

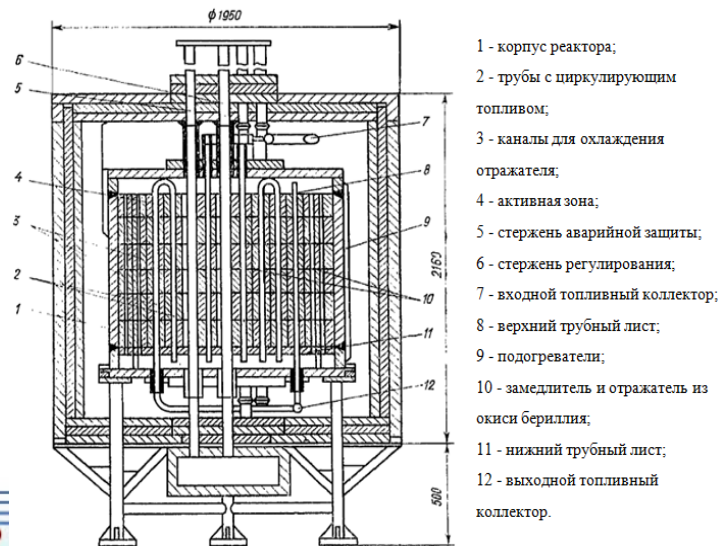
ПРОБЛЕМЫ ТРАНСМУТАЦИИ МИНОРНЫХ АКТИНИДОВ В ЖИДКОСОЛЕВЫХ РЕАКТОРАХ

М.Н. Белоногов, И.А. Волков, Д.Г. Модестов, В.А. Симоненко, Д.В. Хмельницкий

Первый опыт эксплуатации ЖСР

- ❑ Идея гомогенного ядерного реактора с жидким топливом возникла в конце 40^х годов 20-го века вскоре после открытия деления ядер урана.
- ❑ С развитием технологий обогащения урана разработчики реакторных установок вновь заинтересовались созданием расплавно-солевого реактора, и в 60^х годах два из них были построены в США: реактор ARE (1954 г.) мощностью 3 МВт с эвтектической топливной композицией $\text{NaF-ZrF}_4\text{-UF}_4$ (53–41,2–5,8 мол.%) 860 °С [1,2] и реактор MSRE (1965 – 1969 гг.) мощностью 8 МВт с топливной композицией ${}^7\text{LiF-BeF}_2\text{-ZrF}_4\text{-UF}_4$ (65–29,1–5–0,9 мол.%) [3,4]

Конструкционная схема реактора ARE



Конструкционная схема MSRE

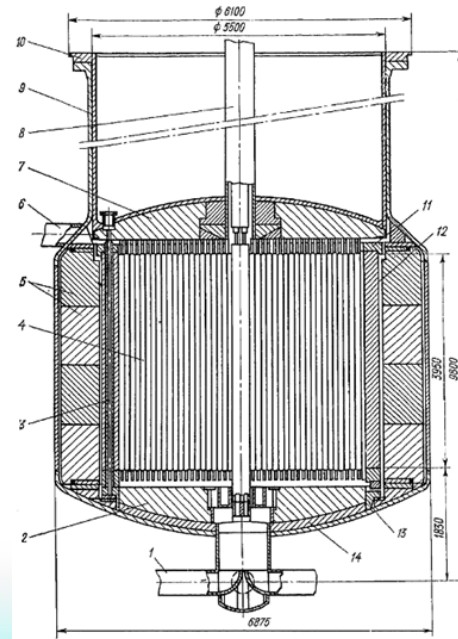


Реактор MSBR

- ❑ Для оценки возможных параметров АЭС с ЖСР в Окриджской Национальной лаборатории в США был создан проект стационарной энергоустановки мощностью 1000 МВт с жидкосолевым реактором-размножителем на тепловых нейтронах MSBR (Molten Salt Breeder Reactor) [5-7].
- ❑ Цель проекта заключалась в выборе таких параметров системы, которые обеспечили бы низкую удельную загрузку топливом, высокий коэффициент воспроизводства и низкую стоимость электроэнергии.
- ❑ Важнейшая особенность теплового ЖСР заключается в возможности его работы в режиме расширенного воспроизводства горючего при тепловом спектре нейтронов и уран-ториевом топливном цикле.
- ❑ Режим расширенного воспроизводства в таких реакторах может быть реализован только при непрерывной очистке топливной соли от отравляющих ПД (ксенон и редкоземельные элементы) и выводе из активной зоны протактиния.

Реактор MSBR

- ❑ MSBR представляет собой реактор с моножидкостным потоком соли, содержащим как делящееся горючее, так и сырьё для воспроизводства топлива.
 - ❑ Разделение активной зоны и зоны воспроизводства в однопетлевой схеме обеспечивается соответствующим распределением объёмной доли соли в графитовом замедлителе. Такое распределение топливной соли обеспечивает в активной зоне мягкий спектр нейтронов, а в зоне воспроизводства, где спектр более жёсткий, нейтроны эффективно поглощаются торием в области его резонансов.
-
- ❑ При данной конструкции реакторной установки можно добиться коэффициента воспроизводства 1,062 (равновесный режим работы реактора).
 - ❑ Проект MSBR не был реализован.



- 1 – входной коллектор;
- 2 – нижний торцевой отражатель;
- 3 – вертикальный канал;
- 4 – стержни графитового замедлителя;
- 5 – боковой отражатель;
- 6 – выходной коллектор;
- 7 – верхний торцевой отражатель;
- 8 – стержни регулирования;
- 9 – корпус реактора;
- 10 – верхняя крышка корпуса;
- 11 – верхнее графитовое кольцо;
- 12 – графитовые пластины;
- 13 – нижнее графитовое кольцо;
- 14 – донная крышка

Реактор FUJI

- ❑ В 90-х годах 20 века был инициирован ещё один проект расплавно-солевого реактора-конвертера на тепловых нейтронах с ториевым топливным циклом – FUJI – проект японской компании IThEMS (International Thorium Energy Molten-Salt Technology), созданный совместно с коллегами из Чехии [8].
- ❑ Этот реактор – аналог MSBR с одним существенным отличием: непрерывная переработка топлива и периодическая замена графита не предусмотрена.
- ❑ С 1985 года развивались различные концептуальные проекты реактора FUJI, включая версию плутониевого дожигателя (FUJI-Pu), целью которого было дожигание плутония и минорных актинидов из ОЯТ легководных реакторов.
- ❑ В связи с данными разработками IThEMS было предложено строительство на территории России экспериментальной реакторной установки MiniFUJI мощностью 7 МВт (эл.). Следующим этапом развития должно было стать строительство опытных образцов реакторов FUJI-Pu и FUJI-²³³U мощностью 100-300 МВт (эл.).

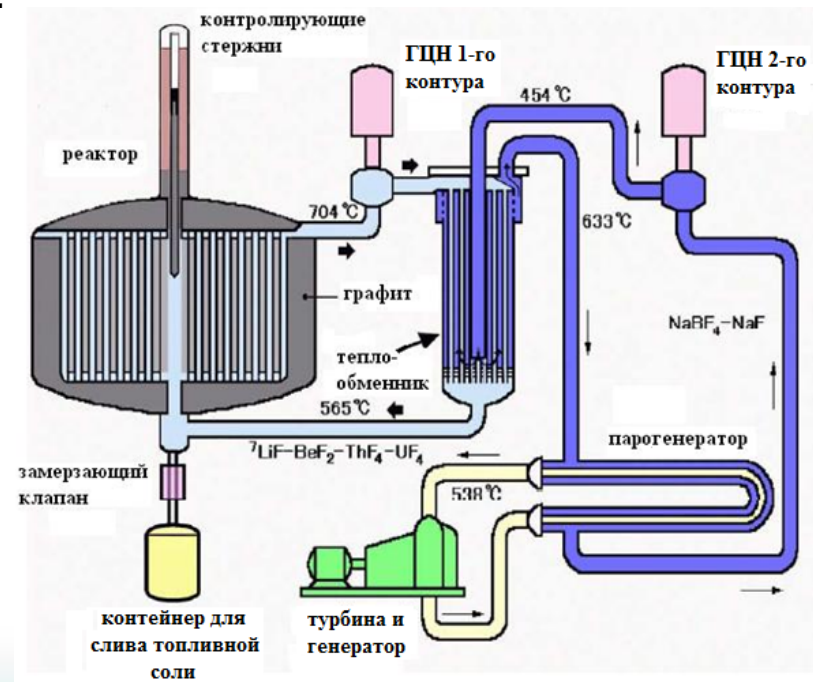
Реактор FUJI

Характерные особенности реактора FUJI следующие:

- ❑ модульная конструкция, предусматривающая различные выходные мощности для мультимодульных станций;
- ❑ корпус реактора вместе с графитовым замедлителем имеет небольшие габариты;
- ❑ возможность работы с различными вариантами топливных загрузок;
- ❑ вариативность размеров и высокий коэффициент конверсии;
- ❑ возможность дожигания плутония и минорных актинидов из отработанного ядерного топлива энергетических реакторов (FUJI-Pu).

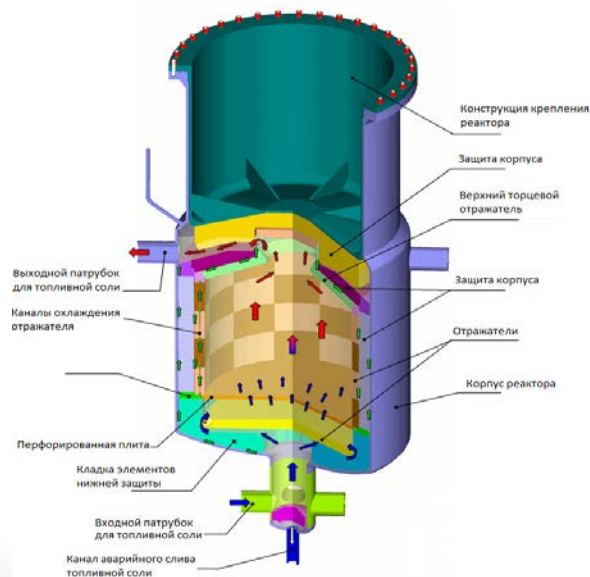
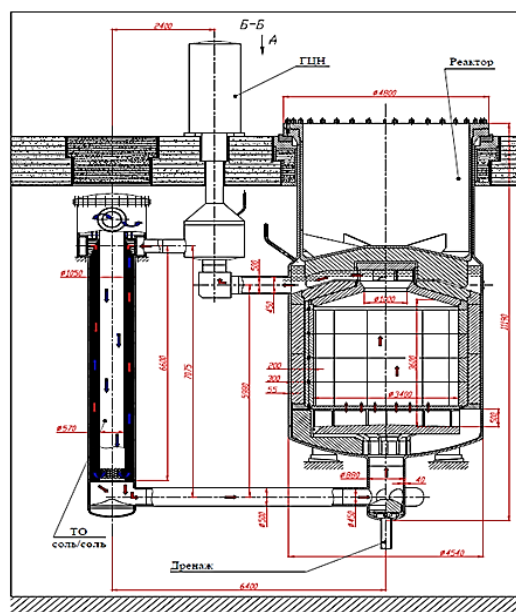
Конструкционные особенности реактора FUJI, способствуют усилению режима нераспространения ЯМ:

- ❑ очень низкая концентрация ДМ в топливной соли (около 2% по массе);
- ❑ малая избыточная реактивность;
- ❑ использование тория в качестве сырьевого материала приводит к наработке сравнительно большого количества ^{232}U .



Peaktop MOSART

В двухтысячных годах была инициирована работа над рядом проектов расплавно-солевых реакторов. Результатом одного из таких исследований стал проект реактора-пережигателя MOSART [9]. Основная цель концепции MOSART – выработка тепловой мощности 2400 МВт в условиях эффективной трансмутации плутония и минорных актинидов из ОЯТ легководных реакторов без урановой подпитки. Физико-химические свойства топливной и охлаждающей соли, а также взаимодействие солей с конструкционными материалами были частично изучены в ORNL; дальнейшие исследования проводились в НИЦ «Курчатовский институт».



Реактор MOSART

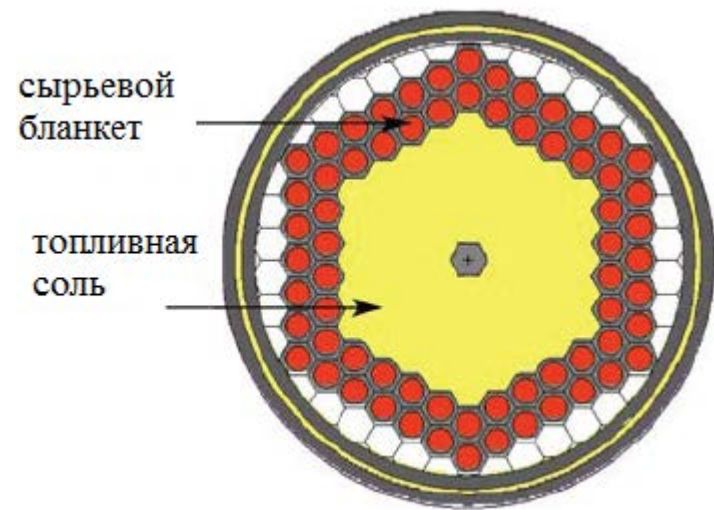
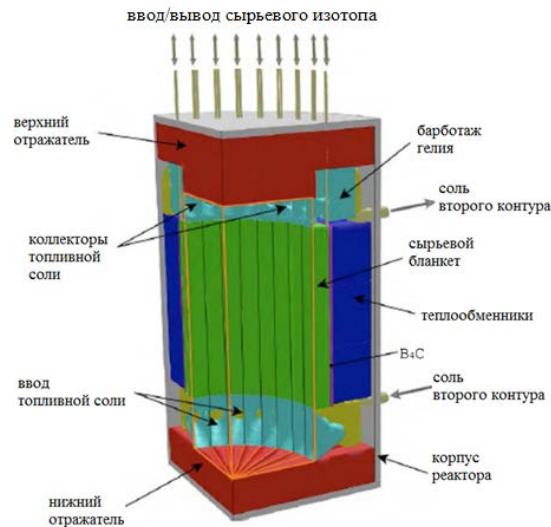
Предварительные нейтронно-физические и теплогидравлические расчеты реактора, выполненные в НИЦ «Курчатовский институт», показали:

- ❑ концентрация актинидов и лантанидов в топливной соли находится в пределах их растворимости,
- ❑ АЗ с графитовым отражателем толщиной 0,2 м в температурном диапазоне 900-1600 К имеет большой отрицательный температурный коэффициент реактивности $-4,125 \cdot 10^{-5} \text{ 1/K}$,
- ❑ сравнительно низкая максимальная температура графитовых отражателей.

Также утверждается, что реактор MOSART может быть использован для эффективного дожигания минорных актинидов, обеспечивая низкое потребление материалов (графит) и снижение себестоимости в сравнение с предшествующими проектами ЖСР, включая MSBR.

Реактор MSFR

В 2008 году Е. Merle-Lucotte вместе с командой ученых из французского Университета Жозефа Фурье разработали расплавносолевой двухжидкостный быстрый ториевый реактор TMSR-NM (non-moderated thorium molten salt reactor). Позднее реактор получил название MSFR (molten salt fast reactor) [10]. Конструкционная схема и горизонтальный разрез реактора MSFR приведены на рисунках 3 и 4 соответственно. Топливная соль циркулирует снизу вверх через АЗ с помощью центробежных насосов. Композиция состоит из $70,5\text{LiF} - 29,5(\text{UF}_4 - \text{ThF}_4)$ (% моль). Зона воспроизводства – соль с составом $72\text{LiF} - 28\text{ThF}_4$ (% моль). Отражатель реактора состоит из сплава NiWCr с мольной долей 7%, 6% и 8% соответственно.



Состояние работ по созданию ЖСР

В настоящее время наблюдается повсеместное возрождение интереса к разработкам ЖСР: они включены в программу GENERATION IV [11], также ведутся отдельные исследовательские работы во Франции, Японии, Индии, США. В большинстве этих программ планируется создание Th-U ЖСР с тепловым спектром на основе опыта, полученного при эксплуатации MSRE. Рассматриваются также варианты создания Th-U ЖСР с быстрым спектром с использованием топливной композиции LiF-ThF_4 (78-22 мол.%).

В России систематические работы по развитию расплавно-солевых технологий начались в 1976 г. Были разработаны и сконструированы технологические жидкосолевые стенды (например, экспериментальный стенд с принудительной циркуляцией теплоносителя «Солярис», экспериментальный реакторный стенд «КУРС-2») [12], на которых проводились испытания как работоспособности вспомогательного оборудования, так и материалов в условиях реакторного облучения.

Работы, проводимые в РФЯЦ-ВНИИТФ

В РФЯЦ-ВНИИТФ работы в области исследований жидкосолевых систем проводились, начиная с начала 1990 г. Совместно с ведущими иностранными научными организациями была сформулирована постановка задач по разработке жидкосолевой системы для сжигания плутония и долгоживущих РАО. Эти работы были взяты за основу в проекте МНТЦ №17. В результате этих работ была сформулирована новая концепция ABS/ATW-установки с активной мишенью и жидкосолевым бланкетом, выполнено концептуальное проектирование и предварительное расчетное обоснование работоспособности системы, подготовлены и проведены эксперименты в подтверждение ключевых элементов концепции. В работах по проекту участвовали несколько институтов: ИТЭФ, ВНИИЭФ, ФЭИ, ВНИИНМ, ВНИПИЭТ.

С 2001 г. по 2007 г. в РФЯЦ ВНИИТФ выполнялись работы в рамках проекта МНТЦ №1606, цель которого состояла в комплексной оценке возможностей применения жидкосолевой технологии для утилизации долгоживущих РАО и выжигания плутония при обеспечении требований безопасности, низкоотходности, экономической эффективности и нераспространения ДМ. В РФЯЦ ВНИИТФ была создана экспериментальная установка для определения теплофизических свойств солевых носителей и были проведены соответствующие эксперименты. В кооперации с научными центрами, вовлеченными в круг этих задач, включая НИЦ КИ, ИВТЭ, ВНИИХТ, было выполнено экспериментальное исследование свойств жидкосолевых композиций и конструкционных материалов для применения в жидкосолевых трансмутаторах.



Эффективность трансмутации МА

- Эффективность трансмутации определяется, прежде всего, спектром нейтронов, энергонапряженностью, содержанием минорных актинидов в активной зоне и соотношением наработки и выгорания минорных актинидов при работе реактора.
- Трансмутацию минорных актинидов представляется целесообразным осуществлять в быстром спектре нейтронов.
- Для повышения эффективности трансмутации необходимо использовать топливо с высокой концентрацией минорных актинидов и минимизировать их наработку.
- Чтобы обеспечить низкую наработку минорных актинидов, из топливного состава, загружаемого в активную зону, необходимо, по возможности, исключить изотопы U и Pu, из которых они нарабатываются.
- В работе эффективность трансмутации оценивалась как средняя годовая убыль МА – разница масс МА, загруженных в АЗ и выгруженных, отнесенная к времени эксплуатации РУ (50 лет).

Требования, предъявляемые к реактору-сжигателю МА

1. Высокая эффективность трансмутации МА, как в переходном, так и в равновесном режиме работы реактора.
2. Отсутствие накопления актинидов во внешней части топливного цикла в процессе эксплуатации реактора.
3. Минимизация потребления ^{235}U и Pu.

Эффективность трансмутации в ЖСР на основе солей FLiNaK, FLiBe и FLiBeNa

- ❑ В последние годы активно обсуждается трансмутация МА в жидкосолевых системах. В России ведутся работы по проекту расплавносолевого реактора MOSART.
- ❑ Недавно проведенные экспериментальные исследования соли FLiNaK показали высокую растворимость в ней актинидов, что позволяет создать ЖСР с быстрым спектром нейтронов.

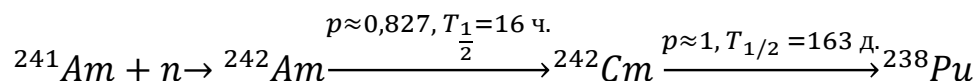
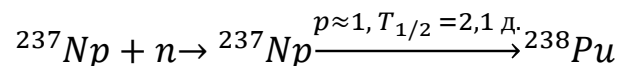
Для этих реакторов, с помощью программного комплекса ПРИЗМА+РИСК [13,14] произведена оценка нейтронно-физических характеристик и эффективности трансмутации МА в следующих постановках:

- ❑ Для расплавносолевого реактора на основе соли FLiNaK рассматривался вариант стартовой загрузки ^{235}U (UF_4) и трифторидами Np, Am и Cm. В процессе регенерации предполагается возврат всех актинидов в топливную соль. Растворимость всех актинидов в топливной соли принята равной 30% [15].
- ❑ Для реактора типа MOSART рассматривались две топливные загрузки [9]:
 - FLiBeNa с молярным составом, %: 15 LiF-58 NaF-27 BeF₂ с растворёнными в ней фторидами Pu и МА и поддержанием соотношения $\text{MAF}_3/\text{TRUF}_3=0.1$;
 - FLiBe с молярным составом, %: 73LiF-27BeF₂ с растворёнными в ней фторидами Pu и МА и поддержанием соотношения $\text{MAF}_3/\text{TRUF}_3=0.327$.

Дополнительно были проведены расчеты для реактора БРЕСТ-1200 [16].

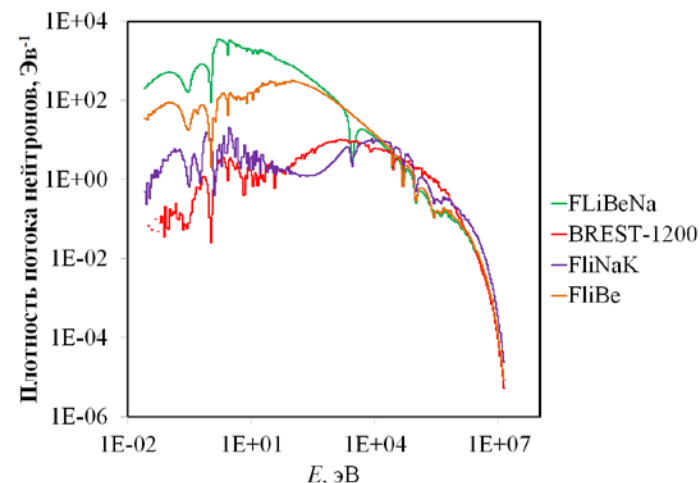
Наработка Pu-238

Изотоп ^{238}Pu нарабатывается из изотопов ^{237}Np и ^{241}Am в реакторах любого типа по следующим каналам:



Чем выше эффективность трансмутации, тем выше скорость его накопления.

Характеристика*	FLiNaK (БЖСР)	FLiBe (MOSART)	FLiBeNa (MOSART)	БРЕСТ- 1200
Тепловая мощность, <i>МВт</i>	1650	2400		2800
Средняя энергия нейтронов, старт [50 лет] E^{Φ}/E^N , <i>кэВ*</i>	687/152	310/16	249/4	429/128
Размеры АЗ реактора <i>d/h, м</i>	2,4/2,2	3,4/3,6		4,6/1,1
Объём АЗ реактора, <i>м³</i>	9,3	32,7 (45,3 - с учетом объема топливной соли под нижним отражателем)		18,4
Объёмное энерговыделение, <i>кВт/л</i>	171	73		528
Сечение деления/сечение захвата для ^{238}Pu , барн	1,23/0,63 (30%) 1,14/1,12 (8%)	1,65/3,37	1,91/6,46	1,14/0,66
Сечение деления/сечение захвата для ^{239}Pu , барн	1,74/0,4 (30%) 2,25/1,05 (8%)	4,72/3,08	10,1/7,06	1,74/0,42



Эффективность выжигания в ЖСР с солями FLiBe и FLiBeNa (реактор типа MOSART)

- ❑ В настоящее время соли FLiBe и FLiBeNa наиболее проработаны в технологическом плане, разработан проект пристанционной переработки соли FLiBe.
- ❑ Эффективность трансмутации ограничена пределами растворимости актинидов в соли. Для FLiBe и FLiBeNa предел растворимости принят равным ~ 3 мол. %.
- ❑ Убыль МА в для топливной загрузки с солью FLiBeNa составила $\sim 14 \frac{\text{кг}}{\text{год} \cdot \text{ГВт(тепл.)}}$, или $\sim 34 \frac{\text{кг}}{\text{год}}$. Для соли FLiBe $76 \frac{\text{кг}}{\text{год} \cdot \text{ГВт(тепл.)}}$, или $\sim 182 \frac{\text{кг}}{\text{год}}$.
- ❑ При сжигании 1 кг МА в реакторе с солью FLiBeNa нарабатывается $\sim 0,4$ кг ^{238}Pu .
- ❑ Нароботка ^{238}Pu приводит к значительному уменьшению $k_{\text{эфф}}$ и к необходимости компенсировать это уменьшение извлечением соли с ^{238}Pu и его заменой на соль стартового состава.

Эффективность выжигания в ЖСР с солью FLiNaK

- ❑ Основным достоинством соли FLiNaK является сравнительно высокая растворимость (до 30 мол. %) актинидов.
- ❑ Благодаря быстрому спектру нейтронов, наработка ^{238}Pu при работе реактора не приводит к ухудшению размножающих свойств топлива
- ❑ Убыль МА составила примерно $612 \frac{\text{кг}}{\text{год} \cdot \text{ГВт}(\text{тепл.})}$. При этом значительная часть МА переходит в ^{238}Pu .
- ❑ При сжигании 1 кг МА в реакторе нарабатывается 0,32 кг ^{238}Pu .
- ❑ Для организации равновесного режима с малыми изменениями реактивности необходима совместная растворимость актинидов в соли ~ 10%.
- ❑ При таком режиме, для поддержания критичности, в реактор необходимо загружать только МА без дополнительных делящихся материалов извне. Основное число делений при этом в реакторе будет происходить на ^{238}Pu .



Заключение

- ✓ За всю историю развития ЯЭ было построено и эксплуатировалось всего 2 жидкосолевых реактора – ARE и MSRE (США). Остальные проекты ЖСР не вышли за рамки концептуальной проработки.
- ✓ В большинстве проектов ЖСР рассматривается либо как реактор-бридер, либо как сжигатель трансурановых элементов.
- ✓ На примере реактора MOSART получено, что реакторы с тепловым и промежуточным спектром нейтронов наиболее эффективно сжигают Pu, а не МА.
- ✓ Трансмутацию МА целесообразно осуществлять в быстром спектре нейтронов, при котором нарабатываемый из МА ^{238}Pu не будет ухудшать размножающие свойства топлива.
- ✓ Одним из вариантов, позволяющим реализовать быстрый спектр нейтронов является соль FLiNaK.
- ✓ Полученные результаты указывают на необходимость экспериментального исследования соли FLiNaK и исследования возможности создания ЖСР на основе этой соли.

Список литературы

1. The Aircraft Reactor Experiment-Operation. – «Nucl. Sci. Engng.», 1957, v.2, p. 841-853, Auth.: E.S. Bettis, W.B. Cottrell, E.R. Mann e.a.
2. Operation of the Aircraft Reactor Experiment. – Oak Ridge National Laboratory, 1955, ORNL-1845, Auth.: W.B. Cottrell, H.E. Hungerford, J.K. Leslie, J.I. Meem
3. Relevant MSRE and MSR Experience. – Oak Ridge National Laboratory, 2004, ITER TBM Project Meeting at UCLA, Auth.: Clement Wong, Brad Merrill.
4. Paul N. Haubenreich, J.R. Engel. Experience with the Molten-Salt Reactor Experiment. – Oak Ridge National Laboratory, «Nucl. Appl. Technol.», 1969, v.8, p. 118-136.
5. The Development Status of Molten-Salt Breeder reactors. – Oak Ridge National Laboratory, ORNL-4812, 1972
6. Molten-Salt Reactor Program Semiannual Progress Report. – Oak Ridge National Laboratory, ORNL-4548, 1970
7. Molten-Salt Reactor Program Semiannual Progress Report. – Oak Ridge National Laboratory, ORNL-4676, 1971
8. Публикация в сборнике: Status of Small Reactor Designs Without On-Site Refueling, IAEA (International Atomic Energy Agency), январь 2007. Номер выпуска: IAEA-TECDOC-1536. Статья: Molten salt reactor for sustainable nuclear power – MSR FUJI. Организация: ITHMSI.
9. Ignatiev, V., Feynberg, O., et al. Molten salt actinide recycler and transforming system without and with Th-U support: Fuel cycle flexibility and key material properties [Text] // Annals of Nuclear Energy, 2014, Vol. 64, p. 408-420;
10. Merle-Lucotte E., Heuer D., Allibert M. e.a. Minimizing the Inventory of the Molten Salt Fast Reactor. – Advanced in Nuclear Fuel Management IV, 2009.
11. Инновационные ядерные системы IV поколения. [Электронный ресурс]: <http://www.atomic-energy.ru/technology/34307>.
12. Новиков В.М., Игнатьев В.В., Федулов В.И., Чередников В.Н. Жидкосолевые ЯЭУ: перспективы и проблемы. – М.: Энергоатомиздат, 1990, 6 с.
13. Кандиев Я.З., Малахов А.А., Серова Е.В., Спирина С.Г. Оценка эффектов малых возмущений в многовариантных расчетах по программе ПРИЗМА-Д. – Атомная энергия, 2005. т. 99, вып. 3, с. 203 – 210.
14. Модестов Д.Г. Программа решения задач ядерной кинетики РИСК-2014: Препринт РФЯЦ–ВНИИТФ №243, 2014.
15. Лизин А.А., Томилин С.В., Гневашов О.Е., и др. Растворимость PuF₃, AmF₃, CeF₃, NdF₃ в расплаве LiF-NaF-KF, АЭ, 115(1), 11-16 (2013)
16. Ганев И.Х., Лопаткин А.В., Орлов В.В. Гомогенная трансмутация Am, Cm, Np в активной зоне реактора типа БРЕСТ // Атомная энергия. 2000. Т. 89. Вып. 5. С. 355-361;



Спасибо за внимание!