

СТАТЬИ

УДК 621.039.542.44

БЫСТРЫЙ ЖИДКОСОЛЕВОЙ РЕАКТОР НА ОСНОВЕ ЭВТЕКТИКИ LiF—NaF—KF КАК СЖИГАТЕЛЬ Np, Am, Cm

Пономарев Л.И. (АО «ВНИИНМ», г. Москва),

Белоногов М.Н., Волков И.А., Симоненко В.А., Шереметьева У.Ф.

(РФЯЦ — ВНИИТФ, г. Снежинск, Челябинская обл.)

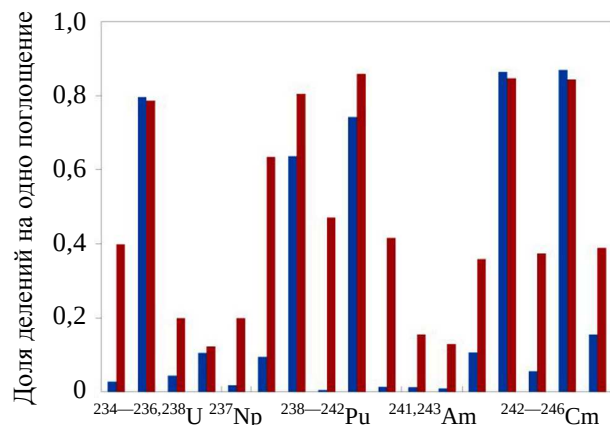
e-mail: m.n.belonogov@vniitf.ru, i.a.volkov@vniitf.ru

Отработавшее ядерное топливо, производимое наиболее распространенными в мире легководными реакторами, более чем на 98,5% состоит из урана и короткоживущих продуктов деления, которые не представляют радиационной опасности в долгосрочной перспективе. Примерно 0,4% массы отработавшего топлива составляют продукты деления, представленные изотопами цезия, стронция, технеция и иода. Основной вклад в долговременную активность и энерговыделение вносят долгоживущие изотопы Pu (~1%) и изотопы Np, Am, Cm (~0,1%). Утилизация последних является одной из основных проблем, которые ставят под вопрос дальнейшее развитие ядерной энергетики. По оценкам МАГАТЭ, к 2013 г. в мире было накоплено ~370 тыс. т отработавшего топлива, из них более 500 т Np, Am, Cm [1]. Период полураспада некоторых из них составляет тысячи и миллионы лет, и в настоящее время нет научно обоснованных гарантий безопасного геологического захоронения на время, сравнимое с их временем жизни.

В выгружаемом топливе ВВЭР-1000 (урановая загрузка обогащением 4,5% ^{235}U , выгорание ~35 ГВт·сут/т, 3 года хранения) согласно расчетам содержание Np, Am и Cm составляет 415, 290 и 20 г/т соответственно. При хранении отработавшего ядерного топлива количество америция увеличивается за счет β -распада $^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Am}$, масса кюрия уменьшается за счет α -распада в изотопы плутония. После 10 лет хранения содержание Np и Am увеличится до 420 и 616 г/т соответственно, Cm уменьшится до 15 г/т. После 50 лет хранения количество Np и Am составит 481 и 1253 г/т соответственно, со-

держание Cm уменьшится до 4 г/т. Короткоживущие изотопы ^{243}Cm и ^{244}Cm распадутся за ~300 лет, примерно так же, как ^{90}Sr и ^{137}Cs , и лишь малая часть — долгоживущие изотопы ^{245}Cm и ^{246}Cm требует особого рассмотрения. Поэтому для уменьшения общего количества америция в отработавшем топливе целесообразно минимизировать время хранения актиноидов перед переработкой и их повторным использованием.

Для снижения радиационной опасности направляемых на захоронение радиоактивных отходов рассматривается извлечение Np, Am, Cm и их трансмутация [2]. Трансмутация определяется как перевод этих актиноидов и их производных в стабильные или короткоживущие продукты деления. Из рис. 1 следует, что с точки зрения экономии нейтронов трансмутировать актиноиды предпочтительнее в быстром нейтронном спектре [3, 4].



Р и с. 1. Доля делений на одно поглощение для основных актиноидов в реакторах типа ВВЭР-1000 (■) и БРЕСТ-1200 (■)

Трансмутация Np, Am, Cm в быстрых реакторах, в частности, в жидкосольевых активно обсуждается в последние годы [5]. Для обеспечения быстрого спектра нейтронов в таком реакторе необходимо поддерживать высокую концентрацию актиноидов в активной зоне. В физико-химических исследованиях свойств эвтектики молярного состава, %: 46,5LiF—11,5NaF—42KF была показана высокая растворимость в ней фторидов актиноидов [6—9]. Это позволяет рассматривать возможность создания быстрого жидкосольевого реактора с уран-плутониевым топливом на основе эвтектики LiF—NaF—KF и БЖСР-сжигателя с высокой эффективностью трансмутации Np, Am, Cm [10—12].

В настоящей статье приведены расчеты нейтронно-физических характеристик и изменения изотопного состава топливной композиции активной зоны БЖСР-сжигателя на основе эвтектики молярного состава, %: 46,5LiF—11,5NaF—42KF при упрощенном описании его конструктивной схемы, замыкания топливного цикла и в предположении, что актиноиды в требуемом количестве растворяются в несущей соли. Оценивается эффективность трансмутации Np, Am, Cm для разных топливных композиций и объемов активной зоны.

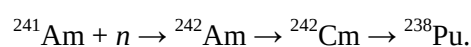
Кинетика трансмутации. Для определения основных каналов наработки и выгорания Np, Am и Cm в БЖСР введем понятие «период полувывожения» $\tau_{1/2}$ и по аналогии с периодом полураспада определим его как время, за которое трансмутируется половина ядер изотопа в реакциях деления и радиационного захвата нейтронов:

$$\tau_{1/2} = \frac{\ln 2}{\int \sigma_a(E) \Phi(E) dE},$$

где $\sigma_a = \sigma_f + \sigma_c$ — сумма микроскопических сечений деления и радиационного захвата; $\Phi(E)$ — плотность потока нейтронов. Период полувывожения и другие характеристики изотопов, приведенные в табл. 1, рассчитаны для БЖСР с урановой стартовой загрузкой (вариант 4 в табл. 2).

Нептуний, содержащийся в отработавшем топливе тепловых реакторов, представлен преимущественно ^{237}Np (>99%). Основные каналы его наработки — последовательный захват

нейтронов изотопами урана до ^{237}U с его последующим β -распадом и α -распад ^{241}Am . Из табл. 1 следует, что скорость выгорания ^{237}Np в БЖСР ($\tau_{1/2} = 10,8$ года) сравнима со скоростью выгорания ^{238}Pu ($\tau_{1/2} = 10,7$ года) и ^{239}Pu ($\tau_{1/2} = 9,3$ года). Доля делений ^{237}Np на одно поглощение нейтрона составляет ~30%. ^{237}Np в продукты деления переходит, в основном, за счет его превращения в ^{238}Pu с последующим делением. В совокупности с большей вероятностью деления ^{237}Np в быстром спектре нейтронов это обеспечивает его высокую эффективность трансмутации. Другим каналом образования ^{238}Pu служит последовательность реакций



В потоке нейтронов ~59% ядер ^{238}Pu перейдут в продукты деления, ~30% — в ^{239}Pu и примерно 11% распадается в ^{234}U .

Америций в составе отработавшего топлива представлен двумя изотопами — ^{241}Am и ^{243}Am (>99%). Изотопы америция образуются в реакторе из ^{241}Am и изотопов плутония. Основным каналом образования ^{241}Am является β -распад ^{241}Pu , ^{243}Am нарабатывается преимущественно из ^{242}Pu и ^{241}Am . В потоке нейтронов 24% ядер ^{241}Am перейдут в продукты деления, 63% — в ^{242}Am и ~11% — в долгоживущий делящийся изотоп ^{242m}Am , период полураспада которого 141 год. Период полувывожения ^{242}Am примерно в 10 тыс. раз больше его периода полураспада, поэтому почти весь образовавшийся ^{242}Am распадается в ^{242}Cm (~83%) или ^{242}Pu (~17%), не вступая во взаимодействие с нейтронами. Нарботка ^{242}Pu приводит к дополнительному образованию ^{243}Am . В цепочке превращений $^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{243}\text{Pu} \rightarrow ^{243}\text{Am}$ ~5,4% ^{241}Am переходит в ^{243}Am , в цепочке $^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242m}\text{Am} \rightarrow ^{243}\text{Am}$ ~1,3% ^{241}Am в ^{243}Am . ^{242}Cm с периодом полураспада 163 сут и $\tau_{1/2} \sim 35$ лет в активной зоне реактора почти весь переходит в ^{238}Pu в результате α -распада.

Одной из трудных является двуединая задача трансмутации ^{243}Am и образующегося из него ^{244}Cm . Для ^{243}Am сечение радиационного захвата примерно в 3,6 раза больше сечения деления. В цепочке его превращений при взаимодействии с нейтроном ~22% ядер ^{243}Am делятся и ~78% превращаются в ^{244}Am , период полураспада которого 10,1 ч. Лишь небольшая часть ~0,2% ^{243}Am путем α -распада превращается в ^{239}Np с

Таблица 1. Основные изотопы актиноидов отработавшего топлива ВВЭР-1000 и их нейтронно-физические характеристики в спектре БЖСР на время старта и через 50 лет*

Изотоп	m , г/т	Период полураспада, год	$\tau_{1/2}$, год		σ_c , б		σ_f , б		α		ν		β , %	
			старт	50 лет	старт	50 лет	старт	50 лет	старт	50 лет	старт	50 лет	старт	50 лет
^{234}U	5	$2,455 \cdot 10^5$	19,86	14,06	0,518	0,798	0,483	0,364	1,07	2,19	2,59	2,57	0,49	0,49
^{235}U	13 271	$7,04 \cdot 10^8$	8,84	5,29	0,466	0,758	1,780	2,328	0,26	0,33	2,46	2,44	0,67	0,68
^{236}U	4401	$2,342 \cdot 10^7$	34,78	22,21	0,384	0,596	0,187	0,139	2,05	4,27	2,61	2,59	0,86	0,87
^{238}U	821 695	$4,468 \cdot 10^9$	52,06	29,8	0,296	0,488	0,086	0,060	3,46	8,18	2,72	2,71	1,55	1,56
^{237}Np	415	$2,144 \cdot 10^6$	10,80	6,51	1,338	2,135	0,501	0,374	2,67	5,7	2,91	2,90	0,36	0,37
^{238}Np	—	2,117 сут	8,36	5,11	0,389	0,561	1,987	2,638	0,20	0,21	2,77	2,77	0,77	0,77
^{238}Pu	130	87,7	10,69	7,44	0,628	0,977	1,232	1,219	0,51	0,8	3,06	3,01	0,14	0,14
^{239}Pu	5766	24 110	9,29	5,99	0,400	0,751	1,740	1,976	0,23	0,38	2,98	2,94	0,22	0,22
^{240}Pu	1915	6561	18,27	13,91	0,532	0,733	0,556	0,441	0,96	1,66	3,06	3,03	0,29	0,29
^{241}Pu	1148	14,29	7,32	4,5	0,385	0,607	2,331	3,019	0,17	0,2	2,98	2,95	0,54	0,54
^{242}Pu	368	$3,75 \cdot 10^5$	23,82	17,45	0,413	0,620	0,421	0,316	0,98	1,96	3,10	3,08	0,62	0,63
^{243}Pu	—	4,956 ч	16,73	9,99	0,325	0,547	0,863	1,088	0,38	0,5	—	—	—	—
^{241}Am	215	432,6	10,35	6,13	1,447	2,312	0,473	0,352	3,06	6,56	3,52	3,5	0,12	0,12
^{242}Am	—	16 ч	52,87	14,37	0,047	0,151	0,329	0,986	0,14	0,15	—	—	—	—
^{242m}Am	—	141	6,32	—	0,357	—	2,646	—	0,14	—	—	—	—	—
^{243}Am	75	7370	11,83	6,98	1,319	2,074	0,361	0,268	3,65	7,75	3,57	3,55	0,22	0,22
^{244}Am	—	10,1 ч	5,52	3,47	0,703	0,914	2,895	3,799	0,24	0,24	—	—	—	—
^{242}Cm	0,1	0,45	35,09	22,04	0,257	0,521	0,309	0,22	0,83	2,36	3,89	3,87	0,03	0,03
^{243}Cm	0,2	29,1	6,15	3,76	0,481	0,733	2,750	3,612	0,17	0,2	3,49	3,47	0,09	0,09
^{244}Cm	18	18,1	14,17	10,01	0,763	1,136	0,640	0,496	1,19	2,29	—	—	—	—
^{245}Cm	1	8500	6,66	4,09	0,454	0,683	2,531	3,308	0,18	0,21	3,64	3,61	0,18	0,18
^{246}Cm	0,07	4760	21,52	14,95	0,463	0,737	0,460	0,356	1,01	2,07	3,86	3,84	0,24	0,24
^{247}Cm	—	$1,56 \cdot 10^7$	8,77	6,96	0,303	0,436	1,961	1,911	0,15	0,23	—	—	—	—
^{248}Cm	—	$3,48 \cdot 10^5$	26,87	21,45	0,233	0,379	0,506	0,382	0,46	0,99	—	—	—	—

*Приведена массовая доля m основных актиноидов топлива выгоранием ~ 35 ГВт-сут/т и выдержкой 3 года, ν — количество вторичных нейтронов на один акт деления, $\alpha = \sigma_c/\sigma_f$ — отношение микроскопических сечений радиационного захвата σ_c и деления σ_f .

последующим превращением в ^{239}Pu . ^{244}Am переходит в ^{244}Cm , что служит основным источником образования ^{244}Cm . В активной зоне $\sim 56\%$ ^{244}Cm убывает за счет реакций деления и радиационного захвата, $\sim 44\%$ за счет α -распада в ^{240}Pu . По цепочке превращений $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{243}\text{Pu} \rightarrow ^{243}\text{Am}$ примерно 81% ядер ^{240}Pu делятся, $\sim 2,2\%$ переходит в ^{243}Am , $\sim 16,5\%$ по цепочке превращений $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Am}$ переходит в ^{241}Am , остальная часть ($\sim 0,3\%$) — в ^{236}U . В результате реакции радиационного захвата нейтрона ядром ^{244}Cm образуется ^{245}Cm , который с вероятностью $\sim 99\%$ переходит в продукты деления в цепочке дальнейших превращений $^{245}\text{Cm} \rightarrow ^{246}\text{Cm} \rightarrow ^{247}\text{Cm}$.

Таким образом, в любом реакторе-сжигателе основной канал трансмутации ^{237}Np и ^{241}Am состоит в их превращении в цепочке нейтронных реакций и ядерных распадов в изотопы плутония с последующим делением. В частности, в нейтронном спектре рассматриваемого БЖСР $\sim 85\%$ Np , Am и Cm , перешедших в ^{238}Pu и ^{240}Pu , делятся в цепочке превращений изотопов плутония. Поэтому эффективность трансмутации Np , Am , Cm можно оценивать как уменьшение их массы, считая образовавшийся из них плутоний ядерным топливом, не подлежащим дальнейшей трансмутации.

Постановка задачи. Целесообразно анализ трансмутационных возможностей БЖСР начи-

Таблица 2. Варианты топливной загрузки и объема активной зоны БЖСР

Вариант загрузки	Топливная загрузка	Содержание фторидов актиноидов на старте, мол. доля, %			Активная зона			Теплообменник		Вариант переработки*
		Pu	U	Np, Am, Cm	Объем, м ³	Диаметр, м	Высота, м	Диаметр, м	Высота, м	
1	Pu, Np, Am, Cm	6	0	6	4,83	1,88	1,74	3,32	3,07	1
2	U, Np, Am, Cm	0	5	25	4,83	1,88	1,74	3,32	3,07	1
3	U, Np, Am, Cm	0	5	25	4,83	1,88	1,74	3,32	3,07	2
4	U, Np, Am, Cm	0	5	25	9,58	2,36	2,19	3,5	3,24	2
5	U, Np, Am	0	5	25	9,58	2,36	2,19	3,5	3,24	3
6	U, Am	0	4	26	9,58	2,36	2,19	3,5	3,24	3
7	U, Np, Am, Cm _{равн}	0	4	26	9,58	2,36	2,19	3,5	3,24	4
8	U, Am, Cm _{равн}	0	3	27	9,58	2,36	2,19	3,5	3,24	4

*Рассматривались четыре варианта переработки топливной композиции: при переработке в топливную композицию возвращались (вариант 1) актиноиды и изотопы бария, цезия, стронция, иода в соответствии с периодом их выделения [13], (вариант 2) актиноиды, (вариант 3) актиноиды, кроме кюрия, (вариант 4) актиноиды, обеспечивается равновесная мольная доля фторида Cm_{равн} в стартовой загрузке и топливе подпитки.

нать с нейтронных расчетов в упрощенной постановке с учетом изменения изотопного состава топливной композиции и замыкания топливного цикла. Такой подход позволяет определить принципиальные характеристики жидкосолевого реактора-сжигателя Np, Am, Cm. В дальнейшем эти результаты предполагается использовать для детальных исследований реакторной установки.

В настоящей работе для расчетов выбрана простейшая цилиндрическая модель активной зоны реактора, окруженной теплообменником. Теплообменник представлен как гомогенная смесь конструкционных материалов (сплав хастеллой-N [14]) и охлаждающей соли LiF—NaF—KF. Рассматриваются восемь вариантов активной зоны с разными характеристиками и составом топливных композиций, указанными в табл. 2. Для вариантов 7, 8 поддерживалась равновесная мольная доля фторида Cm_{равн} в стартовой загрузке и топливе подпитки. Это соответствует мольной доле CmF₃ в топливной композиции БЖСР после 50 лет его эксплуатации для варианта загрузки 4. Для всех вариантов тепловая мощность реактора принята равной 1650 МВт. Срок эксплуатации реактора, равный 50 годам, разбит на 50 кампаний длительностью 300 эф. сут. Длительность внешней части топливного цикла составляет 65 сут. Минимальная температура в контуре циркуляции топливной композиции 650 °С.

Топливная композиция выгружается и перерабатывается в конце каждой кампании. Удаляются продукты деления и избыточный фтор. Свежее топливо формируется из переработанной топливной соли и топлива подпитки. Состав и масса соли топлива подпитки определяются путем выбора соотношения мольных долей делящегося материала (обогащенного урана или плутония) и изотопов Np, Am и Cm, обеспечивающего критичность реактора в течение последующей кампании. Принятая в расчетах упрощенная схема переработки будет в дальнейшем уточняться с учетом технологических и эксплуатационных требований.

В стартовой загрузке в качестве основного делящегося материала рассматривались плутоний PuF₃ и уран ²³⁵UF₄. Изотопный состав Pu, Np, Am и Cm выбран на основе данных [12] и примерно соответствует составу отработавшего топлива ВВЭР-1000 с урановой загрузкой обогащением 4,5% по ²³⁵U, выгоранием 35 ГВт·сут/т и выдержкой 50 лет.

Методика расчетов. Жизненный цикл рассмотренных вариантов БЖСР рассчитывался единообразно в соответствии со схемой, показанной на рис. 2. Нейтронно-физические характеристики и изменение изотопного состава топливной композиции рассчитаны с помощью программного комплекса ПРИЗМА+РИСК с использованием библиотеки оцененных ядерных данных ENDF-BVI [15—17].



Р и с. 2. Схема расчета жизненного цикла БЖСР

В начале расчета выполняется подбор стартового состава. В варианте 1 подбор основан на зависимости $k_{эф}$ от мольной доли всех актиноидов с сохранением соотношения между ними. В остальных вариантах варьируется мольная доля $^{235}\text{UF}_4$ в смеси актиноидов при фиксированной мольной доле всех актиноидов, равной 30% [6]. На этом этапе определяется состав топливной композиции, обеспечивающий необходимый запас реактивности на выгорание. После выбора стартового состава рассчитывается изменение его изотопного состава в течение кампании (см. рис. 2). После каждого шага по выгоранию длительностью 100 эф. сут удаляются благородные газы и аэрозоли благородных металлов (Xe, Kr, He, Au, Ag, Pt, Ru, Rh, Pd, Os, Ir), пересчитываются нейтронно-физические характеристики реактора. В реальных условиях эксплуатации реактора газообразные продукты деления предполагается удалять непрерывно. Предварительные расчеты показали, что влиянием накопления газообразных продуктов деления в течение 100 эф. сут на нейтронно-физические характеристики реактора и эффективность сжигания Np , Am , Cm можно пренебречь.

После расчета изменения изотопного состава топливной композиции в течение кампании моделируется перегрузка всей активной зоны. При этом оценивается изменение изотопного

состава выгруженного топлива во внешнем топливном цикле, который включает выдержку, переработку отработавшего топлива и изготовление свежего состава на основе переработанной топливной соли и топлива подпитки. Топливный состав на начало следующей кампании выбирается с учетом необходимого запаса реактивности на выгорание аналогично подбору стартового состава.

Эффективность трансмутации Np , Am , Cm в БЖСР. Эффективность трансмутации определялась как среднее годовое уменьшение массы актиноидов, вовлеченных в ядерный топливный цикл БЖСР. В табл. 3 приведены расчеты эффективности трансмутации Np , Am , Cm для рассмотренных вариантов топливных загрузок и объема активной зоны БЖСР. Для вариантов 1—3 средняя энергонапряженность активной зоны составляет ~ 342 кВт/л. Как отмечается в работе [13], такая высокая энергонапряженность может существенно ограничить срок службы конструкционных материалов. В вариантах 4—8 энергонапряженность снижена до 172 кВт/л за счет увеличения объема активной зоны в 2 раза. При увеличении объема необходимая для критичности стартовая мольная доля $^{235}\text{UF}_4$ в топливной композиции уменьшится с 5,4 (вариант 3) до 4,9% (вариант 4), эффективность трансмутации Np , Am , Cm увеличится примерно на 9%.

Для плутониевой загрузки при поддержании мольной доли фторидов Np , Am и Cm в стартовой топливной композиции и топливе подпитки $\sim 6\%$ (вариант 1) уменьшение массы Np , Am и Cm в среднем за 50 лет эксплуатации составит ~ 337 кг/год. Замена плутония на ^{235}U в стартовой загрузке существенно повышает эффективность трансмутации (до 810 кг/год, вариант 2). Это объясняется меньшей скоростью наработки Np , Am и Cm и их большей мольной долей в стартовой загрузке и топливе подпитки.

Накопление продуктов деления оказывает существенное влияние на эффективность трансмутации (варианты 2, 3). Для повышения эффективности трансмутации при переработке целесообразно извлекать из топливной соли все продукты деления. Для варианта 2 с извлечением части продуктов деления эффективность трансмутации составит 810 кг/год, для варианта 3 — 921 кг/год.

Таблица 3. Изменение массы Np, Am и Cm в БЖСР тепловой мощностью 1650 МВт с разной топливной загрузкой и объемом активной зоны, кг/год

Изотоп	Вариант топливной загрузки							
	1	2	3	4	5	6	7	8
Сумма	-337*	-810	-921	-1009	-849	-763	-1101	-1151
^{237}Np	-115	-253	-282	-297	-276	8	-303	72
^{241}Am	-220	-530	-609	-678	-561	-752	-724	-1129
^{243}Am	-14	-41	-47	-52	-43	-59	-55	-85
^{242}Cm	2	4	5	6	4	4	6	9
^{243}Cm	1	1	1	1	1	1	<0,1	<0,4
^{244}Cm	5	5	6	7	25	34	-29	-24
^{245}Cm	3	3	4	3	1	1	2	4
^{246}Cm	1	1	1	1	<0,1	<0,1	2	2
Cm	12	14	17	18	31	40	-19	-9

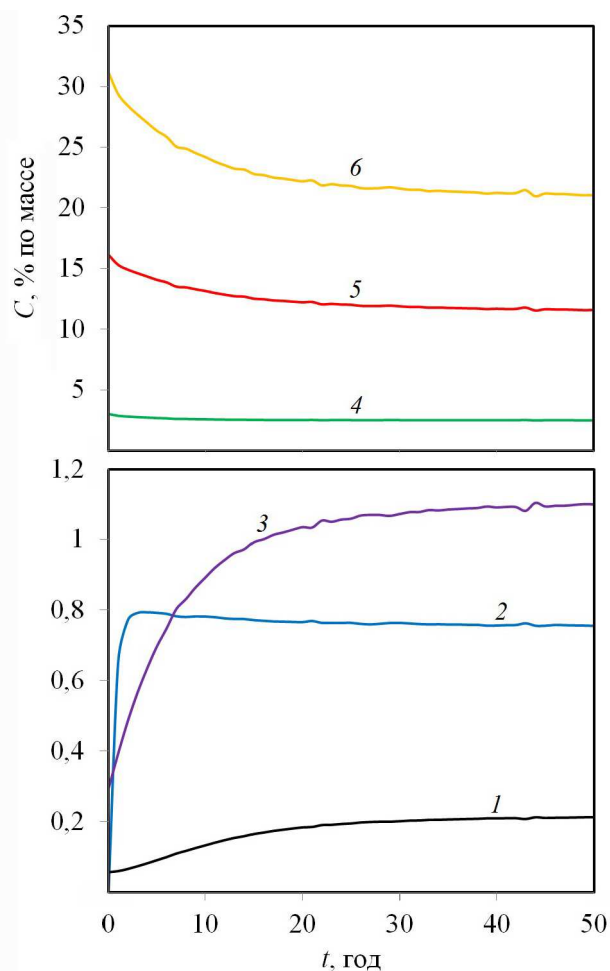
*Убыль (-) и наработка.

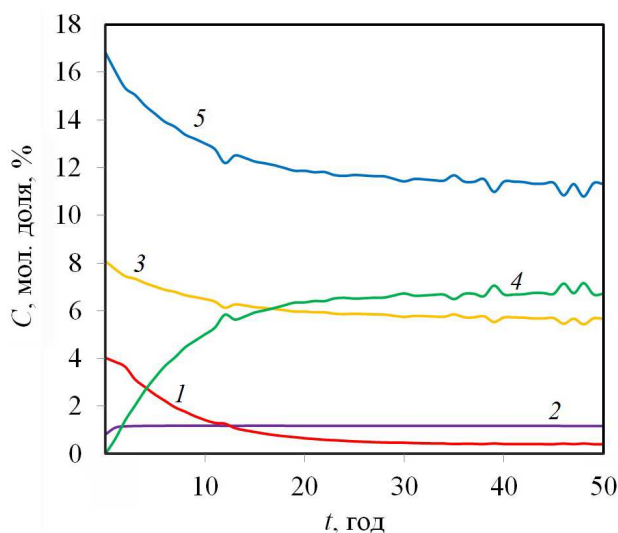
Эффективность трансмутации Np, Am и Cm существенно зависит от способа обращения с кюрием. Содержащийся в отработавшем топливе тепловых реакторов кюриум уже после 10 лет хранения более чем на 90% состоит из ^{244}Cm с периодом полураспада 18,1 года, который через 100 лет почти весь распадется в ^{240}Pu .

В БЖСР масса изотопов кюриума увеличивается в течение первых кампаний и для варианта 4 достигнет равновесной после ~20 лет работы реактора (масса ^{242}Cm достигает равновесной уже после первой кампании, рис. 3). Из полученных результатов следует, что отсутствие кюриума в стартовой топливной загрузке и топливе подпитки, а также извлечение из переработанного топлива приводят к увеличению его наработки. Так, для варианта 4 за 50 лет эксплуатации БЖСР наработка кюриума составит ~900 кг, для варианта 5 — 1500 кг. Эффективность трансмутации Np, Am и Cm при этом уменьшится с 1009 до 849 кг/год. Из табл. 3 следует, что в вариантах 1—6 вместо сжигания происходит наработка кюриума. В случае стартовой загрузки с равновесной концентрацией кюриума вместо наработки происходит сжигание со скоростью ~19 кг/год (вариант 7, рис. 4, 5). Для этого варианта получена эффективность трансмутации Np, Am и Cm ~1101 кг/год (183 кг Np, 472 кг Am и 11,6 кг Cm в год на 1 ГВт тепловой мощности).

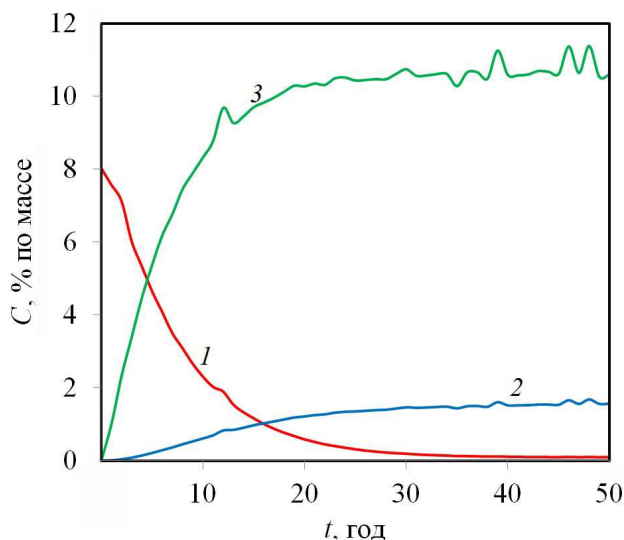
Вопрос о целесообразности совместной трансмутации нептуния и америция требует дополнительного обсуждения. В частности, в ра-

боте [18] отмечается, что трансмутация америция является более приоритетной задачей, нептуний может храниться на складе до его ис-

Рис. 3. Изменение содержания ^{245}Cm (1), ^{242}Cm (2), ^{244}Cm (3), ^{243}Am (4), ^{237}Np (5), ^{241}Am (6) в активной зоне БЖСР с загрузкой ^{235}U (вариант 4)



Р и с. 4. Изменение содержания фторидов урана (1), кюрия (2), нептуния (3), плутония (4), америция (5) в топливной композиции БЖСР с загрузкой ^{235}U (вариант 7)



Р и с. 5. Изменение содержания ^{235}U (1), ^{239}Pu (2), ^{238}Pu (3) в топливной композиции БЖСР (вариант 7)

пользования для наработки ^{238}Pu или направляться на захоронение. Поэтому дополнительно рассмотрен вариант 8, который отличается от варианта 7 его отсутствием в стартовой загрузке и топливе подпитки. Эффективность трансмутации для этого варианта составит 698 кг/год на 1 ГВт тепловой мощности (736 кг/год Am и 5 кг/год Cm при наработке 43 кг/год Np на 1 ГВт тепловой мощности).

Для сравнения с другими реакторами, используемыми для сжигания Np, Am и Cm [19], принят вариант трансмутации Np, Am, Cm в БЖСР со стартовой загрузкой ^{235}U и извлечением всех продуктов деления при переработке (вариант 4) со следующими характеристиками:

Несущая соль . . .	LiF—NaF—KF
Тепловая мощность, МВт . . .	1650
Энергия нейтронов, усредненная по плотности потока, кэВ:	
на старте . . .	687
через 50 лет . . .	610
Плотность потока нейтронов, с ⁻¹ ·см ⁻² :	
на старте, 10 ¹⁵ . . .	1,3
через 50 лет, 10 ¹⁵ . . .	1,5
Активная зона:	
диаметр, м . . .	2,4
высота, м . . .	2,2
объем, м ³ . . .	9,6
объемное энерговыделение, кВт/л . . .	172
Доля запаздывающих нейтронов, %:	
на старте . . .	0,38
через 50 лет . . .	0,21
Коэффициент реактивности:	
пустотный $dK/d\rho$, 10 ⁻⁵ кг ⁻¹ ·м ³ . . .	-4,76
температурный dK/dT , 10 ⁻⁵ °C ⁻¹ . . .	-1,1
Изотопный состав топливной композиции, кг:	
²³⁵ U . . . 3693	²⁴³ Cm . . . 2
²³⁷ Np . . . 6119	²⁴⁴ Cm . . . 112
²⁴¹ Am . . . 11 816	²⁴⁵ Cm . . . 22
²⁴² Am . . . 9	²⁴⁶ Cm . . . 2
²⁴³ Am . . . 1147	Np, Am и Cm . . . 19 227
Химический состав топливной композиции:	
фториды актиноидов:	фторид америция:
кг . . . 28 682	кг . . . 16 036
мол. доля, % . . . 30	мол. доля, % . . . 16,83
фторид урана:	фторид кюрия:
кг . . . 4887	кг . . . 169
мол. доля, % . . . 4,92	мол. доля, % . . . 0,18
фторид нептуния:	LiF—NaF—KF:
кг . . . 7590	кг . . . 9243
мол. доля, % . . . 8,08	мол. доля, % . . . 70

Из представленных результатов следует, что БЖСР-сжигатель имеет высокую эффективность трансмутации нептуния и америция: 14 866 кг Np и 36 507 кг Am за 50 лет или 180 Np и 443 Am кг/год на 1 ГВт тепловой мощности соответственно (табл. 4). Отметим, что уменьшение массы Np и Am существенно превышает массу продуктов деления, так как при поглощении нейтронов ядрами Np и Am только ~30% из них делятся, оставшаяся часть переходит в изотопы плутония, в основном, в ^{238}Pu . К концу срока эксплуатации реактор наработает 16 165 кг ^{238}Pu и 2630 кг ^{239}Pu (196 кг ^{238}Pu и 32 кг ^{239}Pu в год на 1 ГВт тепловой мощности). Равновесная концентрация PuF_3 в активной зоне равна ~7,3%, что соответствует ~4470 кг ^{238}Pu и ~760 кг ^{239}Pu . При этом массовая доля ^{235}U в топливной композиции не превысит 10%, загруженный ^{235}U расходуется в среднем со скоростью 24,4 кг/год. Фактически, кроме первоначальной загрузки,

Таблица 4. Изменение топливного состава активной зоны БЖСР*

Изотоп	Старт, кг	1 год, кг	3 года, кг	5 лет, кг	10 лет, кг	30 лет, кг	50 лет, кг	ПЗ, кг**	ПВ, кг**	ПВ—ПЗ, кг	Убыль (–) и наработка, кг/год
²³⁷ Np	6119	5784	5522	5314	4966	4485	4360	35 325	20 456	–14 869	–180
²⁴¹ Am	11 816	11 097	10 456	9952	9131	8142	7924	68 214	34 303	–33 911	–411
²⁴³ Am	1147	1087	1045	1016	976	949	942	6620	4032	–2588	–31
Am	12 971	12 186	11 503	10 969	10 109	9093	8868	74 843	38 336	–36 507	–443
²⁴² Cm	0	247	299	299	295	287	284	0	288	288	3
²⁴³ Cm	2	3	6	9	12	15	15	10	41	31	0,4
²⁴⁴ Cm	112	149	214	263	336	404	413	644	980	336	4,1
²⁴⁵ Cm	22	23	28	34	50	76	80	125	294	169	2,1
²⁴⁶ Cm	2	2	3	4	6	13	16	11	51	40	0,5
²⁴⁷ Cm	0	–***	0,1	0,2	0,4	1	2	0	5	5	0,1
²⁴⁸ Cm	0	–	–	–	–	0,1	0,2	0	0,5	0,5	0,01
Cm	138	424	550	609	699	796	810	790	1660	869	10
²³⁸ Pu	0	432	1500	2354	3597	4444	4476	0	16 165	16 165	196
²³⁹ Pu	0	4	41	108	313	712	765	0	2630	2630	32
²⁴⁰ Pu	0	4	17	32	77	217	261	0	1446	1446	18
²⁴¹ Pu	0	–	0,4	1	4	18	23	0	45	45	0,5
²⁴² Pu	0	92	250	382	604	858	895	0	3331	3331	40
Pu	0	532	1808	2877	4595	6249	6420	0	23 617	23 617	286
²³⁴ U	0	2	16	41	119	291	321	0	3245	3245	39
²³⁵ U	3693	3437	2688	2052	996	77	45	3693	1678	–2015	–24
²³⁶ U	0	53	134	185	220	73	21	0	373	373	4,5
²³⁸ U	0	–	–	–	–	–	–	0	0,2	0,2	—
U	3693	3492	2838	2278	1335	441	387	3693	5296	1603	19
Np, Am, Cm	19 227	18 393	17 574	16 892	15 775	14 374	14 038	110 958	60 454	–50 504	–612
Продукты деления	0	361	357	356	356	372	394	0	25 267	25 267	306
Актиноиды и продукты деления	22 921	22 779	22 578	22 403	22 061	21 436	21 239	114 651	114 634	–17	–0,2

*Масса актиноидов для 1, 3, 5, 10, 30 и 50 лет приведена на конец кампании.
 **ПЗ, ПВ — полная загрузка и выгрузка соответственно.
 ***Масса менее 0,01.

БЖСР не потребует дополнительной подпитки ²³⁵U, его работу примерно на 70% обеспечивает деление ядер ²³⁸Pu аналогично ²³⁹Pu в быстром твердотопливном реакторе.

²³⁸Pu, нарабатываемый в большом количестве в БЖСР, не может быть использован в современных твердотопливных реакторах. Причиной этого является трудность изготовления топливных таблеток с высоким содержанием ²³⁸Pu. При развитии ядерной энергетики по сценарию с энергетическими БЖСР этот изотоп можно рассматривать как ядерное топливо. При использо-

вании БЖСР в качестве только реактора-сжигателя Np, Am, Cm наработку ²³⁸Pu можно уменьшить, снизив концентрацию актиноидов в активной зоне. Это задача дальнейших исследований.

Отдельного внимания заслуживает ²³⁴U. Он нарабатывается в значительном количестве, в основном, при α-распаде ²³⁸Pu (за 50 лет эксплуатации БЖСР масса ²³⁴U составит 3245 кг). Тем не менее в БЖСР он выгорает так же эффективно ($\tau_{1/2} = 19,9$ года), как и ²⁴⁰Pu ($\tau_{1/2} = 18,3$ года).

В расчете на 1 ГВт тепловой мощности за 300 эф. сут БЖСР производит 306 кг продуктов деления, что почти совпадает с изменением массы всех актиноидов (см. табл. 4). В частности, по нуклидному составу для выбранного варианта баланс в расчете на 1 ГВт тепловой мощности в среднем за год эксплуатации выполняется следующим образом: трансмутировано 180 кг Np, 443 кг Am, 24 кг ^{235}U (всего 647 кг), произведено 286 кг Pu, 11 кг Cm, 39 кг ^{234}U , 5 кг ^{236}U , 306 кг продуктов деления (всего 647 кг).

Заключение. Эффективность трансмутации определяется соотношением выгорания и наработки Np, Am и Cm. Для повышения эффективности трансмутации целесообразно исключить из активной зоны плутоний и ^{238}U , использовать топливо с повышенной концентрацией фторидов Np, Am и Cm, минимизировать время хранения отработавшего топлива, выделенные Np, Am и Cm сжигать в ЖСР, дополнительную загрузку плутония и урана ограничить.

Для всех вариантов БЖСР топливная композиция — эвтектика LiF—NaF—KF с растворенными в ней актиноидами. Расчеты проводились в предположении, что актиноиды в требуемом количестве растворяются в несущей соли. Анализ показал, что наибольшая эффективность трансмутации наблюдается для вариантов с загрузкой высокообогащенным ураном. В частности, для варианта 4 в стартовой загрузке БЖСР мольная доля $^{235}\text{UF}_4$ должна быть не менее 4%. При этом дальнейшая подпитка ^{235}U не требуется — уже после первой кампании реактор подпитывается только Np, Am, Cm.

В варианте БЖСР с плутониевой загрузкой на протяжении всего срока эксплуатации требуется подпитка плутонием для обеспечения его работы. При этом примерно в 2 раза снижается эффективность трансмутации по сравнению с урановой загрузкой. Представляет интерес такой режим работы БЖСР с плутониевой загрузкой, при котором в топливе подпитки будут содержаться только фториды Np, Am, Cm, накопление актиноидов вне реактора сведено к минимуму. Это потребует уменьшения мольной доли актиноидов в топливной композиции.

В реакторе-сжигателе Np, Am и Cm всегда будет нарабатываться ^{238}Pu . Количество нарабатываемого плутония зависит от концентрации актиноидов в топливной композиции. В рассмотренном БЖСР с урановой стартовой загрузкой в большом количестве нарабатывается плу-

тоний, в основном, ^{238}Pu (196 кг/год на 1 ГВт тепловой мощности). При развитии ядерной энергетики с использованием энергетических БЖСР этот изотоп будет служить ядерным топливом.

Представленные в работе результаты указывают на возможность снижения концентрации актиноидов в активной зоне и обусловленное этим уменьшение наработки ^{238}Pu с сохранением высокой эффективности сжигания Np, Am и Cm. Эти результаты дают основания для углубленной проработки реактора-сжигателя тепловой мощностью ~700 МВт, который способен утилизировать ~200 кг/год Np, Am и Cm с составом, соответствующим отработавшему топливу ВВЭР-1000, что представляет практический интерес.

Авторы не ставили перед собой задачу сравнить между собой многочисленные подходы к трансмутации Np, Am и Cm — это предмет специальной работы. Для реализации обсуждаемой в настоящей статье идеи предстоит выполнить обширный комплекс научно-исследовательских работ и решить множество технологических и инженерных проблем. Но изучить возможности предлагаемой схемы представляется целесообразным.

Авторы признательны А.М. Дегтяреву за помощь и сотрудничество, Д.В. Хмельницкому за замечания.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Status** and Trends in Spent Fuel and Radioactive Waste Management. IAEA Nuclear Energy Ser. № NW-T-1.14. Vienna: IAEA, 2018.
2. **Status** of Minor Actinide Fuel Development. IAEA Nuclear Energy Ser. № NF-T-4.6. Vienna: IAEA, 2009.
3. **Белая** книга ядерной энергетики. Под ред. Е.О. Адамова. М., НИКИЭТ, 2001.
4. **Шереметьева У.Ф., Дырда Н.Д., Симоненко В.А. и др.** Реактор типа ВВЭР в уран-плутониевом топливном цикле. Тезисы докл. «Инновационные ядерные технологии. Технологии ЗЯТЦ и водородная безопасность». Снежинск, 2016, с. 32—33.
5. **Advanced** Reactor Technology Options for Utilization and Transmutation of Actinides in Spent Nuclear Fuel. TECDOC-1626. Vienna: IAEA, 2009.
6. **Лизин А.А., Томилин С.В., Гневашов О.Е. и др.** Растворимость PuF_3 , AmF_3 , CeF_3 , NdF_3 в расплаве LiF—NaF—KF. — Атомная энергия, 2013, т. 115, вып. 1, с. 11—16.
7. **Лизин А.А., Томилин С.В., Гневашов О.Е. и др.** Растворимость UF_4 и ThF_4 в расплаве LiF—NaF—KF. — Там же, с. 20—22.

8. Воложин М.В., Закиров Р.Я., Мушников П.Н. и др. Растворимость CeF_3 и PuF_3 в расплаве LiF—NaF—KF . — Там же, с. 17—19.
9. Пономарев Л.И., Серегин М.Б., Паршин А.П. и др. Выбор соли для жидкосолевого реактора. — Там же, с. 6—11.
10. Дегтярев А.М., Пономарев Л.И. Жидкосолевого реактор с быстрым спектром нейтронов на основе LiF—NaF—KF . — Там же, 2012, т. 112, вып. 6, с. 367—368.
11. Degtyarev A., Myasnikov A., Ponomarev L. Molten salt fast reactor with U—Pu fuel cycle. — Progress in Nucl. Energy, 2015, v. 82, p. 33—36.
12. Дегтярев А.М., Мясников А.А., Коляскин О.Е. и др. Жидкосолевого подкритический реактор-сжигатель трансплутониевых изотопов. — Атомная энергия, 2013, т. 114, вып. 4, с. 225—232.
13. Игнатьев В.В., Фейнберг О.С., Загнитько А.В. и др. Жидкосолевые реакторы: новые возможности, проблемы и решения. — Там же, 2012, т. 112, вып. 3, с. 135—143.
14. Блинкин В.Л., Новиков В.М. Жидкосолевые ядерные реакторы. М.: Атомиздат, 1978. 112 с.
15. 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.
16. Модестов Д.Г. Программа решения задач ядерной кинетики РИСК-2014: Препринт РФЯЦ — ВНИИТФ № 243, 2014.
17. Trkov A., Herman M., Brown D.A. ENDF-6 Formats Manual. Rep. BNL-90365-2009 Rev. 2, 2012.
18. 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.
19. Пономарев Л.И., Белоногов М.Н., Волков И.А. и др. Трансмутация Np, Am, Cm в разных типах реакторов. — См. настоящий вып., с. 132—137.

Поступила в Редакцию 11.10.18

УДК 621.039.5

ТРАНСМУТАЦИЯ Np, Am, Cm В РАЗНЫХ ТИПАХ РЕАКТОРОВ

Пономарев Л.И. (АО «ВНИИНМ», г. Москва), Белоногов М.Н., Волков И.А.,
Симоненко В.А., Шереметьева У.Ф. (РФЯЦ — ВНИИТФ, г. Снежинск, Челябинская обл.)
e-mail: m.n.belonogov@vniitf.ru, i.a.volkov@vniitf.ru

Будущее ядерной энергетики во многом зависит от решения проблемы утилизации отработавшего топлива. Долгоживущие изотопы Pu, Np, Am и Cm при долгосрочном хранении вносят основной вклад в его активность и энерговыделение. Одним из путей решения этой проблемы является использование плутония в качестве топлива в энергетических реакторах, извлечение Np, Am и Cm из отработавшего топлива и их трансмутация. Перспективными для этих целей являются жидкосолевые реакторы-сжигатели. Их преимущество заключается в отсутствии необходимости изготовления топливных таблеток, содержащих высокоактивные актиноиды. В последние годы в мире предложено несколько проектов таких реакторов [1, 2]. В работе [3] выполнены расчеты эффективности трансмутации Np, Am, Cm в БЖСР-сжигателе на основе эвтектики молярного состава, %: 46,5LiF—11,5NaF—42KF при упрощенном описании его конструктивной схемы, замыкания топливного цикла и в предположении, что растворимость актиноидов в несущей соли составляет 30%. В настоящей работе результаты рабо-

ты [3] сравниваются с расчетами эффективности трансмутации Np, Am, Cm в реакторах, разрабатываемых в нашей стране и за рубежом. При этом эффективность трансмутации определялась как средняя годовая убыль массы Np, Am и Cm, вовлеченных в ядерный топливный цикл.

Постановка задачи и методика расчета.

В работе, кроме БЖСР, рассмотрены три схемы трансмутации: в быстром реакторе типа БРЕСТ-1200, в ЖСР с промежуточным спектром нейтронов типа MOSART на основе соли молярного состава, %: 15LiF—58NaF—27BeF₂ и ЖСР-С на основе состава 73LiF—27BeF₂ [4—10]. Расчеты выполнены в соответствии с общей схемой работы [3] и с учетом особенностей топливного цикла каждого реактора. Состав стартовых загрузок реакторов приведен в табл. 1, 2. Для всех рассмотренных вариантов реакторов срок эксплуатации принят равным 50 годам, облучение между перегрузками активной зоны 300 эф. сут.

В настоящей работе рассмотрен вариант БЖСР на основе соли LiF—NaF—KF [3], в котором в стартовой загрузке и топливе подпитки