



ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ имени академика Е.И. Забабахина»



РАСЧЕТНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ТРАНСМУТАЦИИ МИНОРНЫХ АКТИНИДОВ В ЖИДКОСОЛЕВОМ РЕАКТОРЕ НА ОСНОВЕ МОДЕЛЬНОЙ СИСТЕМЫ

XIV международная конференция «ЗАБАБАХИНСКИЕ НАУЧНЫЕ ЧТЕНИЯ»,
18–22 марта 2019 г., Снежинск

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

Введение

В России и в мире предложены различные подходы к трансмутации МА (Np, Am, Cm), как решение одной из приоритетных задач АЭ по утилизации РАО.

В настоящее время в России широко обсуждается возможность трансмутации МА в энергетических РУ с быстрым спектром нейтронов типа БРЕСТ [1] и в специализированных установках – ЖСР-С [2]. Преимуществами последнего подхода являются:

- ✓ отсутствие фабрикации топливных таблеток и твэлов, что с одной стороны уменьшит радиационную нагрузку на персонал при изготовлении топлива, а с другой – позволит использовать высокоактивное ядерное топливо с возможностью его многократного рециклирования;
- ✓ возможность обеспечения сравнительно высокого содержания МА в топливной композиции;
- ✓ непрерывная/порционная переработка топливной композиции позволит эксплуатировать установку с минимальным запасом реактивности и в широком диапазоне изотопных составов топливных загрузок;
- ✓ возможность централизованного сжигания МА в установке с пристанционным ТЦ.

[1] – 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.

[2] – Дегтярев А.М., Мясников А.А., Коляскин О.Е. и др. Жидкосолоевой подкритический реактор-сжигатель трансплутониевых изотопов. – Там же, 2013, т.114, вып.4, с. 225–232.

Требования к реактору-сжигателю МА

✓ отсутствие извлечения актинидов из топливной композиции при ее переработке. Фактически, это требование означает **реализацию замыкания топливного цикла по всем актинидам**;

✓ минимизация потребления P_u и U как основного топлива энергетических РУ.

Удовлетворение этих требований позволяет получить высокую эффективность трансмутации МА, под которой понимается **масса перешедших в ПД ядер Np , Am , Cm и их производных**. Необходимая эффективность трансмутации определяется производительностью завода по переработке ОЯТ. Например, при дожигании МА из ОЯТ ВВЭР с учетом планируемой производительности ОДЦ ~ 250 т/год [3] эффективность трансмутации должна составлять ~ 250 кг/год.

Дополнительно к вышеуказанным требованиям к реактору-сжигателю целесообразно обеспечить:

✓ минимизацию массы актинидов в топливной загрузке в равновесном режиме трансмутации;

✓ устойчивость характеристик реактора к возможным вариациям состава топливной композиции.

[3] – Пятый национальный доклад Российской Федерации о выполнении обязательств, вытекающих из Объединенной конвенции о безопасности обращения с отработавшим топливом и о безопасности обращения с радиоактивными отходами. – М., 2017

Цель и задачи работы

При оценке эффективности трансмутации Np , Am и Cm в ЖСР-С основной интерес представляют характеристики **равновесного режима трансмутации**. Такой режим реализуется, когда изотопный состав и масса топлива подпитки остаются практически постоянными.

Максимально возможная эффективность трансмутации МА может быть достигнута, когда в составе топлива подпитки будут только соли МА. При этом масса МА в топливе подпитки эквивалентна массе разделившихся ядер Np , Am , Cm (~320 кг/год при тепловой мощности ЖСР-С 1 ГВт).

Основной целью настоящей работы является определение на примере идеальной модельной системы основных характеристик равновесного режима трансмутации МА, удовлетворяющих требованиям к ЖСР-С.

Задачи работы:

- ✓ выбрать базовый вариант модельной системы, удовлетворяющий требованиям к ЖСР-С и обеспечивающий максимально возможную эффективность трансмутации МА;
- ✓ исследовать устойчивость базового варианта к составу топлива подпитки;
- ✓ оценить возможности обеспечения критичности модельной системы при выходе в равновесный режим трансмутации.

Постановка задачи

В качестве идеальной модельной системы рассматривается сфера, заполненная топливной композицией, с граничными условиями зеркального отражения нейтронов.

- ✓ солевой растворитель – эвтектика FLiNaK [4] молярного состава, %: 46,5LiF–11,5NaF–42KF;
- ✓ температура топливной композиции 650 С;
- ✓ плотность энерговыделения 100 кВт/л;
- ✓ длительность кампании 300 эф. сут;
- ✓ после каждой кампании перерабатывается вся топливная композиция: извлекаются все продукты деления, добавляется топливо подпитки – фториды Np, Am, Cm.
- ✓ изотопные составы плутония и МА получены с помощью программного комплекса ПРИЗМА+РИСК [5, 6] и соответствуют ОЯТ ВВЭР-1000 с выгоранием 35 ГВт*сут/т и выдержкой 10 лет.

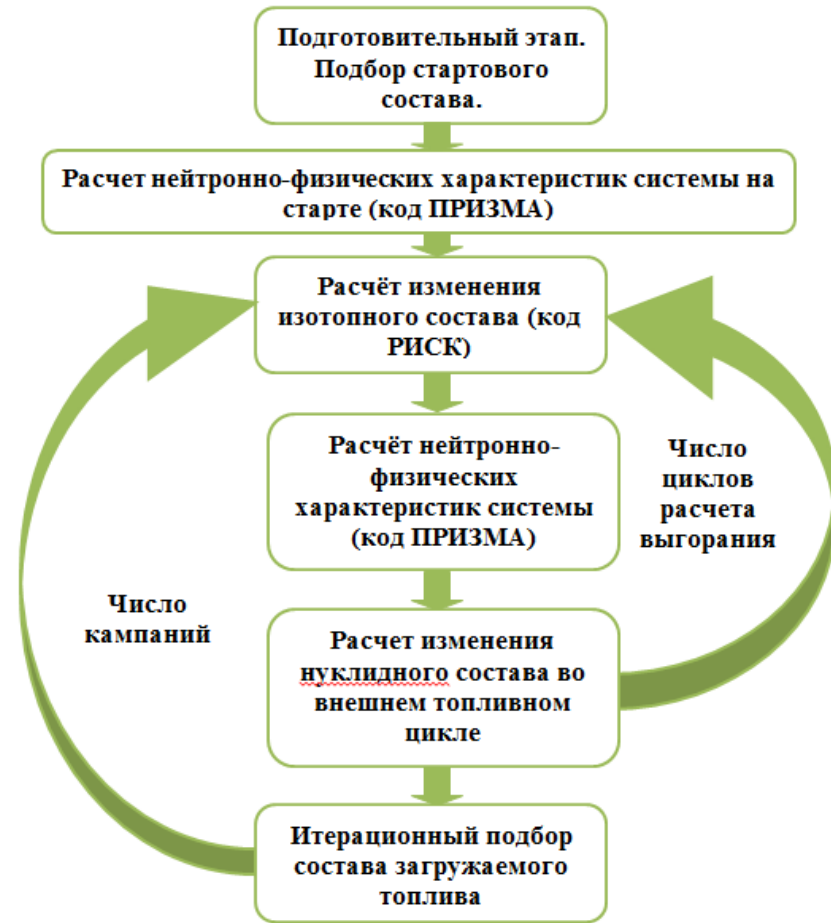
[4] – Лизин А.А., Томилин С.В, Гневашов О.Е., и др., Растворимость PuF₃, AmF₃, CeF₃, NdF₃ в расплаве LiF-NaF-KF // Атомная энергия. – 2013. – Т. 115. – Вып. 1. – С. 11-16.

[5] – Кандиев Я.З. Оценка эффектов малых возмущений в многовариантных расчётах по программе ПРИЗМА-Д // Атомная энергия. – 2005. – Т. 99. – Вып. 3, С. 203 – 210.

[6] – Модестов Д.Г. Программа решения задач ядерной кинетики РИСК-2014 // Препринт РФЯЦ-ВНИИТФ №243. – 2014.

Методика расчетов

Рассчитывалась эволюция изотопного состава топливной композиции в течение нескольких кампаний, в конце каждой из которых моделировалась перегрузка. При перегрузке из топливной композиции извлекались продукты деления, добавлялось топливо подпитки. Количество актиноидов в топливе подпитки определялось из условия сохранения мольной доли актиноидов в топливной композиции на начало каждой кампании. Расчет выполнялся до момента выхода системы в равновесный режим трансмутации Np , Am и Cm .



Представленные далее результаты являются расчетными. Получены с помощью программного комплекса ПРИЗМА+РИСК и ядерных констант, подготовленных на основе библиотеки оцененных ядерных данных ENDF-B-VII.

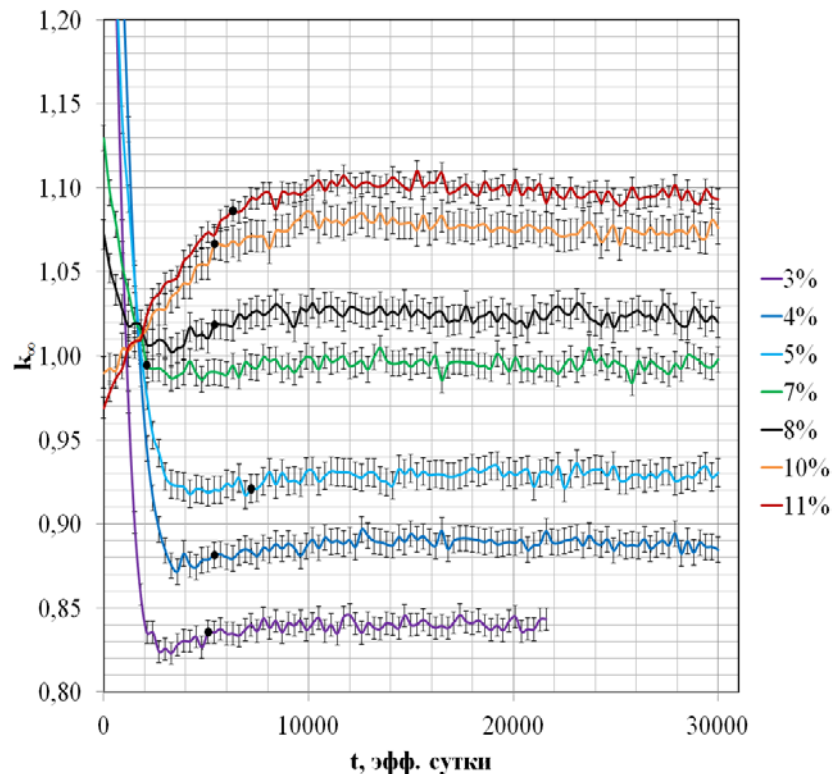
Выбор базового варианта модельной системы

Параметры режима равновесной трансмутации МА не зависят от стартового состава актинидов в а.з. и определяются их мольной долей в топливной композиции и нуклидным составом подгружаемого топлива.

Критичность системы на начало кампании в равновесном режиме трансмутации МА

Мольная доля актинидов, %	3	4	5	7	8	10	11
Кэф	0.838	0.884	0.924	0.993	1.024	1.079	1.099
$\sigma, 10^{-3}$	3.3	3.8	4.1	3.8	4.4	4.7	3.1

В качестве базового варианта модельной системы выбран вариант с мольной долей актинидов в топливной композиции 8%. В этом случае достигается максимально возможная эффективность трансмутации, при этом критичность системы $\sim 1,02$.



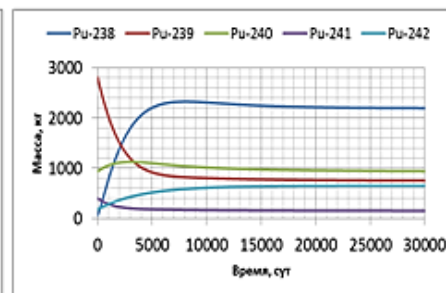
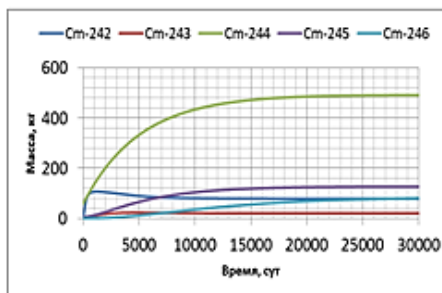
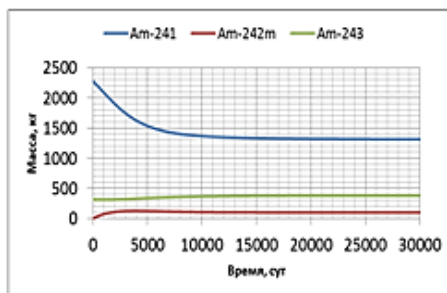
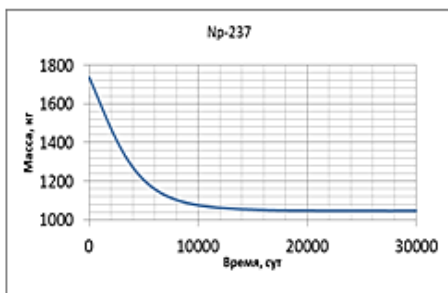
Характеристики равновесного режима трансмутации МА для базового варианта модельной системы

Равновесный состав а.з. в расчете на 1 ГВт тепловой мощности

Изотопный состав а.з., кг							
Изотоп	Масса	Изотоп	Масса	Изотоп	Масса	Элементы	Масса
^{237}Np	1047	^{244}Cm	491	^{241}Pu	152,	Pu	4693
^{241}Am	1312	^{245}Cm	127	^{242}Pu	652	U	437,
$^{242\text{m}}\text{Am}$	99	^{246}Cm	81	^{234}U	298	МА	3658
^{243}Am	379	^{238}Pu	2196	^{235}U	70	Актиниды	8788
^{242}Cm	78	^{239}Pu	752	^{236}U	70	МА/Ас	0,4
^{243}Cm	20	^{240}Pu	941	^{238}U	0,1	Pu/МА	1,3

Химический состав а.з., % (в приближении, что Pu, Am, Cm находятся в топливной композиции в виде трифторидов, а U и Np – тетрафторида)

Соединение	Мольная доля	Соединение	Мольная доля	Соединение	Мольная доля
NpF_4	0,96	CmF_3	0,73	UF_4	0,41
AmF_3	1,62	PuF_3	4,28	FLiNaK	92



Исследование устойчивости базового варианта модельной системы к составу топлива подпитки

Рассматривались 5 вариантов топлива подпитки, состоящих из ^{241}Am и ^{237}Np с разным мольным соотношением:

- (1) AmF_3 , (2) $25\text{NpF}_3+75\text{AmF}_3$
 (3) $50\text{NpF}_3+50\text{AmF}_3$,
 (4) $75\text{NpF}_3+25\text{AmF}_3$, (5) NpF_3

Критичность системы меняется в пределах $\sim 1\%$, что говорит об **устойчивости** нейтронно-физических характеристик системы к составу топлива подпитки, **критичность системы определяется, преимущественно, мольной доле актинидов в топливной композиции.**

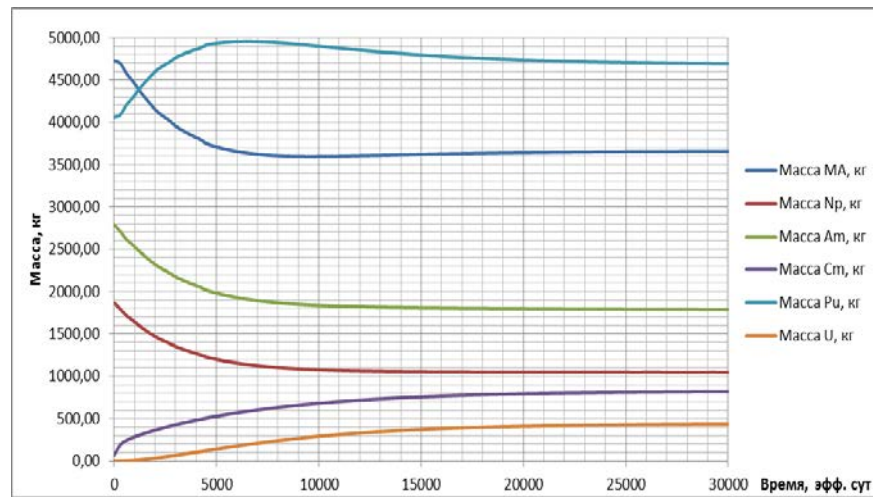
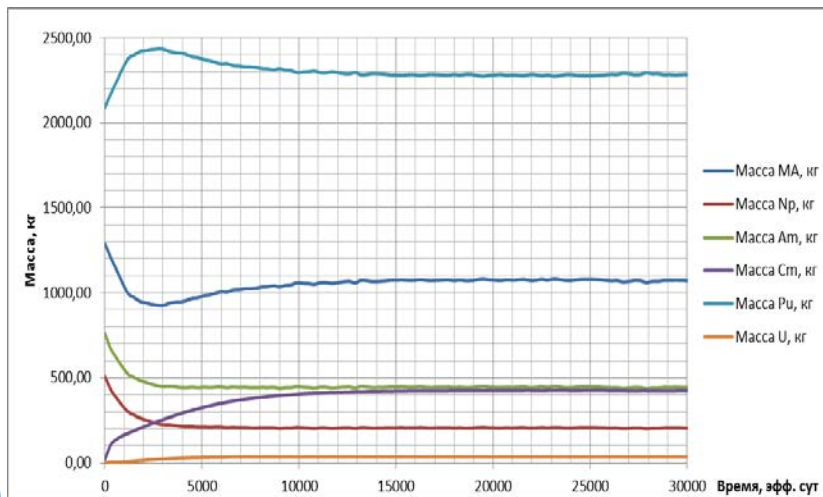
Критичность системы на начало кампании и состав актинидов топливной композиции на конец кампании при тепловой мощности системы 1 ГВт в равновесном режиме трансмутации

Вариант состава МА	Базовый вариант	AmF_3	$25\text{NpF}_3+75\text{AmF}_3$	$50\text{NpF}_3+50\text{AmF}_3$	$75\text{NpF}_3+25\text{AmF}_3$	NpF_3
Кэф	1,024	1,012	1,014	1,017	1,019	1,02
U	438	388	443	500	559	620
^{234}U	298	264	302	342	384	427
^{235}U	70	62	70	79	89	98
^{236}U	70	63	71	79	87	95
Pu	4694	4682	4816	4954	5094	5237
^{238}Pu	2197	1958	2220	2490	2768	3053
^{239}Pu	752	673	759	848	938	1032
^{240}Pu	941	807	828	848	867	884
^{241}Pu	152	132	134	137	139	142
^{242}Pu	652	1112	874	631	381	126
МА	3349	3749	3536	3314	3090	2860
^{237}Np	925	38	671	1328	2010	2716
^{241}Am	1152	2451	1882	1291	678	43
^{242m}Am	99	184	142	97	51	3
^{243}Am	357	321	253	183	109	34
^{242}Cm	79	147	112	76	40	3
^{243}Cm	20	37	28	19	10	1
^{244}Cm	487	393	308	220	131	40
^{245}Cm	126	101	79	57	34	11
^{246}Cm	81	61	48	34	21	7
^{247}Cm	14	10	8	6	4	1

Исследование возможностей обеспечения критичности при выходе в равновесный режим трансмутации МА – 1

В реальных условиях эксплуатации ЖСР-С его критичность на стадии выхода в равновесный режим трансмутации МА может быть обеспечена путем добавления в топливную композицию солей Рu.

Для исследования возможностей обеспечения критичности ЖСР-С были проведены расчеты модельной системы с корректировкой состава топливной композиции. Подбор стартового состава и состава топлива подпитки после каждой кампании осуществляется путем определения мольной доли фторида Рu в смеси актинидов, обеспечивающей критичность системы $\sim 1,01$. При этом мольная доля всех фторидов актинидов в топливной соли поддерживалась постоянной. Рассматривались варианты с мольной долей актинидов в топливной композиции – 3 (рис. слева)...8 (рис. справа)%.



Исследование возможностей обеспечения критичности при выходе в равновесный режим трансмутации МА – 2

Мольная доля фторидов актиноидов в топливной композиции, %	3	4	5	7	8
Стартовая/равновесная загрузка (на конец кампании), кг					
U	0/34	0/76	0/138	0/327	0/438
²³⁴ U	0/20	0/46	0/87	0/217	0/298
²³⁵ U	0/6	0/13	0/24	0/53	0/70
²³⁶ U	0/7	0/16	0/27	0/56	0/70
Pu	2089/2132	2604/2796	3057/3361	3758/4264	4060/4694
²³⁸ Pu	28/462	35/750	42/1086	51/1854	55/2197
²³⁹ Pu	1337/382	1666/511	1956/602	2404/711	2598/752
²⁴⁰ Pu	446/736	557/897	653/974	803/938	868/941
²⁴¹ Pu	191/194	238/208	280/205	344/165	371/152
²⁴² Pu	86/358	108/431	127/493	155/595	168/652
МА	1290/916	1878/1316	2518/1778	3970/2833	4728/3349
²³⁷ Np	509/143	742/250	995/390	1568/743	1868/925
²⁴¹ Am	669/204	974/342	1305/517	2058/937	2451/1152
^{242m} Am	0/20	0/32	0/47	0/82	0/99
²⁴³ Am	93/128	135/169	181/213	285/308	340/357
²⁴² Cm	0/40	0/50	0/59	0/74	0/79
²⁴³ Cm	0,2/13	0,3/16	0,4/17	0,7/20	0,8/20
²⁴⁴ Cm	17/231	25/289	34/344	53/446	64/487
²⁴⁵ Cm	1/72	2/87	3/99	4/120	5/126
²⁴⁶ Cm	0,08/46	0,1/57	0,2/67	0,3/78	0,3/81
²⁴⁷ Cm	0/11	0/13	0/14	0/14	0/14
²⁴⁸ Cm	0/9	0/11	0/11	0/10	0/9
Потребление (трансмутация) за кампанию МА, Pu в равновесном режиме эксплуатации, кг					
МА	156	192	229	292	310
Pu	151	116	80	18	0

Выводы – 1

- **Критичность системы в равновесном режиме транмутации МА определяется содержанием актинидов в топливной композиции.**
- Критичность системы слабо зависит от состава МА в топливе подпитки, что говорит об устойчивости нейтронно-физических характеристик системы.
- Для **базового варианта** с мольной долей актинидов в топливной композиции **8%**:
 - ✓ модельная система выходит в равновесный режим, при котором обеспечивается **максимально возможная эффективность трансмутации**: для тепловой мощности системы 1 ГВт она составит ~320 кг/год. В равновесном режиме работы масса актинидов в топливной композиции составит ~ 8788 кг: ~4693 кг Pu, 437 кг U, 1047 Np, 1790 кг Am, 797 кг Cm. При этом за каждые 300 эф. сут **система переводит в продукты деления ~122 кг Np, 183 кг Am и 5 кг Cm**;
 - ✓ критичность системы на начало кампании ~1,02, а выбег реактивности не превышает 1%;
 - ✓ **сравнительно низкое потребление плутония** при выходе в равновесный режим работы (~4060 кг стартовая загрузка и ~ 220 кг дополнительная подпитка за 50 лет работы в расчете на 1 ГВт тепловой мощности). При этом время выхода составит ~7 лет, за это время **система потребит на 1 ГВт тепловой мощности за 300 эф. сут в среднем ~24 кг Pu, 112 кг Np, 168 кг Am, 4 кг Cm.**

Выводы – 2

- Для обеспечения эффективности трансмутации МА ~250 кг/год в равновесном режиме работы тепловая мощность системы с мольной долей актинидов в топливной композиции 8% должна составлять ~ 800 МВт, объем а.з. 8 м³ при средней энергонапряженности 100 кВт/л.
- При мольной доле актинидов в топливной композиции ~3%, что соответствует пределу их растворимости в солях $73\text{LiF}-27\text{BeF}_2$ и $15\text{LiF}-58\text{NaF}-27\text{BeF}_2$, в равновесном режиме **эффективность трансмутации *Np, Am, Cm* на 1 ГВт тепловой мощности за 300 эф. сут составит ~156 кг (62 кг *Np*, 92 кг *Am*, 2 кг *Cm*) при необходимости дополнительной подпитки плутонием ~151 кг.** Равновесный режим трансмутации в этом случае достигается через ~5 лет. **За этот период система потребит в среднем на 1 ГВт тепловой мощности за 300 эф. сут ~161 кг *Pu*, 58 кг *Np*, 86 кг *Am* и 2 кг *Cm*.**

В дальнейшем предполагается разработка принципиальной схемы реактора. Определение наиболее эффективных режимов его работы, оценка коэффициентов реактивности и формулировка предложений по конструкции СУЗ.

Основными проблемами при решении этих задач являются отсутствие полной информации о растворимости смеси солей актинидов в носителе, а также неопределённость в выборе конструкционных материалов. Предполагается, что такие данные будут получены в рамках работ по разработке ЖСР.

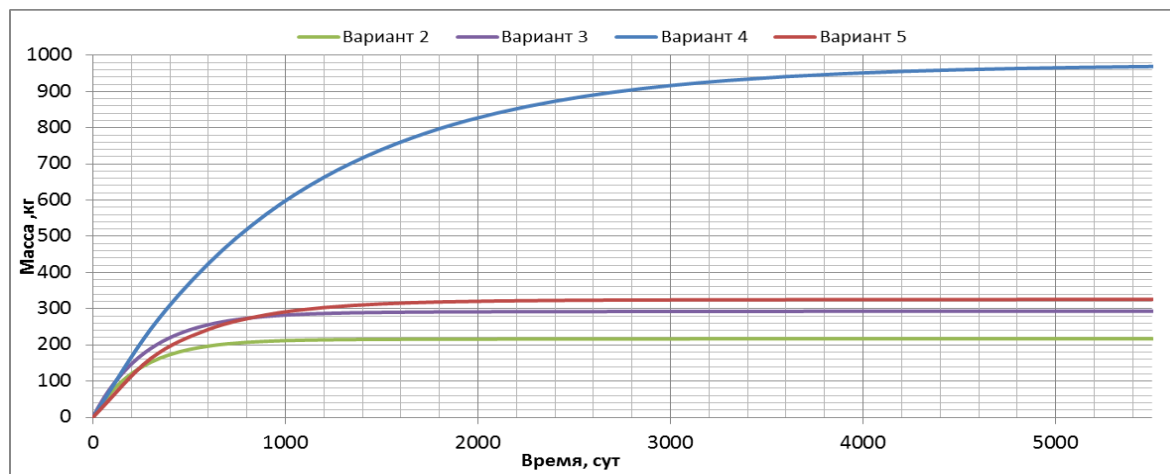
Спасибо за внимание!

Исследование устойчивости ЖСР-С. Режим переработки – 1

Рассмотренные режимы переработки топливной композиции:

- ✓ в течение кампании k -раз через одинаковые промежутки времени T/k ($T = 300$ эф. сут.) перерабатывалась $1/k$ - часть топливной композиции. Для базового варианта $k=1$, дополнительно рассмотрены варианты с $k = 3$ (вариант 2), $k=10$ (вариант 3). В этом случае при работе системы в равновесном режиме на конец кампании масса ПД в а.з. составит $m_{МАmax}$, а на начало кампании $m_{МА}^*(1-k^{-1})$,
- ✓ при фиксированной длительности кампании $T = 300$ эф. сут. в конце кампании перерабатывается $1/k$ - часть топливной композиции. Для базового варианта $k=1$, дополнительно рассмотрены варианты с $k = 4$ (вариант 4), $k=2$ (вариант 5). При данных условиях при работе системы в равновесном режиме на конец кампании масса ПД в а.з. составит $m_{МАmax}^*k$, а на начало кампании $m_{МАmax}^*(k-1)$.

Зависимость массы ПД в а.з. от времени на начало кампании в равновесном режиме трансмутации МА (для базового варианта масса ПД равна нулю)



Исследование устойчивости ЖСР-С. Режим переработки – 2

Критичность системы в равновесном режиме трансмутации МА при различных режимах переработки

Режим переработки	1	2	3	4	5
$K_{эф}$	1,024	1,026	1,029	0,993	1,013
$\sigma, 10^{-3}$	3,7	3,4	3,2	2,6	3,3

При уменьшении части перерабатываемого топлива и при соответствующем увеличении частоты переработки нуклидный состав и критичность системы в равновесном режиме трансмутации МА практически не изменяются (варианты 1, 2 и 3). Это означает, что частота переработки топлива при фиксированном годовом объеме переработки топлива практически не влияет на нейтронно-физические характеристики системы и может быть выбрана, в частности, исходя из технологических возможностей.

Сокращение доли перерабатываемого топлива при фиксированной частоте переработки ведет к накоплению ПД в а.з. и снижению $K_{эф}$ системы в равновесном режиме трансмутации МА, что ограничивает (снизу) долю перерабатываемого топлива при заданной длительности кампании (эквивалентно ограничению сверху длительности кампании при заданном объеме переработки топлива).

Исследование устойчивости ЖСР-С. Плотность энерговыделения и состав солевого растворителя

Варианты плотности энерговыделения в а.з. ЖСР-С:

- ✓ 50 кВт/л;
- ✓ 100 кВт/л (базовый вариант);
- ✓ 200 кВт/л.

Плотность энерговыделения	50 кВт/л	100 кВт/л	200 кВт/л
Кэф	1,004	1,024	1,031
$\sigma, 10^{-3}$	3,1	3,7	3,1
$\Phi, \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$	0,82	1,62	3,2
$E_{\phi}, \text{ кэВ}$	395	401	404

Солевой растворитель	FLiNaK	FLiBe (73LiF-27BeF ₂)	FLiBeNa (15LiF-58NaF-27BeF ₂)	67KCl-33MgCl ₂
Кэф	1,024	1,018	1,015	1,023
$\sigma, 10^{-3}$	3,7	4,2	3,7	3,6
$E_{\phi}, \text{ кэВ}$	401	389	420	446

Для рассмотренных солевых носителей различие в $K_{эф}$ в равновесном режиме трансмутации МА мало ($\sim 1\%$). Также мало различие в средней энергии нейтронов ($\sim 10\%$). Необходимая для достижения критичности мольная доля актинидов в а.з. для них будет примерно одинаковой и выбор солевого носителя практически не влияет на нейтронно-физические характеристики системы.

Исследование возможностей обеспечения критичности при выходе в равновесный режим трансмутации МА – 3

Масса подгружаемого плутония для различных мольных долей актинидов в топливной композиции в зависимости от кампании

