



РФЯЦ-ВНИИТФ
РОСАТОМ

Трансмутация минорных актиноидов в жидкосолевом реакторе как способ уменьшения их радиационной опасности

19-23 мая 2025

Международная конференция XVII Забабахинские научные чтения

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

ЖСР. Опыт эксплуатации и возможные применения

Эксплуатировались:

- (1) ARE (США, ORNL) для авиационного двигателя, $W=3$ МВт, проработал ~ 9 дней;
- (2) MSRE (США, ORNL) как первый шаг к созданию ЖСР с ториевым ТЦ, $W = 8$ МВт, проработал ~ 4 года.

По результатам была продемонстрирована: возможность управления ЖСР, проверена работоспособность оборудования, показана удовлетворительная совместимость с КМ.

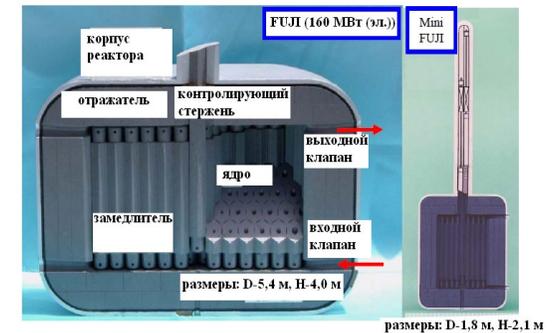
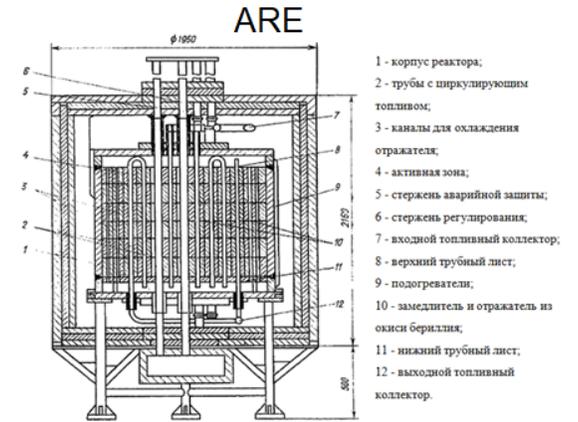
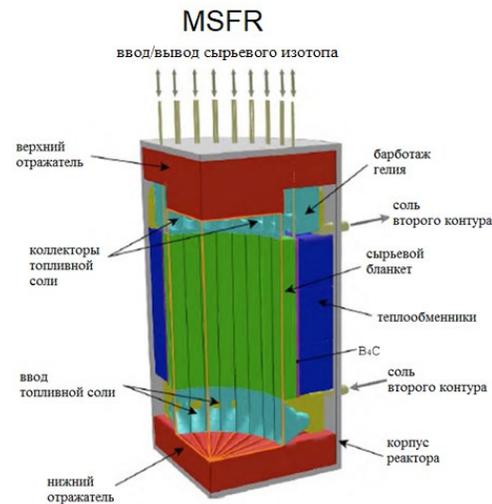
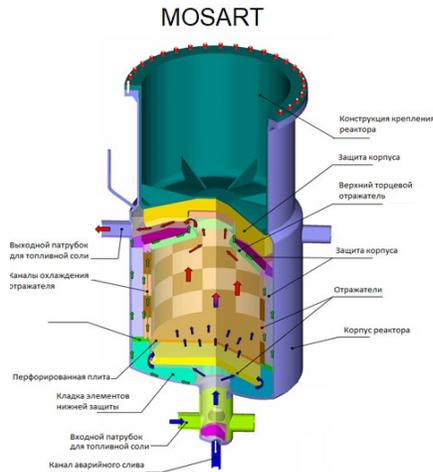
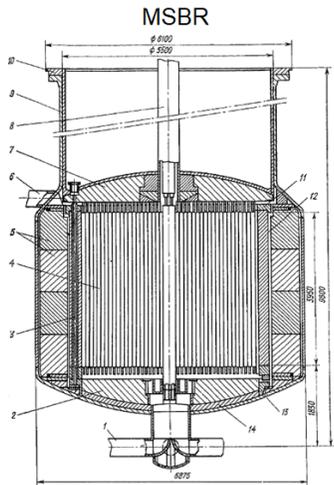
В настоящее время в Китае производится запуск исследовательского ЖСР с конструкцией, аналогичной MSRE.

Достоинства ЖСР: отсутствие необходимости фабрикации топливных таблеток и возможность работы в широком диапазоне состава топливных загрузок.

Недостатки: высокая коррозионная активность топливной соли и малая доля запаздывающих нейтронов.

Возможные применения ЖСР:

- энергетический реактор с ториевым топливным циклом: проекты MSBR (США), FUJI (Япония), MSFR (Франция),
- **сжигатель трансурановых/трансплутониевых элементов:** проект MOSART (Россия, НИЦ КИ),
- многоцелевые подкритические установки: сжигание МА, наработка нуклидов,
- производство высокотемпературного тепла.



Жидкосолевой реактор-сжигатель МА



РФЯЦ-ВНИИТФ
РОСАТОМ

Трансмутация (сжигание) МА – перевод МА и образующихся из них под действием нейтронов и радиоактивного распада актиноидов в ПД.

Требования к ЖСР-С:

- ✓ обеспечение необходимой производительности трансмутации МА,
- ✓ минимизация потребления основных компонентов топлива энергетических реакторов (U и Pu),
- ✓ минимизация накопления РАО (ПД, потери актиноидов при переработке, извлекаемые из ТЦ реактора и невозвращаемые в последствии актиноиды).



Специфика ЖСР-С обусловила выбор моделируемых процессов:

- перенос нейтронов,
- нуклидная кинетика,
- переработка и фабрикация топливной соли (выгрузка соли, ее выдержка, извлечение заданных групп элементов и возврат в топливный контур).
- равновесная химическая термодинамика (учет образования газообразных ПД, валентность ПД и актиноидов, управление ОВ потенциалом соли),
- теплогидравлика (учет влияния распределения плотности топливной соли на н/ф характеристики реактора и обратное влияние),
- коррозия КМ (учет накопления продуктов коррозии КМ в топливной соли)

Моделируется жизненный цикл ЖСР-С, а именно:

- подбор состава топливной соли варьированием содержания Pu в соли или соотношения МА и Pu ,
- кампания реактора – связанный расчет нейтронно-физических характеристик и нуклидной кинетики, опционально – расчет накопления продуктов коррозии, т/г характеристик, химического состава соли,
- внешняя часть ТЦ: модуль переработки и фабрикации, «склады» с ДМ и РАО.

Используемые ПС



Перенос нейтронов

- ПРИЗМА [1] (метод Монте-Карло, аттестована для расчета $K_{эфф}$)
- Арктика [2] (многогрупповое диффузионное приближение)
- HANDRA [3] (метод Монте-Карло)
Нейтронно-физические характеристики и скорости реакций (для расчета нуклидной кинетики)

Нуклидная кинетика

- РИСК [4] (нуклидная кинетика в поле излучения и в режиме релаксации)
Состав соли после облучения с учетом ядерных распадов

Равновесная термодинамика

- TeDu [5] (минимизация энергии Гиббса)
Состав соли и газообразных соединений

Теплогидравлика

- OpenFOAM [6] (уравнение Навье-Стокса для несжимаемой жидкости, уравнение теплопроводности, добавлен источник тепла, обусловленный ядерными реакциями и распадами)
Поля скорости, плотности, температуры

Переработка и фабрикация соли

- Программный модуль для моделирования состава «складов» ДМ и РАО с учетом ядерных распадов

- [1] Зацепин О.В., Кандиев Я.З., Кашаева Е.А. и др. Расчеты методом Монте-Карло по программе ПРИЗМА нейтронно-физических характеристик активной зоны ВВЭР-1000. – ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов, 2011, вып. 4, с. 64–74.
- [2] Трапезников М.А., Попов И.С., Шереметьева У.Ф. Программный комплекс ЯРУС для моделирования различных режимов работы ядерных реакторов. Модуль нейтронно-физического расчета программа «Арктика»: Препринт РФЯЦ–ВНИИТФ №246, 2015.
- [3] Модестов Д.Г. HANDRA-M – комплекс программ для статистического моделирования переноса частиц. Решаемые задачи. – ВАНТ. Сер. Математическое моделирование физических процессов, 2025, вып. 1
- [4] Модестов Д.Г. Программа решения задач ядерной кинетики РИСК-2014: Препринт РФЯЦ–ВНИИТФ № 243, 2014.
- [5] Пешкичев И.В., Куропатенко В.Ф., Макеева И.Р. и др. Программный комплекс TeDu для решения задач термодинамического моделирования, Вестник ЮУрГУ. Сер. Математическое моделирование и программирование, 2018, т. 11, № 1, с. 84–94.
- [6] Программный пакет OpenFOAM: [сайт] URL: <http://www.OpenFOAM.org> (дата обращения 04.04.2025).

Оптимальный режим трансмутации МА



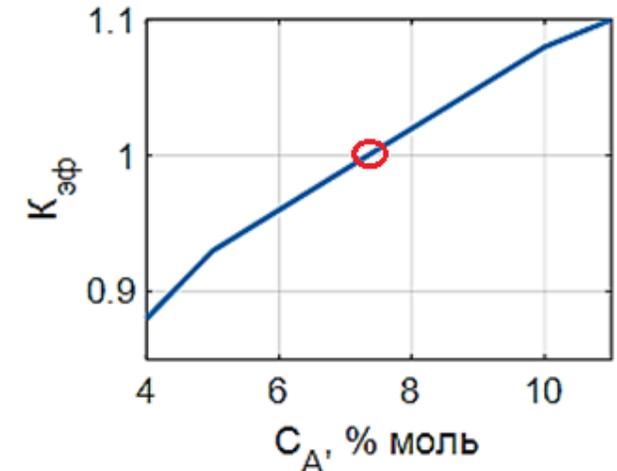
РФЯЦ-ВНИИТФ
РОСАТОМ

Оптимальный режим трансмутации МА:

- ✓ топливо подпитки содержит только МА,
- ✓ из ТЦ реактора извлекаются только ПД.

Основные результаты:

- ✓ Показано существование оптимального режима трансмутации МА.
- ✓ Режим достигается поддержанием определенной концентрации фторидов актиноидов C_A^{opt} , если концентрация меньше C_A^{opt} , то в равновесном режиме необходимо в топливе подпитки часть МА заменить Pu, если больше – извлечь избыточно нарабатываемый Pu
- ✓ Оптимальный режим трансмутации МА в ЖСР-С на основе FLiNaK (46,5LiF–11,5NaF–42KF %, мол.) реализуется при $C_A^{opt} = 10...15\%$, моль.
- ✓ Растворимость актиноидов в соли составляет $\sim 15\%$, мол. при $560...580\text{ }^\circ\text{C}$, что позволяет реализовать такой режим
- ✓ Минимум C_A^{opt} при $V_{аз} = 4...8\text{ м}^3$.
- ✓ Наибольшее влияние на C_A^{opt} – объем топливного контура (объем топливной соли вне а.з.) и длительность переработки: C_A^{opt} растет при их увеличении.
- ✓ C_A^{opt} слабо (в пределах $\sim 1\%$, моль) зависит от степени извлечения ПД и состава топлива подпитки.



Модельная система в виде
бесконечной среды.
Соль FLiNaK

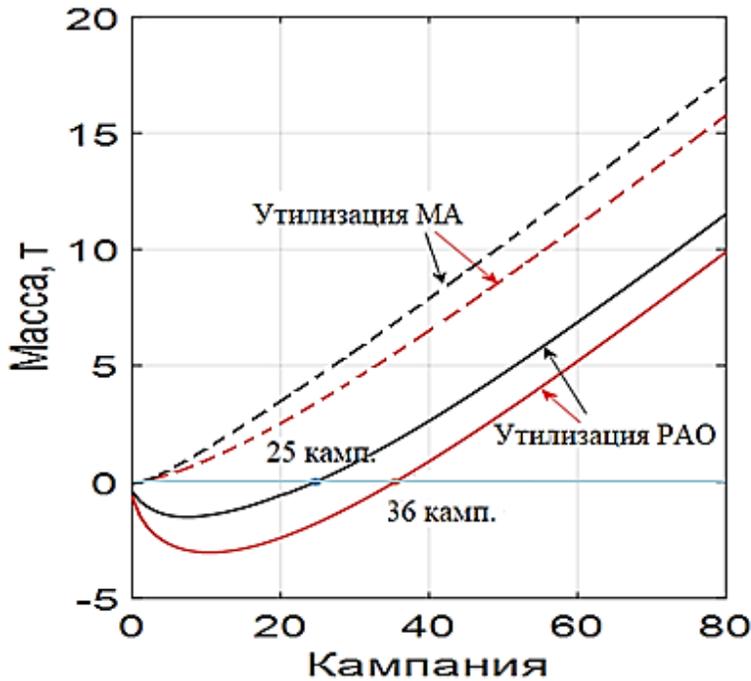
Характеристики ЖСР-С



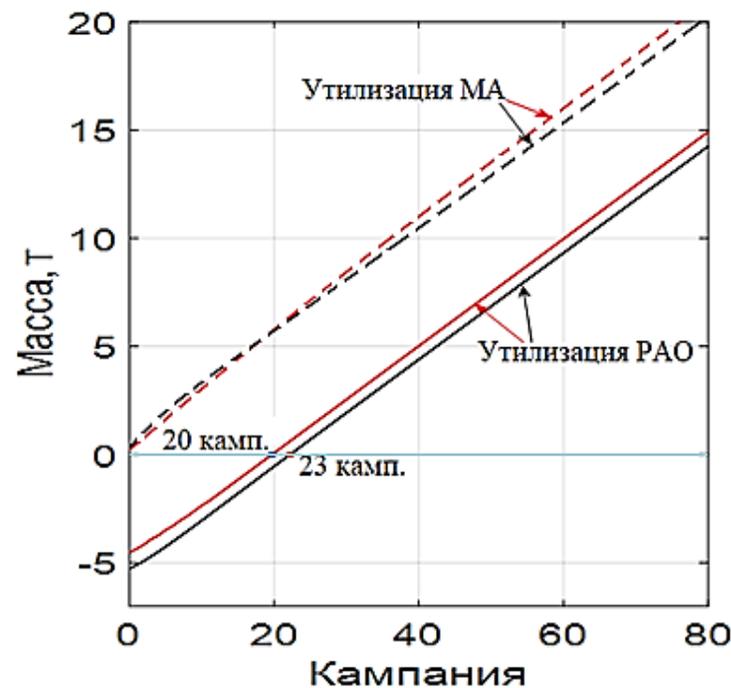
РФЯЦ-ВНИИФ
РОСАТОМ

Кандидатные соли: FLiNaK и FLiBe (73LiF–27BeF₂, %, мол.; растворимость фторидов актиноидов менее 3%, мол. при 650 °С)

Соль	C _A , %, мол.	V _{аз} , м ³	W, МВт	Φ (E>0.1 МэВ), см ⁻² с ⁻¹	<E _n >, кэВ	ΔPu, кг/год	ΔПД, кг/год
FLiNaK	11,5	8	800	1.7*10 ¹⁴	460	0	250
FLiBe	3	18	1800	10 ¹⁴	290	300	550



«Старт с Pu»



«Старт с МА»

Черные – FLiBe, красные – FLiNaK.

$$\Delta M_{MA} = M_{MA}^3 - M_{MA}^{ТЦ} - M_{MA}^{ВЫГ} \text{ (утилизация МА)}$$

$$\Delta M_{PAO} = M_{MA}^3 - M_A^{ТЦ} - M_A^{ВЫГ} \text{ (утилизация РАО)}$$

«Старт с Pu» – стартовая загрузка Pu, после каждой кампании загружается заданное количество МА.

«Старт с МА» – стартовая концентрация актиноидов в топливной соли соответствует их концентрации в равновесном режиме.

- C_A – концентрация фторидов актиноидов,
- V_{аз} – объем а.з.,
- W – тепловая мощность,
- Φ – плотность потока нейтронов,
- <E_n> – средняя энергия нейтронов,
- ΔPu – подпитка Pu в равновесном режиме,
- ΔПД – наработка ПД,
- M_{МА}³ – интегральная загрузка МА,
- M_{МА}^{ТЦ} – масса МА в ТЦ реактора,
- M_{МА}^{ВЫГ} – масса МА, выгруженная из ТЦ реактора,
- M_А^{ТЦ} – масса актиноидов в ТЦ реактора,
- M_А^{ВЫГ} – масса актиноидов, выгруженная из ТЦ реактора,



1. Основной канал трансмутации МА в ЖСР-С – переход МА в изотопы Pu и Cm и их последующее деление.
2. Высокое содержание в топливной соли четных изотопов Pu (74...82%), в том числе высокоактивных ^{238}Pu и ^{240}Pu . На современном уровне развития технологий такой Pu и образующийся ^{234}U , как и МА после извлечения из ТЦ с точки зрения обращения с ними представляют собой долгоживущие РАО.
3. Повышается доля Cm в МА за счет увеличения концентрации альфа-активных ^{242}Cm и ^{244}Cm .
4. При трансмутации 250 кг/год МА реактор нарабатывает как минимум ~250 кг радиоактивных ПД.

Учитывая эти особенности, актуален вопрос целесообразности трансмутации МА с точки зрения уменьшения их радиационной опасности.

Постановка задачи



Цель работы – оценка радиационных характеристик МА и образующихся из них нуклидов при двух вариантах обращения: хранение МА и их транмутация в ЖСР-С.

Мера радиационной опасности – эффективная доза при поступлении с пищей внутрь организма (НРБ-99/2009).

Модельные системы на основе солей FLiNaK и FLiBe:

- обеспечение трансмутации МА ~250 кг/год при энергонапряженности в а.з. 100 кВт/л,
- переработка – извлекались все ПД, длительностью выдержки пренебрегали, потери при переработке ~0.1%.

Характеристика	FLiNaK	FLiBe
C_A , %, мол.	11,5	3
$V_{аз}$, м ³	8	18
W , МВт	800	1800

Составы топливной соли рассчитывали с использованием кода «Арктика» [1] (диффузионное приближение) и программы РИСК [2] (нуклидная кинетика). Константы – ENDF\B-VII.1.

Методика расчетов



Два сценария:

- трансмутация в ЖСР-С ~250 кг/год МА
- хранение МА со скоростью накопления 250 кг/год.

Элементы, находящиеся в топливной соли, разделили на **четыре группы**, для каждой определяли активность, тепловыделение и эффективную дозу: МА, Рн, U, ПД. Группа ПД – все элементы, за исключением актиноидов и элементов, входящих в состав солевого растворителя.

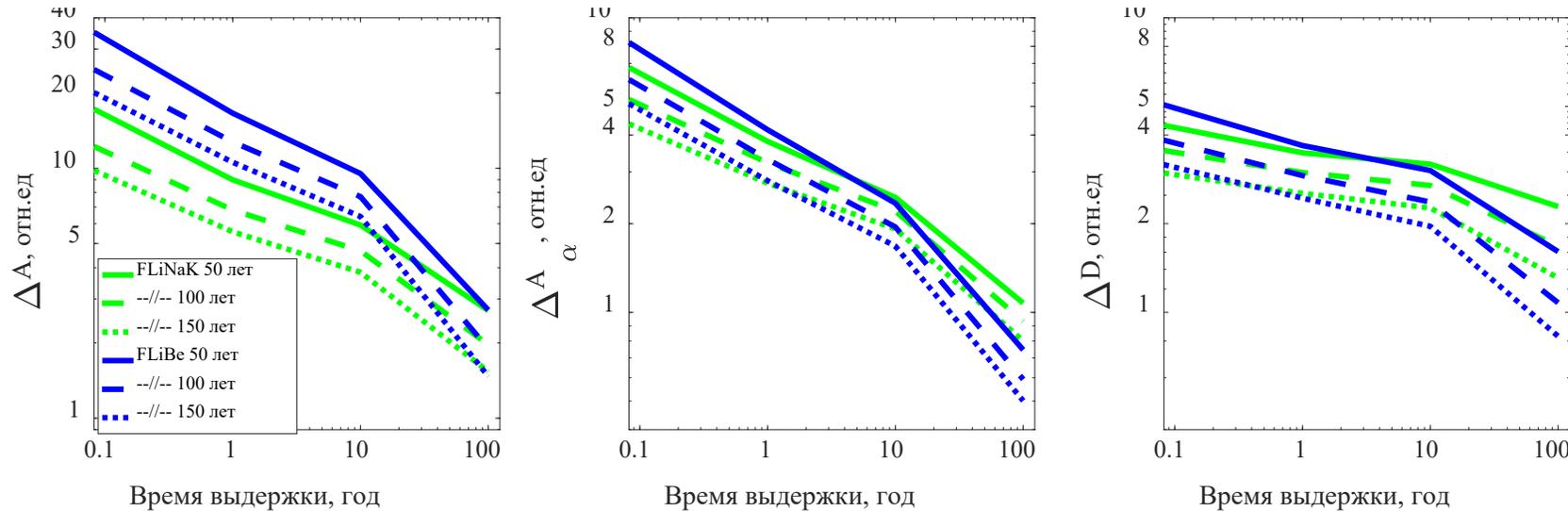
Параметр, характеризующий изменение радиационных характеристик:

$$\Delta = \frac{A_{fuel+PD}}{A_{load_MA}}$$

$A_{fuel+PD}$ – суммарная активность/доза актиноидов в соли и наработанных ПД

A_{load_MA} – активность/доза исходных МА для сценария с хранением

Результаты расчетов. Активность, эффективная доза



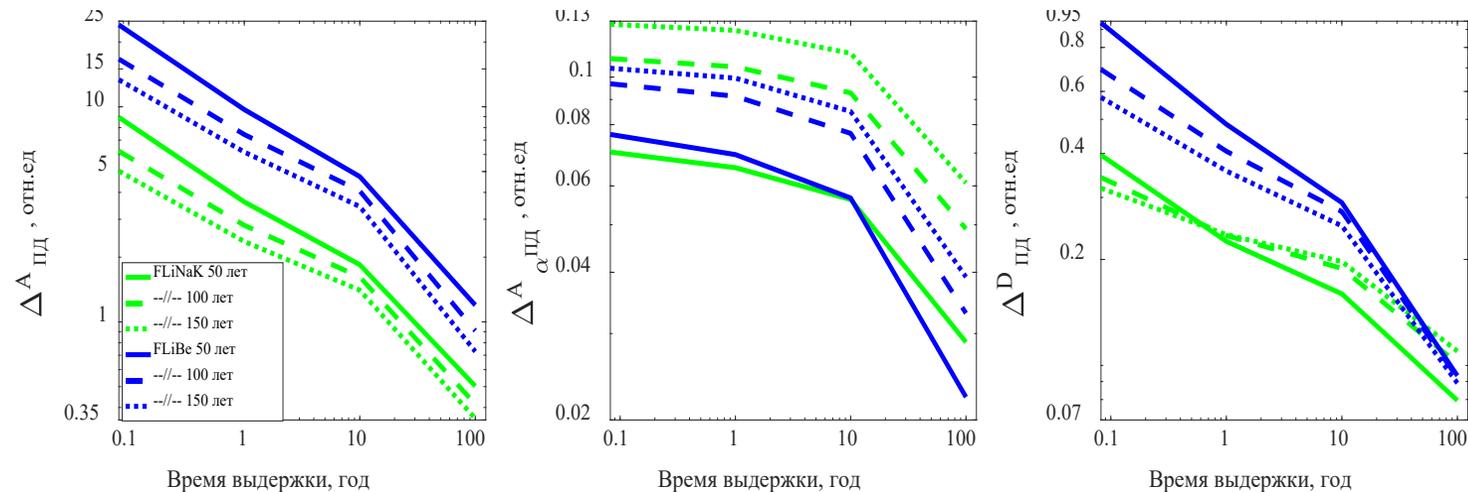
- ΔA – отношение активности
- ΔD – отношение эффективной дозы
- ΔA_α – отношение активности альфа-излучения

Отношение радиационных характеристик МА и образующихся из них нуклидов для сценариев с их транмутацией и хранением



Результаты расчетов. Предельный случай

Предельный случай – длительная эксплуатация ЖСР-С в равновесном режиме. При этом радиационные характеристики будут определяться ПД и потерями актиноидов при переработке, вклад актиноидов в топливной соли стремится к нулю.



$$\Delta A_{ПД} \quad \Delta A_{\alpha ПД} \quad \Delta D_{ПД}$$

Отношение суммарной активности, эффективной дозы, активности альфа-излучения без учета актиноидов, находящихся в топливной соли

Отношение радиационных характеристик МА и образующихся из них нуклидов для сценариев с их транмутацией и хранением (вклад в радиационные характеристики актиноидов в топливной соли пренебрежимо мал)

Радиационные характеристики равновесного состава Pu и MA



РФЯЦ-ВНИИТФ
РОСАТОМ

(на 1 грамм вещества)

Состав	Активность, *10 ¹¹ с ⁻¹	Активность альфа-излучения, *10 ¹¹ с ⁻¹	Эффективная доза при поступлении внутри с пищей, *10 ⁵ Зв
Pu_{ВВЭР}	4,12	0,22	0,11
Pu_{FLiNaK} (30 сут)	3,83	2,74	110,21
Pu_{FLiBe} (30 сут)	4,63	1,14	47,16
Pu_{FLiNaK} (1 год)	3,75	2,72	109,45
Pu_{FLiBe} (1 год)	4,46	1,13	46,94
MA_{ВВЭР}	1,77	1,73	0,54
MA_{FLiNaK} (30 сут)	10,24	10,02	158,60
MA_{FLiBe} (30 сут)	26,18	25,71	385,95
MA_{FLiNaK} (1 год)	5,29	5,08	119,55
MA_{FLiBe} (1 год)	12,83	12,52	281,50

*в названии состава в скобках указана выдержка

Выводы



- Только после 250-ти лет эксплуатации ЖСР-С и выдержки 150 лет активность актиноидов в соли, их потерь и наработанных ПД становится меньше активности МА в случае их хранения.
- Уменьшение активности наиболее биологически опасного альфа-излучения относительно сценария с хранением МА начинается после 50-ти лет эксплуатации ЖСР-С и выдержки топлива ~90-150 лет. Причем относительное уменьшение активности тем больше, чем больше длительность эксплуатации ЖСР-С.
- Если не учитывать радиационные характеристики растворенных в топливной соли актиноидов, что соответствует длительной эксплуатации ЖСР-С, активность альфа-излучения и эффективная доза через 50 лет эксплуатации и выдержке 100 лет уменьшается относительно сценария с хранением МА на 91-98%.

Для эффективной трансмутации МА необходима продолжительная эксплуатация ЖСР-С с заменой оборудования, исчерпавшего свой ресурс.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ



1. Разработана расчетная методика моделирования ТЦ ЖСР-С, позволяющая рассчитывать н.-ф. характеристики реактора, эволюцию нуклидного и хим. состава топливной соли, характеристики внешней части ТЦ, т.г. характеристики.
2. В ЖСР-С может быть реализован режим трансмутации МА **с отсутствием потребления P_u** путем поддержания определенной концентрации актиноидов в соли. Характерный диапазон концентрации, соответствующий такому режиму, составляет **10...15%, мол.** Из рассматриваемых в настоящее время солей применительно к ЖСР-С в нашей стране такое содержание может быть обеспечено в эвтектике **46,5LiF–11,5NaF–42KF.**
3. Для ЖСР-С на основе FLiNaK при тепловой мощности установки 800 МВт в оптимальном режиме реактор потребляет только МА массой ~250 кг/год, тогда как для обеспечения той же производительности трансмутации МА в ЖСР-С на основе FLiBe необходимо увеличить тепловую мощность до 2200 МВт, что приведет к потреблению энергетического P_u в равновесном режиме ~430 кг/год. За 50 лет эксплуатации установки интегральное потребление P_u в ЖСР-С на основе FLiBe ~ в два раза больше, чем для ЖСР-С на основе FLiNaK.
4. Особенностью ЖСР-С является накопление при его эксплуатации в составе плутония ^{238}Pu и ^{240}Pu , что фактически превращает такой плутоний после извлечения в РАО. Если рассматривать загруженный в ЖСР-С сторонний плутоний как РАО, то уменьшение общего количества долгоживущих РАО за счет трансмутации МА начинается не ранее, чем через 40 лет после пуска реактора и за 50 лет его эксплуатации составит не более 3 т.
5. **Эффективная трансмутация МА как с точки зрения уменьшения объемов РАО, так и с точки зрения уменьшения радиационной опасности МА возможна только при длительной эксплуатации ЖСР-С в равновесном режиме с возможной заменой оборудования, исчерпавшего свой ресурс.**

Спасибо за внимание

Михаил Николаевич Белоногов

m.n.belonogov@vniitf.ru

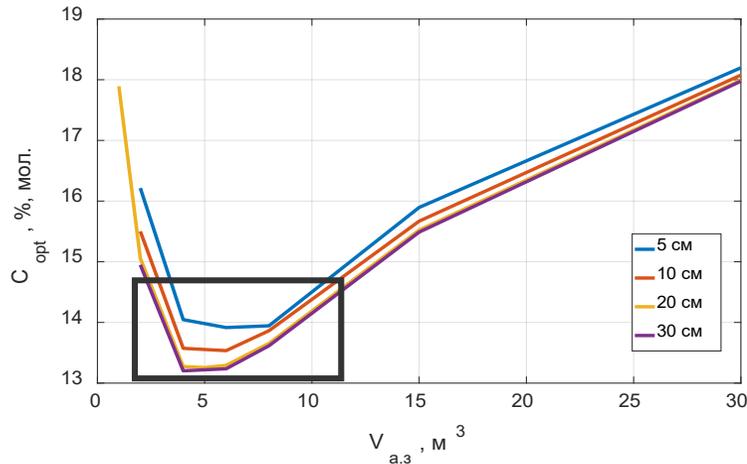
19.05.2025-23.05.2025

Влияние параметров реактора и его ТЦ на характеристики трансмутации МА

Цель: определение влияния параметров реактора и его ТЦ на характеристики трансмутации МА.

Постановка

- Соль – 46,5LiF–11,5NaF–42KF.
- *Варьировались:* объем а.з. и толщина отражателя, состав топлива подпитки, длительность кампании, объем топливного контура, параметры ТЦ (время выдержки, степень очистки от ПД, потери актиноидов).



Наблюдается минимум $C_{\text{опт}}$ в $V_{\text{а.з.}} = 4 \dots 8 \text{ м}^3$.

Наибольшее влияние на $C_{\text{опт}}$ и Load_{int} оказывает $V_{\text{т.к.}}$ и $t_{\text{репр}}$:

$V_{\text{т.к.}} \uparrow$ в 1,5 раза $C_{\text{опт}} \uparrow$ в 1,5 раза $\text{Load}_{\text{int}} \uparrow$ на 70%

$t_{\text{репр}} \uparrow$ в 1,5 раза $C_{\text{опт}}$ возрастает незначительно, $\text{Load}_{\text{int}} \uparrow$ на 20%

Степень извлечения ПД, длительность кампании, потери актиноидов практически не влияют на $C_{\text{опт}}$ и Load_{int} .

Усредненный равновесный состав актиноидов (% , мол.)

$C_{\text{опт}}$	Состав актиноидов, %				
	U	Pu	Np	Am	Cm
13,1±0,5	9,9±4,0	48,8±1,2	14,3±1,7	18,1±1,7	9,0±4,6

Выводы

- С учетом разного рода неопределенностей характерный диапазон $C_{\text{опт}} = 10 \dots 15\%$, мол.
- Состав актиноидов слабо зависит от характеристик ЖСР-С и его ТЦ.
- При тепловой мощности 800 МВт в оптимальном режиме реактор потребляет только МА массой ~ 250 кг/год.
- В зависимости от параметров реактора и его ТЦ при $V_{\text{т.к.}} = 2 \cdot V_{\text{а.з.}}$ $\text{Load}_{\text{int}} = \sim 10 \dots 25$ т. Наибольшее влияние – длительность выдержки.

$C_{\text{опт}}$ – концентрация актиноидов, соответствующая оптимальному режиму трансмутации МА

Load_{int} – интегральное потребление Pu

$V_{\text{т.к.}}$ – объем топливного контура

$V_{\text{а.з.}}$ – объем активной зоны

$t_{\text{репр}}$ – длительность переработки

Равновесный состав плутония в топливной соли

Характеристика/ название состава	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
T _{1/2} , г	87.7	2.4·10 ⁴	6.5·10 ³	14.4	3.8·10 ⁶
ОЯТ ВВЭР-1000*, %	3	55	24	10	7
LiF–BeF ₂ , %	20	17	35	9	19
LiF–NaF–KF, %	47	15	23	3	12

Состав	A, *10 ¹¹ с ⁻¹ *г ⁻¹	q, Вт*г ⁻¹
Pu, ОЯТ ВВЭР-1000*	4.1	0.02
MA, ОЯТ ВВЭР-1000*	1.8	0.16
Pu, FLiNaK	3.8	0.24
Pu, FLiBe	4.8	0.12

*состав был определен путем расчетного моделирования кампании реактора ВВЭР-1000 и согласуется с экспериментом (Петров Е.Р., Бибичев Б.А., Домкин В.Д. и др. Результаты измерения радионуклидного состава и выгорания высоковыгоревшего топлива ВВЭР-1000 разрушающими методами. – Радиохимия, 2012, т. 54, № 4, С. 348-351)

A – удельная активность
q – удельное тепловыделение

- Деградация изотопного состава Pu (доля четных изотопов 70...80%).
- Активность в два раза больше, чем у МА из ОЯТ ВВЭР.
- Сопоставимое с МА из ОЯТ ВВЭР тепловыделение.