

УДК 621.039.5

РАСЧЕТНОЕ ОБОСНОВАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТОВ С РАСПЛАВЛЕННО-СОЛЕВЫМИ ТОРИЙ-УРАНОВЫМИ ТОПЛИВНЫМИ КОМПОЗИЦИЯМИ В ПЕТЛЕ РЕАКТОРА МБИР*Бландинский В.Ю., Кузенкова Д.С. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)*

e-mail: kuzenkova_ds@nrcki.ru

Эффективные термоядерные источники нейтронов могут значительно облегчить решение ресурсной проблемы рынка ядерного топлива на длительный период времени. Потребляя отвалный уран или торий, термоядерный источник нейтронов с бланкетом на основе расплавов фторидных солей может производить на единицу тепловой мощности примерно в 10 раз больше ^{233}U или плутония, чем быстрый реактор-размножитель. Это означает, что прогнозируемый дефицит добычи природного урана может быть скомпенсирован введением в ядерную энергетику термоядерного источника нейтронов с воспроизводящим жидкосолевым бланкетом. При этом преимущества ядерной системы деления эффективно дополняются и усиливаются преимуществами ядерной системы синтеза без необходимости выхода на предельные характеристики в каждой из них [1].

Использование термоядерных источников нейтронов целесообразно как для наработки ядерного и термоядерного топлива, так и для трансмутации долгоживущих радионуклидов. Полное замыкание топливного цикла приведет к снижению необходимости добычи сырья, что позволит ядерной энергетике перейти в режим самообеспечения топливом.

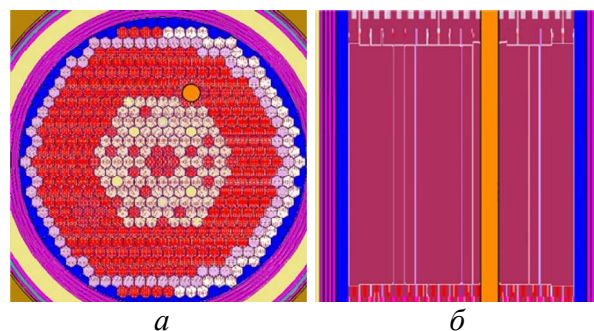
Сооружение реактора МБИР должно обеспечить не только преемственность экспериментальных и исследовательских программ, выполняемых на реакторе БОР-60, но и инновационное развитие экспериментальной базы отрасли [2]. В первую очередь это связано с необходимостью достижения более высокой плотности потока нейтронов в экспериментальных каналах и проведения исследований топлива и материалов для обоснования перспективных реакторных технологий с различными типами теплоносителя — от газа до расплавов топливных солей, что требует создания автономных петлевых установок в реакторе МБИР. Более того, предполагается, что МБИР станет современным инструментом международного коллективного пользования в экспериментальных исследованиях для

обоснования инновационных реакторных технологий на быстрых нейтронах.

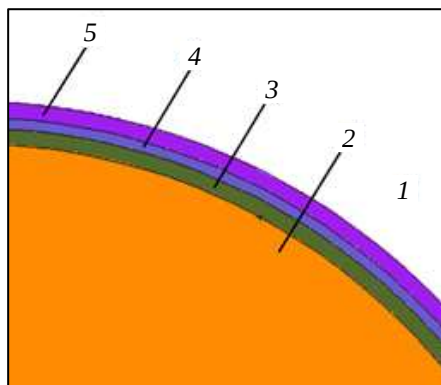
В настоящей статье рассматриваются некоторые вопросы моделирования петлевого канала с последующим расчетом нейтронно-физических характеристик циркулирующей в нем топливной соли, а также определения равновесного изотопного состава и параметров, необходимых для поддержания его мощности на заданном уровне.

Модель петлевого канала (рис. 1). Петлевой канал внешним диаметром 124,1 мм расположен на периферии активной зоны. В связи с особенностями совместимости материалов с жидкими солями он имеет сложную структуру: труба из стали ЭП-450Ш толщиной 1,5 мм, в которую с учетом газового зазора 1 мм помещается труба из хастеллоя Н толщиной 1,5 мм, контактирующая с циркулирующей топливной солью [3—5] (рис. 2). Газ в зазоре аргон. Он уже применяется в быстром реакторе для компенсации температурного расширения натрия, изоляции верхней части ядерного реактора от теплоносителя, выходящего из активной зоны, и предотвращения контакта натрия с воздухом при разгерметизации.

Выбор характеристик топливной соли. Концепция жидкосолевого реактора (ЖСР) разработана в 1960-х гг. в Ок-Риджской национальной лаборатории (США) и предусматривает использование различных типов жидкого топлива. Делящийся материал растворяется в расплавленной солевой смеси, циркулирующей в



Р и с. 1. Сечение модели активной зоны в горизонтальной (а) и вертикальной плоскости (б)



Р и с. 2. Сечение канала в горизонтальной плоскости: 1 — натриевый теплоноситель; 2 — топливная соль; 3 — хастеллой Н; 4 — аргон; 5 — сталь ЭП-450Ш

первом контуре. Смесь выполняет функцию как топлива, так и теплоносителя. Конкретная эталонная конфигурация ЖСР не была идентифицирована, и этот реактор может быть сконструирован как для работы с тепловым, так и надтепловым спектров нейтронов. Одной из разработанных в настоящее время концепций ЖСР является реактор полостного типа без замедлителя с расплавленной солью MSFR, который объединяет концепцию быстрых реакторов с концепцией использования расплавленных солей фторидов в качестве жидкого топлива [6]. Соль представляет собой бинарную систему LiF—ThF₄ с добавлением ²³⁵U или ²³⁹Pu в форме фторидов, используемых для первоначальной загрузки.

Для оценки оптимальной композиции расплавленной соли важно знать фазовое равновесное состояние топлива при его рабочей температуре. На основании нескольких исследований термодинамических свойств системы LiF—ThF₄ [6—8] получена фазовая диаграмма бинарных фторидных соединений [7], выборка данных из которой приведена в табл. 1. На фазовой диаграмме температура плавления соли на плато минимальна. В дальнейшем примем молярный состав соединения, %: 73LiF—27ThF₄. Этому состоянию жидкосолевого системы соответству-

Т а б л и ц а 1. Данные из фазовой диаграммы системы LiF—ThF₄

Молярная концентрация ThF ₄ , %	T, К	T, °C
21,51	834,5	561,5
27,74	832,4	559,4
31,37	825	552

Т а б л и ц а 2. Параметры для расчета плотности системы LiF—ThF₄

Молярная концентрация ThF ₄ , %	a	b·10 ³	T ₀ , °C
22	4,38	1,25	655
41,8	5,15	1,25	750
27	4,57	1,25	679

ет температура плавления 825 К. На основании экспериментальных данных [7] определим расчетным путем плотность соли в ее расплавленном состоянии (табл. 2). В результате расчетов плотность соединения молярного состава, %: 73LiF—27ThF₄ составила 4,73 г/см³.

Расчетные средства. Расчеты изменения изотопного состава и равновесного состояния выполнены в программной системе ISTAR, предназначенной для исследования сложных структур систем ядерной энергетики, включая различные процессы трансформации нуклидов в различных элементах системы ядерной энергетики: ядерные реакторы, хранилища отработавшего топлива, предприятия по переработке и изготовлению топлива и др. Модель ядерной энергетической установки задается как определенная структура, состоящая из набора процессов, физических зон, хранилищ, предприятий ЯТЦ и потоков нуклидов между ними. Расчеты могут проводиться как для стационарных режимов, так и для нестационарных режимов выгорания и выдержки [9, 10]. В каждом процессе (физической зоне) применяется модель точечной одnogрупповой изотопной кинетики — предполагается, что все нуклиды имеют средние по зоне и интегральные по энергии параметры взаимодействия с нейтронами и все они находятся в усредненном по зоне и интегральном по энергии потоке нейтронов. При этом изотопную композицию удобно разделить на две группы: тяжелые нуклиды (компоненты ядерного топлива) и продукты деления (результат деления тяжелых ядер). В задачах выгорания к тяжелым нуклидам относят нуклиды от радона до фермия. Концентрация продуктов деления определяется их выходом при делении и изотопами, образующимися в ядерных реакциях с налетающими нейтронами и при естественном распаде.

Оценка энерговыделения петли. Одним из преимуществ ЖСР является высокая растворимость соединений урана и тория в расплавах

солей фторидов легких металлов. Расплавы солей способны содержать достаточное количество тория, чтобы обеспечить расширенное воспроизводство топлива [11]. Энерговыведение в петле определялось по программе MCNP на основе метода Монте-Карло [12]. Рассчитывалось распределение энерговыведения по зонам реактора МБИР (активная зона, экраны, внутриреакторное хранилище, жидкосолевая петля), содержащим топливные материалы, и проводилась нормировка на суммарную тепловую мощность МБИР 150 МВт с учетом ее распределения между активной зоной, экранами, внутриреакторным хранилищем и петлевым каналом с жидкосолевой топливной композицией, имеющим собственную систему теплообменного оборудования (табл. 3). Расчетное энерговыведение в петле соответствует 0,097 МВт и получено для композиции расплавленной соли, содержащей из тяжелых нуклидов только ^{232}Th . При накоплении ^{233}U энерговыведение в петлевом канале значительно изменяется.

Т а б л и ц а 3. Расчетное энерговыведение

Зона	Доля энерговыведения, %	Энерговыведение, МВт
Активная зона	88,17	132,26
Экран:		
верхний	3,43	5,14
нижний	5,29	7,93
Внутриреакторное хранилище	2,61	3,91
Экран внутриреакторного хранилища:		
верхний	0,25	0,37
нижний	0,26	0,39
Экспериментальный канал	0,06	0,1

Моделирование равновесного изотопного состава. При работе любого ядерного реактора физико-химический состав топлива непрерывно изменяется — накапливаются продукты деления и трансурановые элементы. В реакторах с циркулирующим топливом возможно непрерывное регулирование состава топлива для поддержания на постоянном уровне как нейтронно-физических характеристик реактора, так и физико-химических свойств топлива. При работе реактора в уран-ториевом топливном цикле из активной зоны необходимо выводить ^{233}Pa —

ядро-предшественник ^{233}U . Это необходимо для расширенного воспроизводства топлива. Ядра ^{233}Pa имеют сравнительно большое сечение захвата нейтронов. Захват ими нейтронов приводит к потере как нейтрона, так и ядра ^{233}Pa , т.е. к уменьшению коэффициента воспроизводства [13, 14]. Наиболее эффективным является метод выведения ^{233}Pa восстановительной экстракцией, что возможно вследствие образования в расплаве фторидов менее стойких соединений, чем основной компонент соли LiF . Поэтому для извлечения этих элементов из соли можно использовать металлический литий, растворенный в носителе, который должен быть инертен по отношению к топливной соли, находиться в равновесии с солевой фазой и допускать эффективный контроль скорости экстрагирования [13].

Однако для поддержания параметров канала необходима постоянная подпитка топливной соли сырьевым материалом — торием. Скорость ввода тория и отвода протактиния необходимо рассчитывать.

Как следует из системы уравнений выгорания, равновесная концентрация нуклидов в системе определяется подпиткой, средними по спектру сечениями взаимодействий нуклидов с нейтронами и средней плотностью потока нейтронов. Поскольку жидкосолевая петля содержит топливо и находится во внешнем поле нейтронов, создаваемом активной зоной, плотность потока нейтронов в ней определяется и интенсивностью делений тяжелых ядер в петле, т.е. зависит от концентрации нуклидов. Таким образом, равновесное состояние в жидкосолевой петле определяется согласованными подпиткой, нейтронными сечениями и мощностью системы или плотностью потока нейтронов. Поэтому для расчета равновесной концентрации нуклидов в системе необходимо воспользоваться методом последовательных приближений.

Рассмотрим стартовый состав соли, содержащий из тяжелых ядер только тетрафторид тория ThF_4 . С помощью MCNP оценена тепловая мощность петли 0,097 МВт. Далее из расчета выгорания по программе ISTAR определена средняя по времени плотность потока нейтронов в петлевом канале, которая составила $1,16 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$, и получен набор сечений нейтронных реакций (для тяжелых ядер и продуктов деления). Для определения полученной тепловой мощности была рассчитана подпитка

торием из соображения, что для производства 3,3 ГВт тепловой энергии в течение одного года потребуется перевести в продукты деления 1 т тяжелых ядер. Подпитка жидкосолевой петли составила 0,04 кг/год. При заданных средней плотности потока нейтронов, сечениях и подпитке можно рассчитать равновесную концентрацию нуклидов в петле.

Однако полученная равновесная концентрация требует уточнения, поскольку средняя плотность потока нейтронов и сечения были получены из расчета выгорания с постоянной мощностью петли, соответствующей начальному состоянию с содержанием в топливной соли только сырьевого изотопа ^{232}Th . В реальности активная зона является источником нейтронов, энерговыделение в жидкосолевой петле со временем должно возрасти вследствие накопления ^{233}U . Поэтому равновесное количество переведено в массовую долю и при известной плотности топливной соли определена равновесная концентрация, которая в последующем использована для расчета энерговыделения в жидкосолевой петле.

В результате расчета энерговыделения с новой равновесной концентрацией рассчитана тепловая мощность в петле — 12,2 МВт. Ее можно принять за максимальную, выделяющуюся в петле. Тяжелые ядра при этом не выводятся. Далее по программе ISTAR рассчитано выгорание с этой мощностью и со стартовым составом топливной соли, соответствующим данному равновесному состоянию. В результате получены сечения и средняя плотность потока нейтронов $4,29 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$. Такая плотность потока нейтронов объясняется высокой концентрацией делящихся ядер в петлевом канале. Эксплуатация петлевого канала в таком режиме не предусматривается. Этот вариант рассмотрен для оценки максимальной мощности, которая, в принципе, может быть достигнута.

Далее рассчитано равновесное состояние при мощности канала 12,2 МВт, плотности потока нейтронов $4,29 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ и с соответствующим набором сечений. Протактиний на данном этапе не выводился. Получена новая равновесная концентрация тяжелых ядер. Подпитка торием (4,82 кг/год) отрегулирована таким образом, чтобы обеспечить требуемое энерговыделение в канале.

Для уменьшения энерговыделения в канале необходимо снизить содержание топливных ядер ^{233}U . Этого можно добиться за счет выведения протактиния. Скорость его вывода подбиралась таким образом, чтобы тепловая мощность петли снизилась до 1 МВт. Для поддержания такой тепловой мощности требуется обеспечить переработку топливной соли в объеме 27,1 кг/сут. За счет вывода из топливной соли протактиния равновесная концентрация ^{233}U снизилась и соответственно уменьшилась тепловая мощность петли. Расчетами получено, что в данных условиях в контуре устанавливается такое равновесное состояние, для которого при подпитке торием 4,4 кг/год и средней плотности потока нейтронов $2,81 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ тепловая мощность канала составила 1 МВт.

Приведенная методика позволяет рассчитать равновесное количество тяжелых ядер. Далее при их известном составе и заданной плотности потока нейтронов можно рассчитать скорость образования продуктов деления. Затем при известных скорости образования продуктов деления (аналог подпитки по тяжелым ядрам), средней плотности потока нейтронов и сечениях можно рассчитать равновесное количество продуктов деления в петлевом канале.

Основные параметры петлевого канала для рассмотренных вариантов организации топливного цикла (без вывода и с выводом протактиния) приведены в табл. 4, 5.

Закключение. В сценарии без вывода тяжелых ядер в петле накапливается несколько килограммов ^{233}U , что приводит к возрастанию энерговыделения в канале до 12,2 МВт. Поскольку в данном случае выводить из контура необходимо только продукты деления, объем переработки составил 139 г топливной соли в сутки. Расчетами установлено, что в условиях вывода протактиния в контуре устанавливается такое равновесное состояние, для которого при средней плотности потока нейтронов $2,81 \cdot 10^{15} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$ и подпитке торием 4,4 кг/год тепловая мощность канала составит 1 МВт. Однако необходимость вывода тяжелых нуклидов приводит к увеличению объема переработки топливной соли до 27,1 кг/сут. Если боксы, предназначенные для размещения петлевого оборудования, не позволят организовать данный объем переработки, можно рассмотреть размещение жидкосолевой петли в третьем петлевом канале в экране реактора, что позволит снизить требования к оборудованию радиохимического комплекса.

Т а б л и ц а 4. Основные параметры жидкосолевой петли при тепловой мощности 12,2 МВт

Нуклид	Подпитка, кг/сут	Объем переработки соли, кг/сут	Равновесное количество, кг	Массовая доля	Равновесная концентрация, $\text{б}^{-1}\cdot\text{см}^{-1}$
^{232}Th	$1,32\cdot 10^{-2}$		65,8	$8,11\cdot 10^{-1}$	$6,6\cdot 10^{-3}$
^{233}Pa			0,49	$5,99\cdot 10^{-3}$	$4,85\cdot 10^{-5}$
^{233}U			7,09	$8,74\cdot 10^{-2}$	$7,08\cdot 10^{-4}$
Тяжелые ядра			81,1	0,9	$7,35\cdot 10^{-3}$
Продукты деления			8,55	0,1	$1,55\cdot 10^{-3}$
Сумма		0,14	89,7	1	$8,9\cdot 10^{-3}$

Т а б л и ц а 5. Основные параметры жидкосолевой петли с выводом протактиния при тепловой мощности 1 МВт

Нуклид	Подпитка, кг/сут	Объем переработки соли, кг/сут	Равновесное количество, кг	Массовая доля	Равновесная концентрация, $\text{б}^{-1}\cdot\text{см}^{-1}$
^{232}Th	$1,21\cdot 10^{-2}$		88,3	$9,83\cdot 10^{-1}$	$8\cdot 10^{-3}$
^{233}Pa			$3,65\cdot 10^{-2}$	$4,07\cdot 10^{-4}$	$3,3\cdot 10^{-6}$
^{233}U			0,73	$8,15\cdot 10^{-3}$	$6,6\cdot 10^{-5}$
Тяжелые ядра			89,8	0,99	$8,14\cdot 10^{-3}$
Продукты деления			$3,6\cdot 10^{-3}$	$4,01\cdot 10^{-5}$	$6,54\cdot 10^{-7}$
Сумма		27,1	89,8	1	$8,14\cdot 10^{-3}$

Следует отметить, что оценки приведены для равновесного изотопного состава в петлевом канале. Достижение данного равновесного изотопного состава и необходимое для этого время требуют отдельного рассмотрения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Велихов Е.П., Азизов Э.А., Алексеев П.Н. и др. Концепция «зеленой» атомной энергетики. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Термоядерный синтез, 2013, т. 36, вып. 1, с. 5—16.
2. Драгунов Ю.Г., Третьяков И.Т., Лопаткин А.В. и др. Многоцелевой быстрый исследовательский реактор (МБИР) — инновационный инструмент для развития ядерных энерготехнологий. — Атомная энергия, 2012, т. 113, вып. 1, с. 25—28. // Dragunov Yu.G., Tretiakov I.T., Lopatkin A.V. et al. MBIR Multipurpose Fast Reactor — Innovative Tool for the Development of Nuclear Power Technologies. — Atomic Energy, 2012, v. 113, № 1, p. 24—28.
3. Subbotin S.A., Efremov V.V., Blandinskiy V.Yu. Forecasting system requirements to the materials of the shell of fuel elements of innovative fast reactors. — KnE Mater. Sci., 2018, p. 280—286.
4. Azhazha V.M. Alloys for molten-salt reactors. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение, 2005, вып. 4, с. 40—47.
5. Rykhlevskii A., Bae J., Huff K. Modeling and simulation of online reprocessing in the thorium-fueled molten salt breeder reactor. — Ann. Nucl. Energy, 2019, v. 128, p. 366—379.
6. Capelli E. Thermodynamic investigation of the LiF—ThF_4 system. — Chem. Thermodyn., 2013, v. 58, p. 110—116.
7. Porter B., Meaker R. Density and Molar Volumes of Binary Fluoride Mixtures. US Dept. of the Interior, Bureau of Mines, 1966.
8. Weaver C. Phase equilibria in the systems $\text{UF}_4\text{—ThF}_4$ and $\text{LiF—UF}_4\text{—ThF}_4$. — J. Am. Ceramic Soc., 1960, v. 43, № 4, p. 213—218.
9. Алексеевский Л.Д. Поиск возможной структуры стационарной системы будущей ядерной энергетики с замкнутым ядерным топливным циклом на основе исследования нуклидных балансов. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2008, № 2, с. 21—26.
10. Blandinskiy V.Yu., Dudnikov A.A. Calculations of spent fuel isotopic composition for fuel rod from VVER-440 fuel assembly benchmark using several evaluated nuclear data libraries. — Kerntechnik, 2018, v. 83, № 4, p. 325—330.
11. Новиков В.М., Слесарев И.С., Алексеев П.Н. и др. Ядерные реакторы повышенной безопасности (анализ концептуальных разработок). М.: Энергоатомиздат, 1993. 348 с.
12. MCNP — a General Monte Carlo N-Particle Transport Code. Version 5/X-5 Monte Carlo Team. LA-UR-03-1987.
13. Блинкин В.Л., Новиков В.М. Жидкосолевыми ядерными реакторы. М.: Атомиздат, 1978. 112 с.
14. Игнатъев В.В., Фейнберг О.С., Загнитко А.В. и др. Жидкосолевыми реакторы: новые возможности, проблемы и решения. — Атомная энергия, 2012, т. 112, вып. 3, с. 135—143. // Ignatiev V.V., Feynberg O.S., Zagnitko A.V. et al. Molten-Salt Reactors: New Possibilities, Problems and Solutions. — Atomic Energy, 2012, v. 112, № 3, p. 157—165.

Поступила в Редакцию 27.02.20