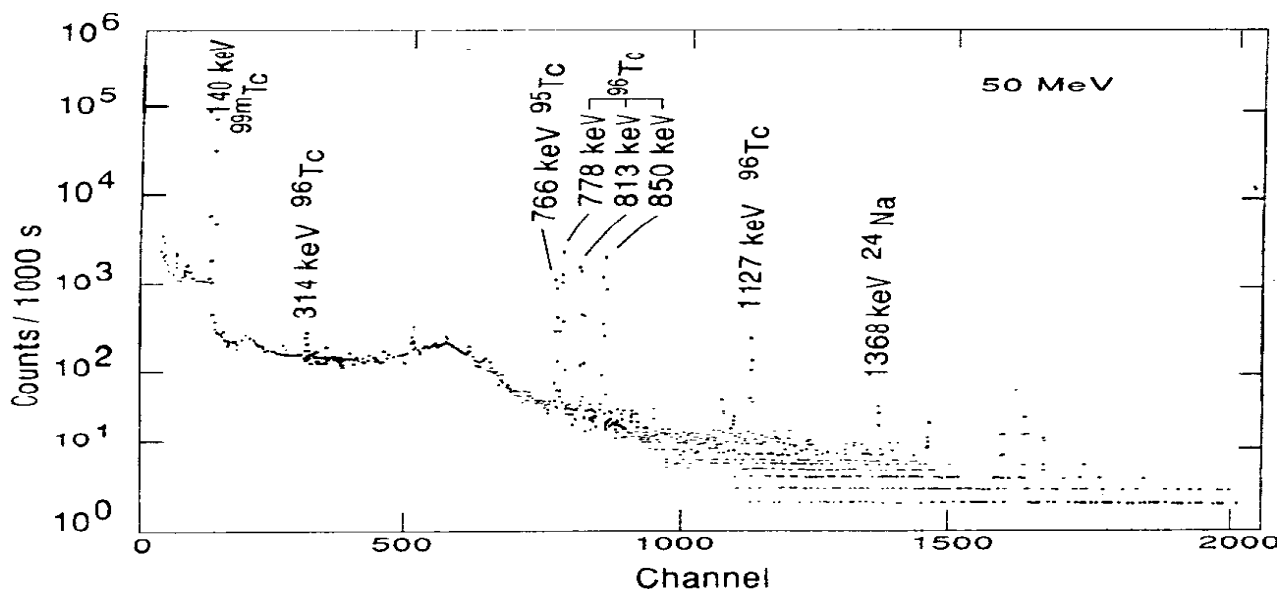


8. ábra. A ^{237}Np aktinoida kétlépéses hasadása. Egy hasadás minimum 4 n-t igényel, így a minimális fluxus: $\phi_{\min} = (2-3) \times 10^{15}$ n/cm²s. Az f a hasadás és a σ_γ a neutronbefogás hatáskeresztmetszete.

3.2. Transzmutáció fotonokkal

Az alfejezet célja, hogy a közepes és nagy energiájú gamma (fékezési) sugárzással hajtott transzmutáció teljesítőképességéről és a hosszú felezési idejű nukleáris hulladékok elégethetőségéről (csökkentéséről) szolgáltatson némi tájékoztatást. Ismeretes, hogy a foton-atommag kölcsönhatások több nagyságrenddel kisebbek a neutron-atommag és a proton-atommag reakciók hatáskeresztmetszeteknél. Viszont a részecske ((proton, neutron, stb.) befogását - például az (n,γ) reakciókat kísérő kötési energiának megfelelő energiájú - gammakvantum kibocsátás igen nagyintenzitású gamma-sugárforrássá is válhat. A folyamat vizsgálata fontos még azért is, mert nem ismerjük, hogy van-e a kölcsönhatás jellegéből eredő, figyelembe veendő mértékű különbség a foton- nukleon elektromágneses és a nukleon-nukleon kölcsönhatások között.

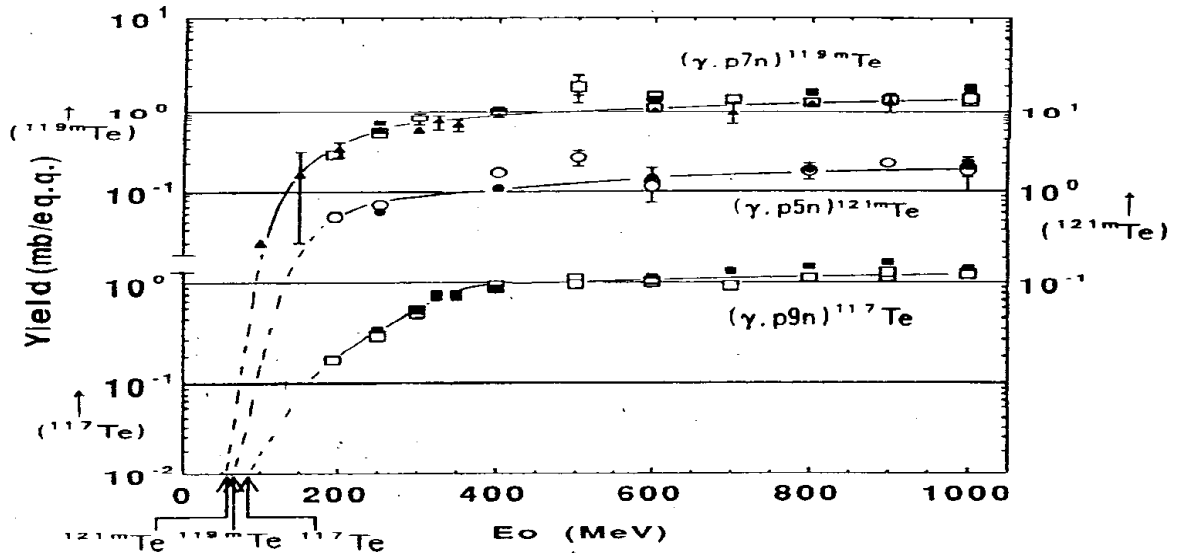
A 9. ábrán az IKI (Budapest) és a Tohoku Egyetem (Sendai, Japán) együtt-működés keretében ^{99}Tc fékezési sugárzással (50 MeV végpont energia) gerjesztett (γ,xn) reakciótermékeinek γ -spektruma látható. A spektrum alapján az egyes reakciók gerjesztési függvényeit és az integrális hatáskereszt-metszeteket határoztuk meg. A 7. ábrán a neutronbefogás stabil ruténium végtermékekhez vezet, a (γ,n) és $(\gamma,2n)$ reakciók viszont a $(4,2 \times 10^6 \text{ év})$ és a ^{97}Tc ($2,6 \times 10^6 \text{ év}$) izotópot is létrehozzák, a ^{98}Tc 754 és 652 keV vonalait nem tudtuk azonosítani a spektrumban, a ^{97}Tc pedig elektronbefogással bomlik).



9. ábra. Besugárzott Tc-minta γ -spektruma, (Lakosi és mások, (Radiochimica Acta, **63**, 23; 1993)

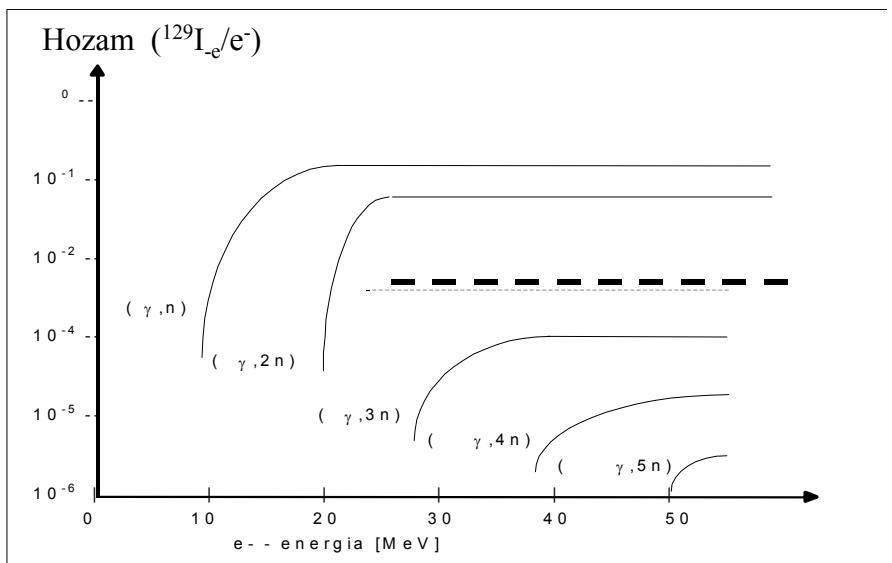
3.3. Fotonspalláció

A fotonspallációs hozamokat a 30 - 1050 MeV energiatartományban 100 MeV-s lépésekben vizsgálták (S. R. Sarkar és mások, *Radiochimica Acta*, **55**, 113; 1991). Hét target-magot (^{197}Au , ^{139}La , ^{133}Cs , ^{127}I , ^{89}Y , ^{59}Co , és ^{51}V) sugároztak be 1,3 GeV elektron-szinkrotron fékezési sugárzásával (INS, Tokió) és mintegy 40 végmag hozamát mérték meg. Ismeretessé vált, hogy a foton-spallációs folyamatok dominálnak a kimenő csatornáknban, beleértve a hasadást, a mag fragmentálódást és a szimpla $(\gamma, \pi^{\pm}xn)$ reakciókat.



10. ábra. A $^{127}\text{I}(\gamma, xn)$ spallációs magreakció-hozamai az E_0 energia függvényében. A \circ és \square jelű adatok Sarkar fenti, a \bullet Andersson *Nucl. Phys.* **A197**, 44 (1978), a \blacksquare és \blacktriangle jelű adatok Jonsson *Nucl. Phys.* **A153**, 32 (1970) munkák eredményei.

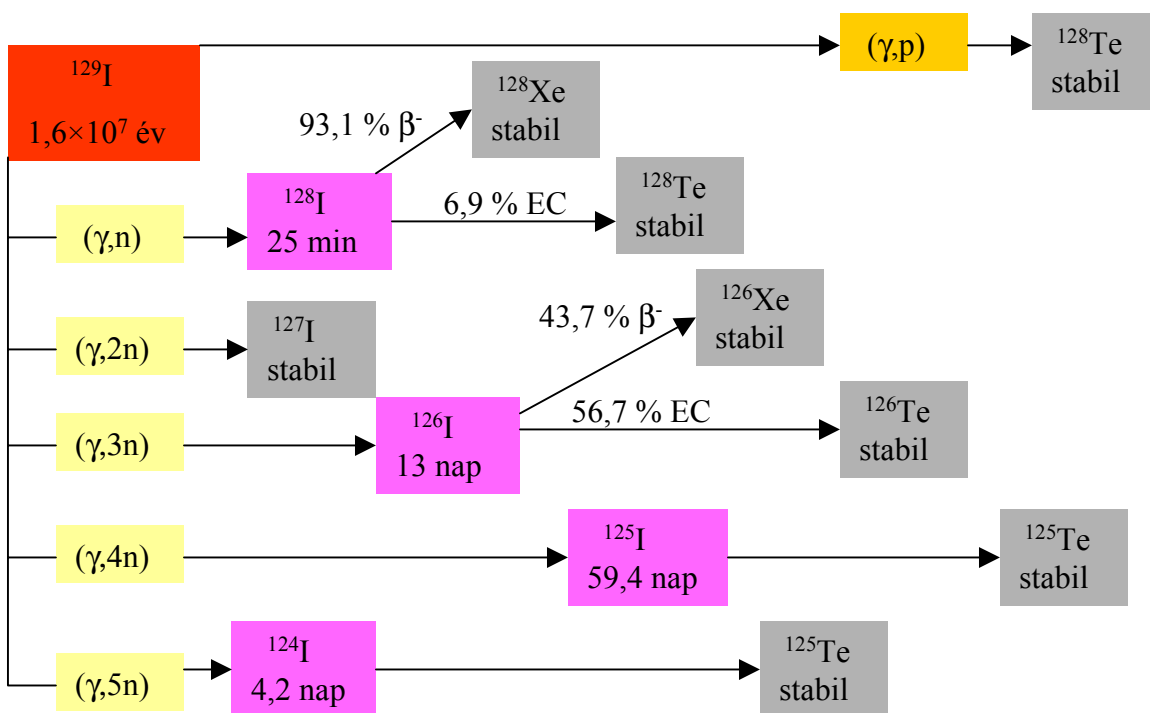
11. ábra. $^{129}\text{I}(\gamma, xn)$ transzmutációs hozama 2,3 kg/cm² mintában, a 9-50 MeV energiatartományban, elektronháj nélkül. A fékezési-sugárzás konvertere 5 mm Pt. A szaggatott egyenes az (γ, n) reakció hozama az elektronháj jelenlétében. (Sáfár, *Proc. 9th Int. Symp. Capt γ -Ray Spectr.* 797, ed. Springer, Budapest, 1997)



A 10. ábrán a $^{127}\text{I}(\gamma, xn)$ spallációs reakciók n-hozamait és a hozamgörbék jellegét szemléltetjük.

A ^{129}I transzmutációs hozamait, 2.3 kg/cm² mintában, 5 mm vastag platina konverter esetében a 11. ábra mutatja. A szaggatott egyenes a $^{129}\text{I}(n,\gamma)$ reakció hozama elektronhég jelenlétében. Kedvezőbb hozamokat érhetnénk el az elektronhég eltávolítása esetén. A 9-50 MeV gyorsító-energia tartományban az optimális hozam 20 MeV körüli elektrongyorsítással és 5 mm platina konverter alkalmazásával kapható. A számításaink azt mutatták, hogy (γ,n) és $(\gamma,2n)$ reakciók hozamaival csupán 1,35%+0,32% -kal csökkenthető a ^{129}I atomok száma, így ezek a hatásos "elégetés"-hez korántsem elégségesek. Lényegesen nagyobb fluxusú és energiájú gyorsítókra lenne tehát szükség.

A ^{129}I hasadási termék, hosszú felezési ideje ($15,7 \times 10^6$ év) és migrációs természete miatt egy fontos izotópja a transzmutációs vizsgálatoknak.



12. ábra $^{129}\text{I}(\gamma, xn)$ x=1,2,3,4,5 és (γ, p) reakciók bomlási lánc, (Veres és mások, Fizikai Szemle, 50/11, 399; 2000),

A fenti ábrán mutatott transzmutációs láncból láthatjuk, hogy valamennyi reakció stabil atommaggá, vagy néhány napos rövid felezési idejű izotóppá alakul át és az utóbbi szintén stabil izotóppá bomlik.

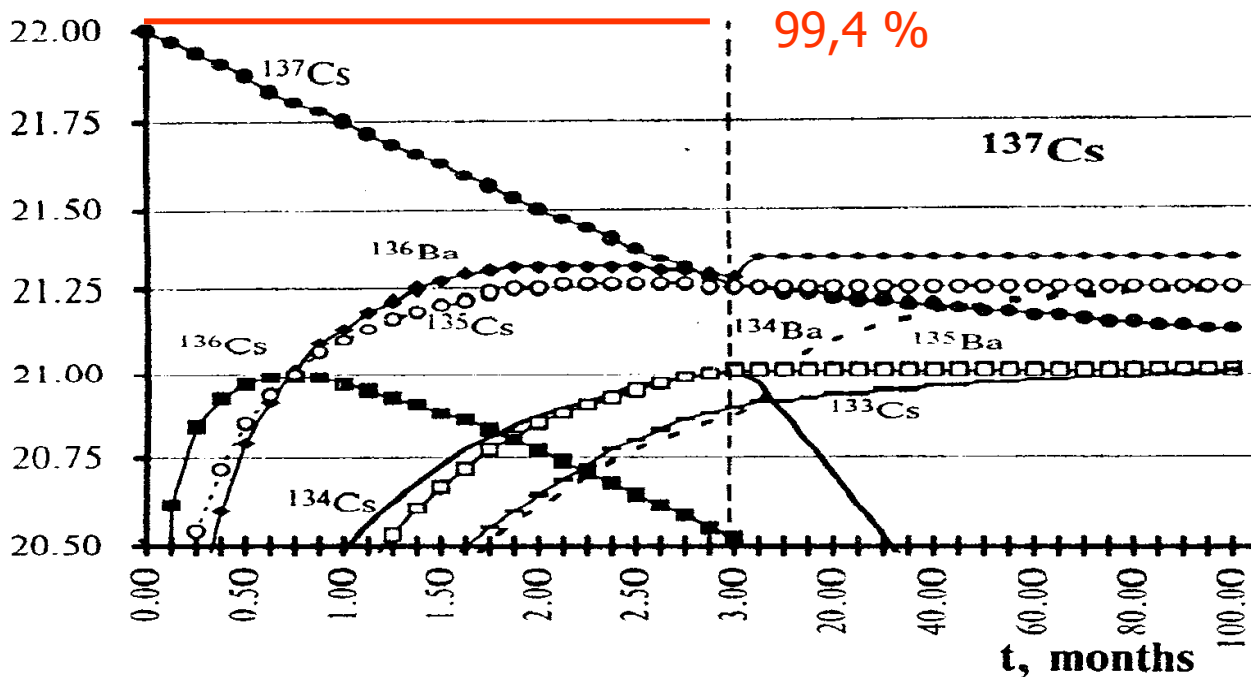
A ^{90}Sr és a ^{137}Cs hasadási termékek átalakítását, (elégetését) elektron-gyorsítók fékezési sugárzásával, (γ, n) reakcióval Matsumoto vizsgálta (Nucl. Instr. Meth. **A268**, 234; 1988). Számolta az elégetés mértékét a foton intenzitása, energiája és a besugárzási idő függvényében.

Ha a fluxus: $< 10^{17} \text{ } \gamma/\text{cm}^2\text{s}$, nem várható számottevő elégetése.

$10^{18} \text{ } \gamma/\text{cm}^2\text{s}$ intenzitású forrással, 0,2 éves besugárzásával a kiinduló aktivitásérték a felére csökken;

$10^{19} \text{ } \gamma/\text{cm}^2\text{s}$ fluxusnál pedig 2,6%-ra csökken, tehát az elégetés rendkívülien hatásos lehet;

$> 10^{19} \text{ } \gamma/\text{cm}^2\text{s}$ fluxusú forrással még jelentősebb elégetés lenne elérhető, ami a távolabbi jövőben talán gammalézerrel kifejleszthető lenne.



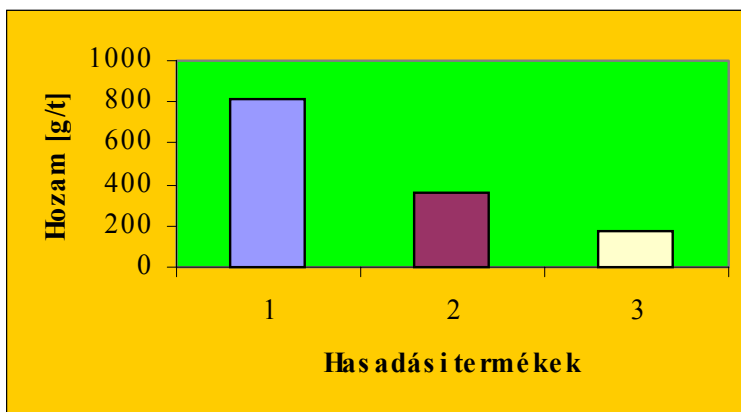
13. ábra. ^{137}Cs hasadási termék transzmutációja, (Borodina és mások, NPI MSU Preprint - 98-41/52.

A fenti ábrából megállapítható, hogy 3 hónap alatt a spontán bomlásból eredő csökkenés=0,6 %, míg a besugárzás hatására a ^{137}Cs magok száma negyedére csökken. A bomlástermékek közül egyedül a ^{134}Cs 2éves felezési ideje figyelemre méltó.

4. A NUKLEÁRIS HULLADÉKOK KELETKEZÉSE, FEHALMOZÓDÁSA

4.1. Hasadási termékek keletkezése 1 tonna kiégett (33 MWd/kg) fűtőelemben [g/t]

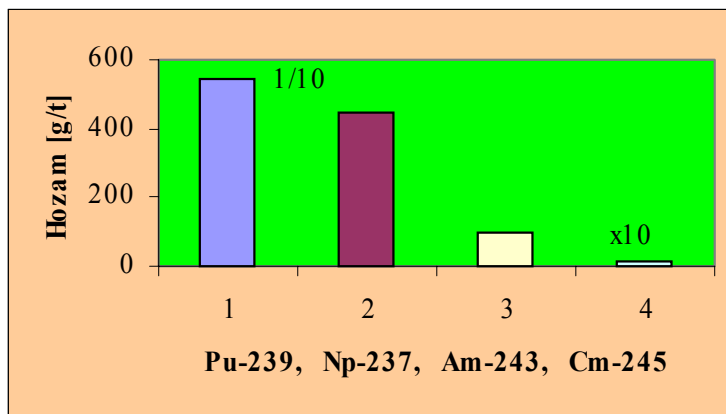
[H.ter.]	[$T_{1/2}$ év]	[g/t]
1) ^{99}Tc	210 000	810
2) ^{135}Cs	3 000 000	360
3) ^{129}I	16 700 000	170



14. ábra

4.2. Aktinoidák 1 tonna kiégett (33 MWd/kg) fűtőelemben [g/t]

[Akt.]	[$T_{1/2}$, év]	[g/t]
1) ^{239}Pu	24 400	5450*
2) ^{237}Np	2 100 000	450
3) ^{243}Am	7 400	100
4) ^{245}Cm	8 500	1,2
* Össz. Pu : 9 700 g/t		



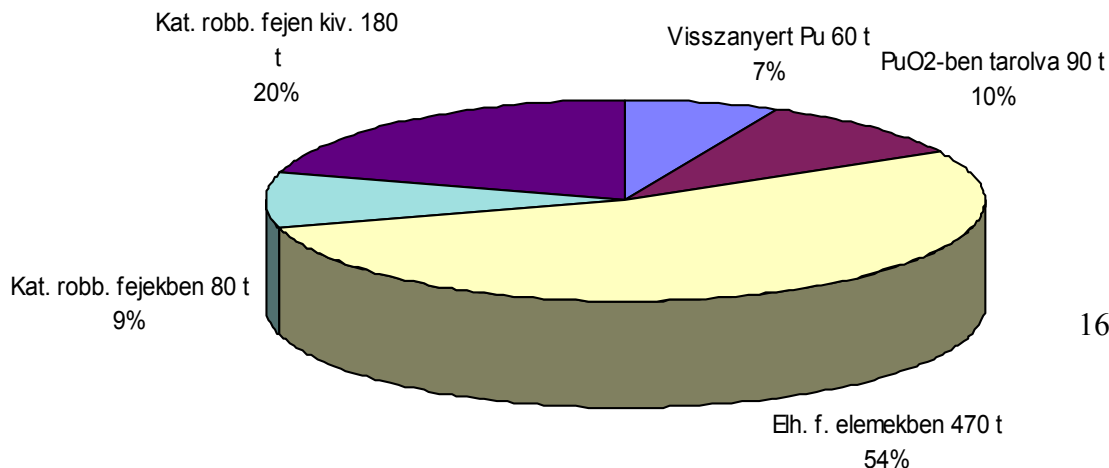
15. ábra

4.3. Felhalmozódás:

1992-ig 880 t, 1993-ban 90 t/év Pu keletkezett 350 GWe villamos energia előállításával. 2015 évre 250000 t nukleáris hulladék, (2000 t Pu) felhalmozódását prognosztizálják 1998-s évi villamosenergia-termelést feltételezve.

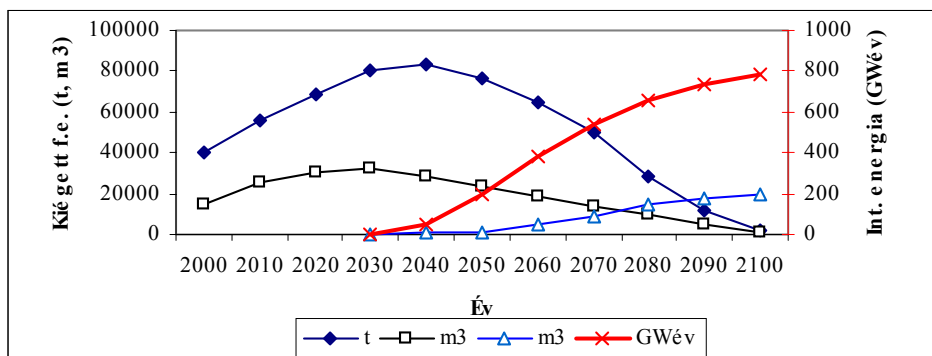
Megoszlása régióként : ~ (1/3) USA ~70000 t hull. Pu >500 t; > (1/3) Oroszország (FÁK); < (1/3) Európa, Távolkelet és a többi ország.

Az 1992-ig felhalmozódott 880 tonna Pu megoszlása



16. ábra

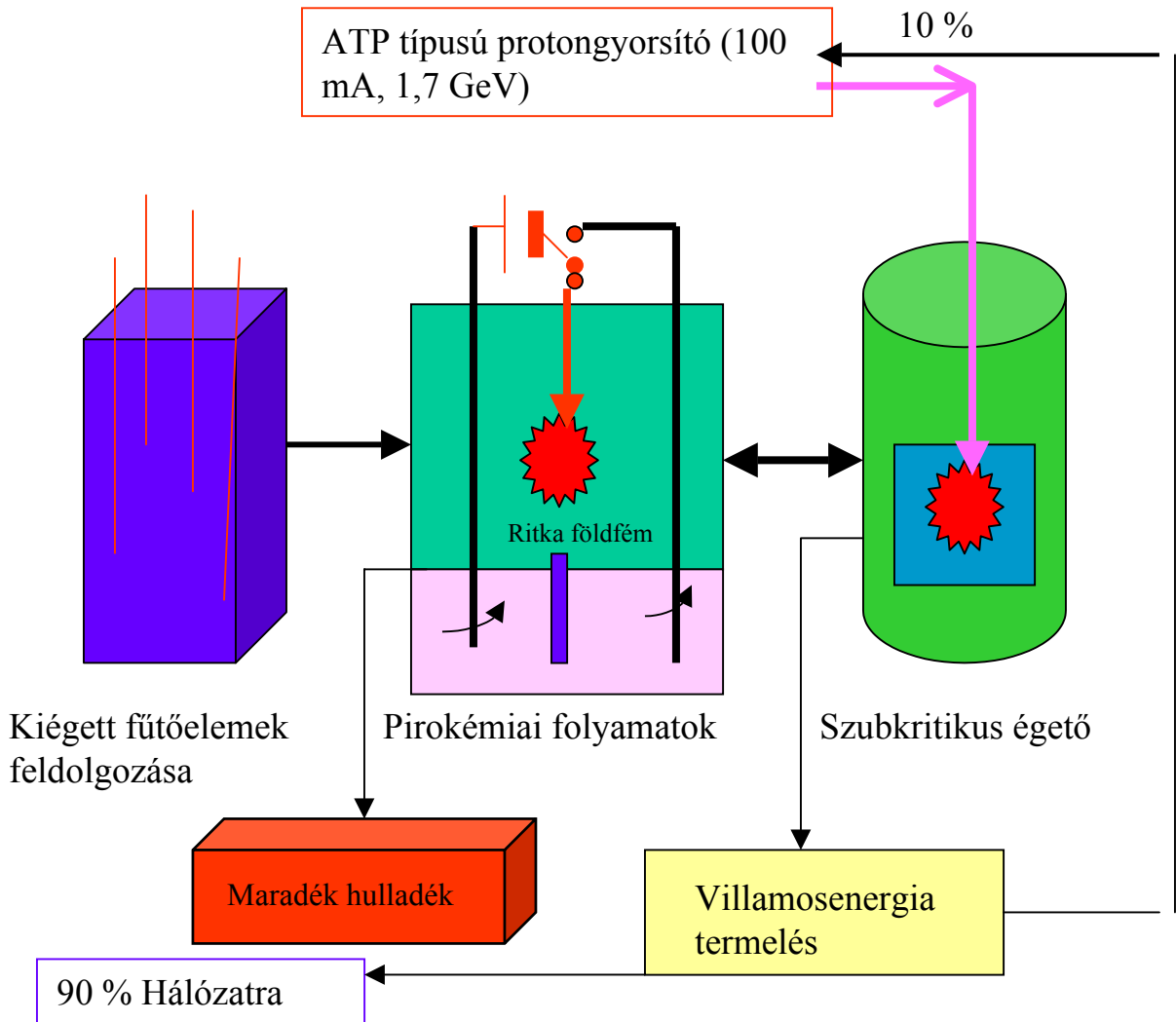
4.4. A nukleáris hulladékok feldolgozása



17. ábra. Egy tervkoncepció az USA-ban 2036-ig felgyülemelő kiegészített (86300 t) fűtőelem feldolgozására és hasznosítására (Beller és mások, Nucl. Instr. Meth. **A463**, 468; 2001).

900 t/év TRU átalakításával 8,5 egységnyi ATW (gyorsítóval hajtott hulladékégető) négy 840 MWt erőmű (50 % kapacitással) működne 2100 évtől. A program egy 11 MW-s gyorsítóval 2013 és 2020-tól 45MW-s ATW indulna. A 2030-s évtől 8 berendezés 5000 t fűtőelemet dolgozna fel.

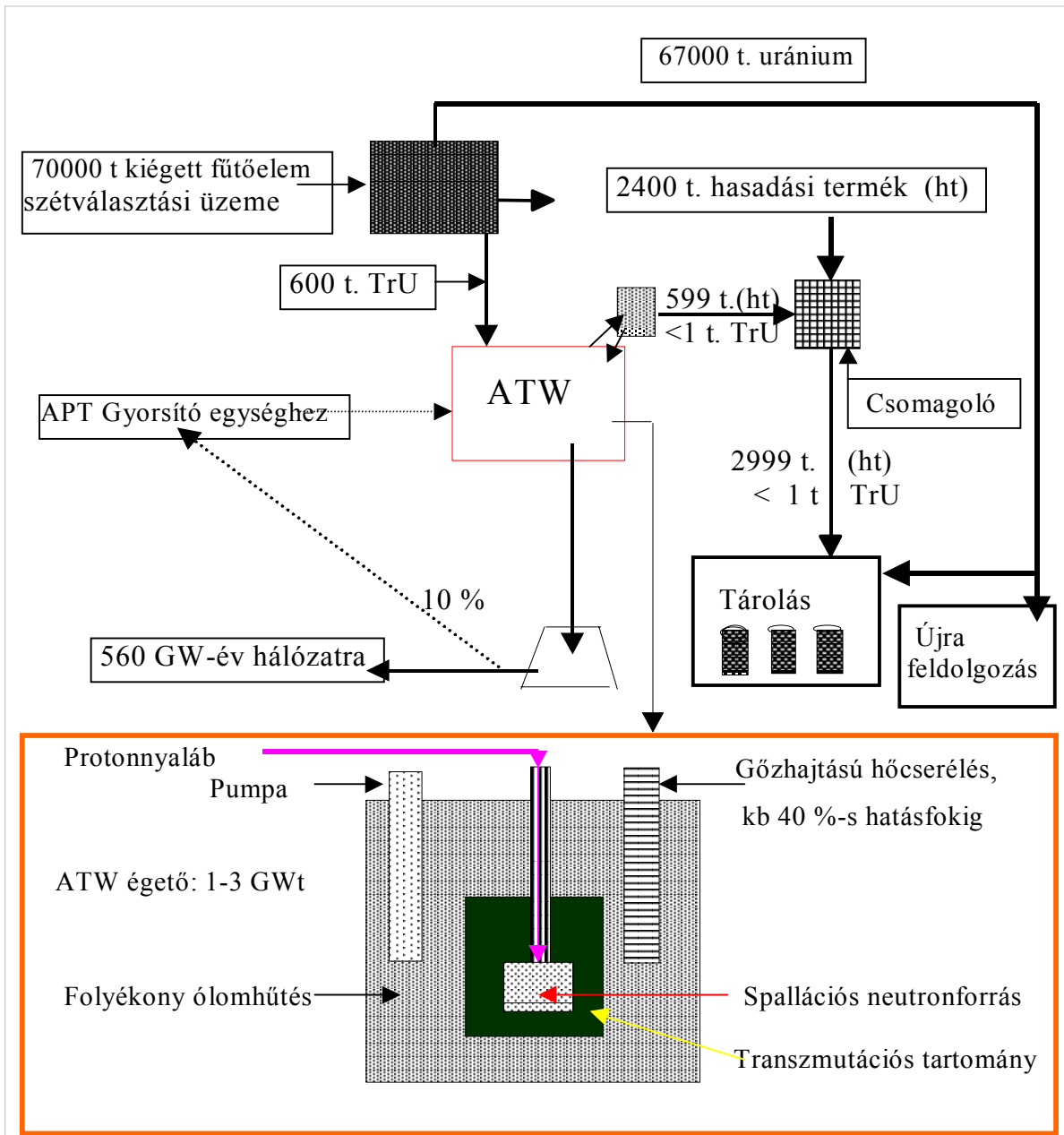
4.4.1. A gyorsítóval hajtott hulladék-átalakító berendezéseinek fontosabb technológiai egységei



18. ábra. A pirokémiai folyamatokon alapuló ATW hulladék-átalakító koncepció. (Browne és mások, APN NS Heavy Ion Phys. 7, 249; 1998)

A fenti ATP-gyorsító öt szubkritikus égető rendszer üzemeltetését tudja ellátni, amelyek mindegyike 3000 MWt termikus energiát állít elő a plutóniumból és más a kiegészítő fűtőelemekben nagyobb mértékben felhalmozódott aktinoidákból. Ezek a szubkritikus egységek 75 %-s kihasználtság mellett 4,5 t/év transzuránt és 2 t/év hasadási terméket égetnek el. A pirokémiai berendezés kapacitása 500 t/év kiegészítő fűtőelem feldolgozására alkalmas.

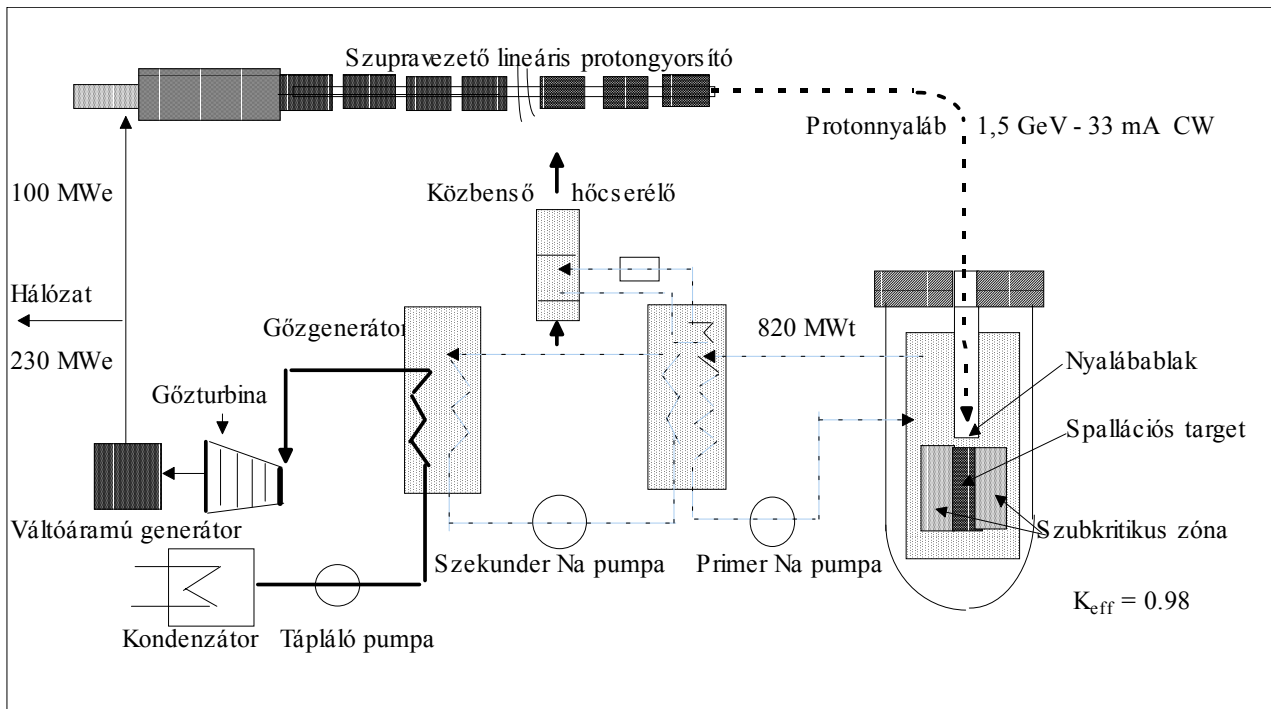
4.4.2. Hulladékégető egység sematikus ábrázolása



19. ábra. A 70000 tonna aktinoida/hasadási termék feldolgozási technológia sematikus kapcsolatrendszere. Az alsó keretben az alkalmazott ATW égető néhány részletét emeltük ki. Az égető target rendszere az orosz atom tengeralattjárókra kifejlesztett folyékony ólom-bizmut eutektikum technológián alapul.

5. SZUBKRITIKUS ATOMERŐMŰ KONCEPCIÓK

5.1. A spallációs target és szubkritikus reaktorzóna kapcsolati sémája



20. ábra. A japán szupravezető gyorsítóval hajtott transzmutációs rendszer (ADTS) koncepciója.

A rendszert nagy-fluxusú gyorsneutronok előállítására tervezték, mivel az jobb hatásfokkal alakítja át a másodlagos aktinoidákat. Az MA-t tartalmazó fűtőelem betáplálása mononitrit, vagy klorid sóoldat formában történik. Egy target egység kb tíz könnyűvízes, 1000 MW-s táplálására alkalmas. A lineáris gyorsító szupravezető 1.5 GeV energiájú protonokat, néhány száz mA intenzitással szolgáltat. A tanulmányban két spallációs-target változatot vizsgáltak meg. Az egyikben szilárd wolfram target nátrium hűtés, a másikban (ezt ítélték kedvezőbbnek) klorid sóoldat áramoltatása. Az 5430 kg aktinoidát tartalmazó sóoldat/zóna 800 MW hőenergiát állít elő megközelítőleg 250 kg MA (másodlagos aktinoida) elégetésével (Takizuka, JAERI-Conf. 99-003, 150).

5.2. Nemzetközi programok

A példaként bemutatott sémához számos hasonló megoldás keresése és egy-egy kritikusnak tűnő részprobléma megoldására születtek programok. Ezekből a 2. Táblázatban feltüntettem a teljesség igénye nélkül az általam lényegesebbnek ítélt programokat

2. táblázat. Néhány létező program és főbb célkitűzései.

Labor, program	Cél	Teljesítmény	Megjegyzés
1991, BNL (USA), PHOENIX	3600 MWe term. (Nukl. Hull. Ég)	1,6 GeV-104 mA 2,900 kg MA	→ 1050 kg ht, 1550 kg Pu és 300 kg jód
LANL (USA), ATW	Katonai NH	10^{16} n cm ⁻² s ⁻¹	Nagy fluxus
Belgium, MYRHA 1966	250 MeV, 2mA → 10 mA -re emelés	30 MW, 1.5×10^{15} n cm ⁻² s ⁻¹ V _z =35 dm ³ .	Folyadék Pb (Pb-Bi) target, szubkr.-reaktor
GEDEON Csoport, (F. O)	Ny.-vizes reaktor Pu-k hasznosítása	50-100 MW _t ; 2-5 MW p szubkr.-reaktor,	Cm, Am és MA fűtőelem alkalmazható
Japán, JAERI OMEGA	Szupr. LINAC teszt 30-60 MW	GeV; max. 8 MW	MA. ~ 0.01-ra csök , n _{gy} besugárzással
1997-2001 Korea (D) KAERI, HYPER	Többcélú KOMAC gyorsító	1 GeV - 20 mA protonnyaláb	1992 óta folynak transzm. vizsgálatok
München, (TRITON)	Szupravezető ciklotron	1 GeV proton, 10 MW nyaláb erősség	Mágneses-csatorna, radiofrekvenciás üregv.
1994 ITEP, VNIINM ISTIC Moszkva; Szentpétervár, Szarov	1200 kg/év Pu és 400 kg MA elégetése	Két 100 MW-s erőmű $\phi_n = (1.5-2.5) \times 10^{15}$ ns ⁻¹ cm ⁻²	A becsült beruházási ktg: 6,1 Mrd USD. Üz. ktg 776 M USD/év.
PSI, Svájc ATHENA	Transzmutáció hatékonyságvizsg.	Ciklotron, 0,6 GeV proton	ESS- folyékony fém- target egység tervezése
CERN EA Th bázis- alapú energiatermelés	Szubkr. oxid-fe. 1500 MWe term.	Ciklotron GeV-12,5 mA protonnyalábbal	3600kg U _{term} ; -3 GeV; 100 majd 250 MW p
Amerikai - orosz	²⁰⁹ Bi target vizsg. számítógéppel	130MeV - 1500 MeV energiatartomány	Első kísérlet nem hasadó targettel

A 3-4 táblázatban pedig az USA- ban 2015-ig felhalmozódó **70000 tonna nukleáris hulladék** feldolgozásának, valamint az orosz-amerikai együttműködés keretében kialakított, **két gyorsító-két szubkritikus atomerőmű** költségbecslésének néhány főbb adatát tüntettem fel. A hulladékfeldolgozás költségbecsléséből látható, hogy az elégetés nélküli tárolás 20 milliárd USD-vel drágább.

3. táblázat. 70000 t fűtőelem ATW-el csökkentett és direkt költségei

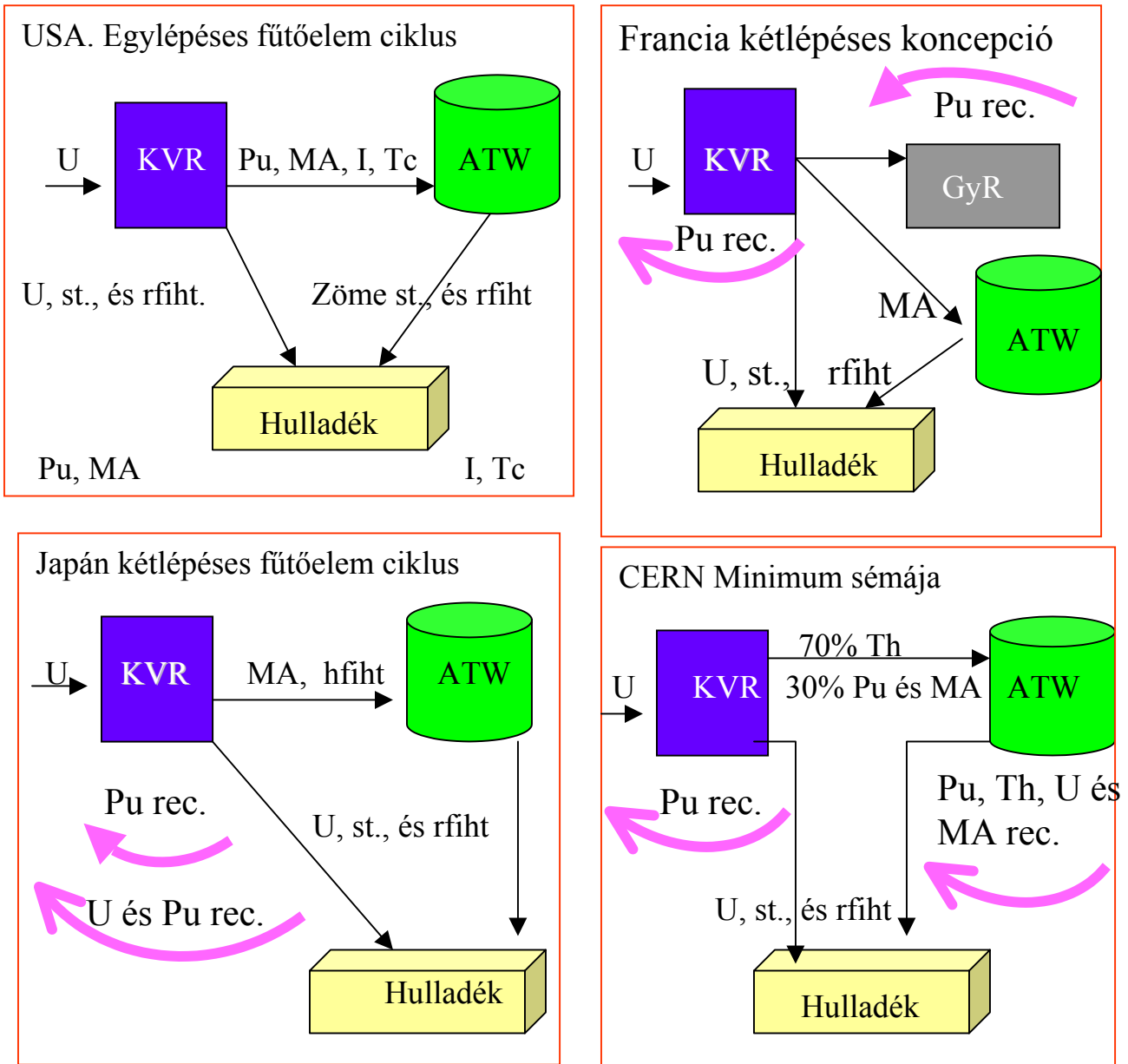
ATW-csökkentett tárolási ktg (Mrd\$)			Közvetlen tárolási ktg (Mrd\$)		
Művelet	ktg/Beruh.	Bevétel	Művelet	ktg	Bevétel
Hull. 2010-re		\$30,0	Hull. 2010-re		\$30,0
ATW-csök.	\$25,0		Direkt	\$50,0	
ATW-Beruh.	\$39,7				
ATW-vill. E.		\$106,1			
ATW műk.	\$46,5				
Egyenleg		+\$25,0			-\$20,0

4. táblázat. Két protongyorsító-két atomerőmű egységből álló transzmutációs üzem becsült költségei. (Oroszország)

Berendezés	Teljesítmény (MWt)	Vill. E. (GWó/év)	TRU fogy. (kg/év)	Egyéb adat	Becsült költség (10 ⁶ USD)
Reaktor	2×2080	7000	1200*	2×424000 m ³	849,1
Gyorsító	100 mA	--	--	1 GeV,	1284,7
Reproc. Üzem	--	--	--	--	150,6
Hull.-kezelés	--	--	--	--	385,6
Gépészet	--	--	--	--	190,0
K+F	--	--	--	--	188,8
Felszámolási ktg		--	--	--	3048,8
Működési ktg/év				- 387,9**	
Értékesítés bevétel/év		141,8+246,1** =		+ 387,9**	
Összes költség: 6097,6					

*800kg atomfegyver tisztaságú Pu és 400 kg másodlagos aktinoida.
 ** A (387,9 MUSD) működési költséget fedezi az értékesített villamos energia eladásából (141,8 MUSD) és a plutónium + minor aktinoidák átalakításából (246,1 MUSD) származó bevétel. (További adatok a Kazaritsky és mások, Nucl. Instr. Meth. **A414**, 21;1998) közleményben található

5.3. Gyorsítóval hajtott transzmutációs technológiák (ADTT) nemzetközi programjai



21. ábra. Amerikai, francia, japán és a CERN (spanyol, olasz, . . .) nemzetközi koncepciók. Rövidítések a szövegben

A 21. ábrán használt rövidítések: **ATW** (Gyorsító berendezés hulladék átalakítására); **KVR** (könnyűvízes reaktor); **GyR** (gyorsneutronos reaktor); **MA** (Másodlagos aktinoidák); **rfiht** (rövid felezési idejű hasadási termék); **hfiht** (hosszú felezési idejű hasadási termék); **Pu, U, MA** (plutónium, urán, másodlagos aktinoida); **rec** (újra feldolgozás); **st** (stabil végtermék).

A programok célja plutónium, minor (másodlagos) aktinoidák, valamint a hosszú felezési idejű jód és technécium eltávolítása a kiégett fűtőelemekből. A transzurán (plutónium és minor aktinoidák) potenciális energiatartalma mintegy 30 % -a az eddig kiégett fűtőelemek által termelt energiának és e módszerrel a tárolt mennyiség viszonylag könnyen felhasználásra fogható.

6. ÖSSZEFOGLALÁS

Fontosabb fejlesztési igények

A gyorsítóval-hajtott transzmutációs technológiák fejlesztése már igen széleskörű kutatás-fejlesztési területté vált. Továbbfejlődtek és inter-diszciplináris dimenziót értek el a mag- és reaktorfizika, az anyagtudomány, orvostudomány, kémia és magkémia legkülönbözőbb területein.

I. A nagyszámú kísérleti és elméleti vizsgálatok nyilvánvalóvá tették, hogy minél nagyobb pontossággal kellene ismerni az alábbiakat:

- **Egy beeső protonra vonatkoztatott neutronok számát**, a különböző target-anyagok és geometriai elrendezések függvényében.
- A spallációs részecskék energia és szögeloszlásának minél pontosabb ismerete szükséges a **target geometriai optimalizálásához**.
- Igen lényeges a spallációs targetban visszamaradó atommagok **izotópos eloszlásának ismerete**

II. Mivel a gyakorlatban előfordulható összes konfigurációt kísérletileg tesztelni lehetetlen, kívánatos a target tervezésének és a megvalósítás leglényegesebb szempontjainak az **egységesítése**

- Szükséges egységes kódrendszerben **számítógépkódokkal tervezett modellek** szerkesztése.
- A gyorsítóval hajtott rendszerek (ADS) **optimális fejlesztésének** kutatása.
- Nagyintenzitású (erősáramú), rendkívülien **nagy megbízhatóságú és alacsony nyalábvesztésű** gyorsítók fejlesztése.
- A besugárzás okozta **anyaghibák tanulmányozása**.

- A **nukleáris fűtőanyagciklusok új módozatainak keresése.**

III. Lényeges a vékony és vastag targetekben keletkezett **maradvány jellemzőinek** az ismerete

- Mint például a **korróziós hatás**, amely a target, vagy a vasötvözetű ablak **szennyeződéséhez vezethet.**
- Tórium alkalmazása ADS-ben **speciális hatáskeresztmetszet mérést** igényel. A jelenlegi kódok (20 MeV) nem alkalmazhatók a 200 MeV feletti energiáknál.
- Szubkritikus neutronos rendszerek **anyagtulajdonsági és pirokémiai problémái** is az igen lényeges vizsgálandó feladatok közé tartoznak.

Záró gondolatok

A kutatási feladatok felsorolásából is kitűnik, hogy számos részfeladat vár még megoldásra. 1999-ben az „atomerőművi üzemanyagciklus lezárására irányuló (back-end) stratégia” megalapozását célzó kutatások véleményezésére felkért OAH szakértő bizottság is arra a következtetésre jut: *„szükséges, hogy az eddigieknél szélesebb körű tudatos kutató és fejlesztő tevékenység kezdődjék”*. Ez nemzetközi együttműködést igényel. Az ilyen céllal készülő programjavaslatokat széleskörű pályázat alapján kell kiválasztani.

A Paksi atomerőmű 1983-2000 évek alatt összesen 212.1 TWó villamos energiát termelt és tekintélyes mennyiségű kiegészített fűtőelem-köteget tárol. Ezek új, a vázoltakhoz hasonló megoldásokat igényelnek.

A kihívás tehát NAGY, új *felfedezések* kellenek.

- A *felfedezés* Szent-Györgyi Albert szerint látni azt amit sokan láttak, de ebből arra gondolni, amire addig senki sem gondolt.
- Céлом volt láttatni a spalláció adta lehetőségeket.
- A megoldások nagyrészt magkémikusi kihívások is.
- A tét tehát igen jelentős a jövő nemzedék szempontjából.

Biztos vagyok abban, hogy a nukleáris hulladékok elégetése és a vele járó villamos-energiatermés az elkövetkező 50 évben olyan gyors vagy gyorsabb fejlődésen megy keresztül, mint az előző század második felében a jelenlegi atomerőművek.

Köszönetnyilvánítás: A szerző ezúton is megköszöni a konferencia szervezőinek a meghívást és a hallgatók figyelmét.