

УДК 621.039.5

РЕАКТОР С ЦИРКУЛИРУЮЩИМ ТОПЛИВОМ НА ОСНОВЕ РАСПЛАВОВ ФТОРИДОВ МЕТАЛЛОВ ДЛЯ СЖИГАНИЯ Np, Am, Cm

Игнатъев В.В., Абалин С.С., Гуров М.Ю., Закиров Р.Я., Игнатъев С.В., Конаков С.А.,
Мерзляков А.В., Суренков А.И., Фейнберг О.С. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

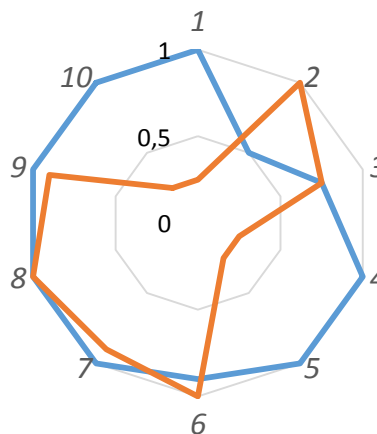
e-mail: ignatev_vv@nrcki.ru

Внедрение замкнутого ядерного топливного цикла с многократным рециклированием урана и плутония и утилизацией Np, Am, Cm дает возможность значительно сократить объем высокоактивных отходов и способствует решению отложенных проблем ядерной энергетики в части накопления отработавшего ядерного топлива. Использование регенерированного плутония и урана, остающихся после выделения компонентов ядерного топлива, их рециклирование в тепловых и быстрых реакторах, а также создание специализированной реакторной установки для сжигания трансурановых элементов позволят сократить объем и радиотоксичность высокоактивных отходов переработки отработавшего топлива, подлежащих окончательному удалению из среды обитания. Вариантом замыкания ядерного топливного цикла по всем актиноидам представляется сжигание Np, Am, Cm в жидко-солевых ядерных реакторах (ЖСР) с циркулирующим топливом в виде расплавов солей фторидов металлов и активной зоной полостного типа, где в процессе работы возможна коррекция состава топлива, включающая подпитку трансурановыми элементами, рециклирование делящихся материалов и очистку от продуктов деления [1—5].

В качестве основного конструкционного материала предполагается использовать специально разработанный для реакторов типа ЖСР сплав типа ХН80МТЮ на никель-молибденовой основе, который может быть материалом всех металлических поверхностей, контактирующих с топливной солью и промежуточным жидко-солевым теплоносителем [4, 5]. Исключение составляют только аппараты модуля регенерации топливной соли. При использовании никель-молибденовых сплавов в качестве материала отражателей и внутриреакторных конструкций следует принимать во внимание, что основными механизмами их радиационного повреждения являются набухание и высокотемпературное

гелиевое охрупчивание под действием потока как быстрых, так и тепловых нейтронов.

В качестве основных компонентов топливной соли ЖСР наиболее подходящими являются фториды щелочных металлов LiF, NaF, KF и дифторид бериллия с добавками фторидов актиноидов. При выборе состава топливной соли и материалов для оборудования ЖСР должны быть приняты во внимание следующие технологические требования (рис. 1):



Р и с. 1. Качественные характеристики ЖСР с топливной солью состава Li,Na,K,An/F (—) и Li,Be,An/F (—): 1 — критическая концентрация актиноидов в топливной соли; 2 — растворимость топливных добавок и продуктов деления; 3 — температура плавления топливной соли; 4 — совместимость с конструкционным материалом; 5 — возможность управления окислительно-восстановительным потенциалом; 6 — давление в топливном контуре; 7 — отсутствие взрывоопасных реакций при контакте с промежуточным теплоносителем, водой и воздухом; 8 — химическая устойчивость и устойчивость к реакторному облучению; 9 — теплофизические свойства; 10 — эффективность рециклирования актиноидов и очистки топливной соли от растворимых продуктов деления

совместимость топливной соли с конструкционными материалами при температуре до 750 °С: глубина равномерной коррозии конструкционного материала менее 10 мкм/год, включая сварные соединения и зоны термического воздействия после термообработки свар-

ных швов, стойкость материалов к межкристаллитной теллуровой коррозии;

суммарная концентрация трифторидов актиноидов и лантаноидов в топливной соли при нормальной эксплуатации реакторной установки меньше их растворимости при минимальной температуре в топливном контуре;

температура плавления топливной соли ниже $600\text{ }^{\circ}\text{C}$;

давление насыщенных паров при рабочей температуре менее 100 Па ;

минимальная удельная нагрузка делящихся материалов в реакторном контуре, включая модуль регенерации топливной соли;

время выхода реакторной установки на равновесный режим работы (до 10—15 лет) при общем сроке эксплуатации не менее 50 лет;

возможность управления окислительно-восстановительным потенциалом топливной соли в ходе эксплуатации;

наличие эффективных способов рециклирования актиноидов и очистки топливной соли от растворимых продуктов деления.

Цель настоящей работы — предварительное сравнение эффективности использования различных вариантов топливной соли в полномасштабном ЖСР, предназначенном для утилизации Np , Am , Cm , с использованием части плутония и регенерата урана отработавшего топлива ВВЭР-1000, -1200.

Для сравнительного исследования производительности и эффективности сжигания актиноидов отработавшего топлива тепловых реакторов как отправная точка использован реакторный контур ЖСР тепловой мощностью 2250 МВт , выполненный в петлевой компоновке с температурой топливной соли на входе 650 , на выходе из активной зоны $750\text{ }^{\circ}\text{C}$ [1]. Топливный контур ЖСР заполнен расплавом состава Li, Be, An/F или Li, Na, K, An/F с разным отношением суммы фторидов Np , Am , Cm к плутонию в топливной добавке. В расчетах принят период выведения растворимых продуктов деления из топливной соли 300 эф. сут. при этом невозвратные потери актиноидов при рециклировании составляют $0,1\%$. Период выведения газообразных продуктов деления и благородных металлов в расчетах перехода систем к равновесному состоянию составлял 1 мин и 2 ч соответственно. Суммарный объем топливной соли в реакторном контуре

ЖСР принят равным 56 м^3 , из них примерно 16 м^3 находятся во внешней части топливного контура (насосы, теплообменники и трубопроводы).

В качестве инструмента расчета на всех этапах исследования использован MCNP-4B+ORIGEN2.1 — комплекс, адаптированный к специфике ЖСР [3]. Следует отметить, что электронные банки экспериментальной информации, доведенной до уровня бенчмарк, не содержат данные о жидкосольевых реакторных системах, соответственно в настоящее время нет верифицированных и сертифицированных для расчета нейтронно-физических характеристик ЖСР кодов. Поэтому создание расчетных комплексов на основе отечественных программных средств и их верификация являются первоочередной задачей.

При использовании в топливном контуре расплава $0,73\text{LiF}—0,27\text{BeF}_2$ молярная доля растворенного PuF_3 и AmF_3 в нем при $650\text{ }^{\circ}\text{C}$ может достигать более 3% [6]. Увеличение молярной доли AnF_3 в расплаве до 3% не вызывает заметного повышения температуры замерзания исходной смеси $585\text{ }^{\circ}\text{C}$ [7]. Расчеты показывают, что ЖСР, стартующий на трансурановых элементах отработавшего топлива ВВЭР-1000, -1200 после 3 лет выдержки, способен использовать достаточно широкий диапазон состава топливной подпитки. Имеющийся запас по растворимости трифторидов актиноидов позволяет без изменения конструктивных и температурных параметров использовать в качестве подпитки фториды трансурановых элементов с отношением $\text{Np+Am+Cm/Pu+Np+Am+Cm}$ до $1/3$. Увеличение этого отношения в подпитке с $1/10$ до $1/3$ приводит к росту равновесной загрузки по тяжелым элементам с $3,6$ до 21 т , но позволяет увеличить скорость сжигания Np+Am+Cm до $\sim 272\text{ кг/год}$ в среднем для срока службы ЖСР 50 лет при потреблении трансурановых элементов $\sim 730\text{ кг/год}$. Переход к равновесному режиму работы потребует увеличения молярной доли фторидов трансурановых элементов с $0,38\%$ ($3,6\text{ т Pu+Np+Am+Cm}$) для стартовой загрузки до $2,2\%$ (21 т Pu+Np+Am+Cm) для равновесной загрузки, что с существенным запасом ниже растворимости топливной добавки в расплаве молярного состава $0,73\text{LiF}—0,27\text{BeF}_2$. Переход к равновесному состоянию занимает чуть более 10 лет и происходит благодаря постепенному

накоплению в топливной соли ^{245}Cm , доля которого в балансе делений в реакторе на равновесии составит около 25%.

Расчеты показывают, что за 50 лет работы реакторной установки будет загружено 19,6 т Np, Am, Cm, утилизировано 13,6 т, что соответствует эффективности сжигания 69,3% ($K_g = m_c/m_z$ — отношение массы утилизированных к загруженным за аналогичный период). Соответствующие показатели для каждого сжигаемого элемента составят, %: Np 88,9, Am 66,3, Cm —55. Отрицательное значение для кюрия отражает длительный (более 25 лет) период выхода на равновесие концентрации ^{245}Cm .

Переход ЖСР на работу с топливом подпитки, содержащим только Np, Am, Cm отработавшего топлива ВВЭР-1000, -1200, также возможен. Это потребует использования другой не-сущей соли, а именно эвтектики Li,Na,K,An/F (температура ликвидуса 454 °C), где за счет высокой растворимости в ней трифторидов актиноидов при 650 °C, в принципе, может быть обеспечена высокая равновесная концентрация тяжелых элементов в активной зоне [8, 9]. В этом случае стартовая загрузка реактора топливом в дополнение к 61% Np, Am, Cm содержит 39% плутония отработавшего топлива ВВЭР-1000, -1200. В стартовой топливной загрузке на основе эвтектики LiF—NaF—KF суммарная молярная доля фторидов Pu, Np, Am, Cm составит около 12%. Повышение молярной доли трифторидов Pu, Np, Am, Cm до 10% в эвтектике Li,Na,K,An/F приведет к увеличению температуры ликвидуса топливной соли до 580 °C [10]. Такой ЖСР, подпитываемый фторидами Np, Am, Cm, после 20 лет работы сможет перейти в равновесное состояние. В этом случае суммарная молярная доля трифторидов Pu, Np, Am, Cm в топливной соли снизится до ~7%.

Для ЖСР с высокой концентрацией фторидов актиноидов в топливной соли спектр нейтронов в активной зоне приближен к типичному спектру быстрого твердотопливного реактора с натриевым охлаждением. Соответственно даже в отсутствие плутониевой составляющей в подпитке ^{241}Am становится предшественником ^{238}Pu в относительно быстрой (с периодом полураспада ~160 сут) цепочке $^{241}\text{Am}(n, \gamma) \rightarrow ^{242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$.

В случае использования в качестве топливной соли состава Li,Na,K,An/F производительность системы по сжиганию Np, Am, Cm на равновесии будет в 2,7 раза выше, чем для системы с Li,Be,An/F (730 кг/год). Загрузка по тяжелым металлам для стартового состава составит 98,1 т, равновесная 59,5 т. Соответственно росту содержания Np, Am, Cm в загрузке по сравнению с системой, использующей в качестве топливной соли состав Li,Be,An/F, уменьшается эффективность сжигания Np, Am, Cm, которая в данном случае составит менее 40%, повысятся и невозвратные потери актиноидов в отходы при переработке и рециклировании.

Особенностью ЖСР с топливной солью состава Li,Na,K,An/F при подпитке только фторидами Np, Am, Cm является более сложное регулирование реактора при переходе к равновесному состоянию по сравнению с реакторной установкой, использующей в качестве топливной соли расплав Li,Be,An/F с подпиткой фторидами плутония и Np, Am, Cm. В ЖСР достаточно медленное уменьшение реактивности при выгорании обычно компенсируется увеличением концентрации делящихся элементов при подпитке реактора свежим топливом. При подпитке ЖСР исключительно фторидами Np, Am, Cm такой контроль будет носить более сложный характер [11]. Это объясняется изменением знака реактивности, вносимой Np, Am, Cm в процессе их трансмутации. Действительно, при подпитке ЖСР исключительно фторидами Np, Am, Cm в их составе доминирует ^{241}Am , следовательно, подпитка свежим топливом будет аналогична вводу в реактор поглотителя, т.е. отрицательной реактивности. Но по прошествии некоторого времени в результате трансмутации из ^{241}Am будет нарабатываться ^{238}Pu , который будет вносить в реактор положительную реактивность. Как следствие, для контроля реактивности из такого реактора необходимо будет непрерывно выводить излишки образовавшегося плутония и возвращать их в реактор с некоторым периодом рециклирования, следуя изменению реактивности. Примерно через 20 лет, т.е. после установления равновесного режима работы реактора сценарий выведения/подпитки может быть организован на основе контроля состава топливной добавки в расплаве Li,Na,K,An/F.

Основные характеристики сжигания Np, Am, Cm для полномасштабного ЖСР тепловой мощностью 2250 МВт с топливной солью состава Li,Be,An/F и Li,Na,K,An/F приведены в таблице. Видно, что использование каждого состава топливной соли имеет свои положительные и отрицательные стороны с точки зрения нейтронно-физических расчетов. Расчеты проведены в предположении, что объем топливной соли в модуле очистки от растворимых продуктов деления мал по сравнению с объемом реакторного контура ЖСР, поэтому он не учитывался в оценке эффективности сжигания. При периоде выведения растворимых продуктов деления 300 эф. сут в модуле переработки будет находиться не более 5—6 м³ топливной соли, или 10% загрузки топливного контура по актиноидам. При выборе иных технологических схем переработки с более продолжительным внешним топливным циклом, например, при возрастании доли тяжелых элементов во внешнем цикле до 100% загрузки эффективность сжигания Np, Am, Cm значительно снизится, ЖСР во многом потеряет свои преимущества перед быстрыми твердотопливными реакторами-сжигателями.

Эффективность работы ЖСР с топливной солью разного состава

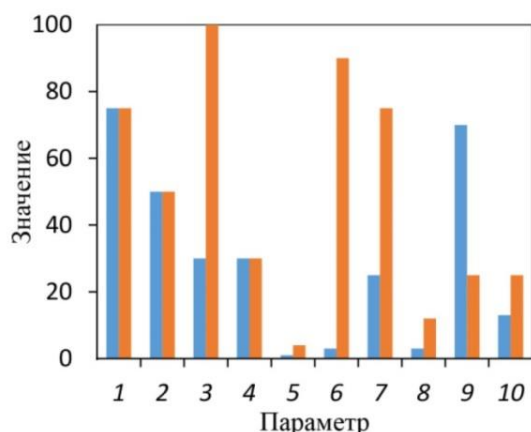
Состав топливной соли	Li,Be,An/F	Li,Na,K,An/F
Топливная загрузка Pu, Np, Am, Cm, т:		
стартовая	3,5	98,1
равновесная	21	59,5
Доля Np, Am, Cm в стартовой топливной загрузке, %	11	39
Доля Np, Am, Cm в топливной подпитке, %	33	100
Выход на равновесие, лет	11	>20
Скорость сжигания Np, Am, Cm, кг/год	270	730
Эффективность сжигания, %	69	40

Динамические неизотермические испытания совместимости никель-молибденовых сплавов с эвтектикой Li,Na,K,An/F, содержащей добавку продукта деления теллура, показали, что при 750 °С скорость равномерной коррозии и глубина диффузии теллура по границам зерен достигают для образцов сплава ХН80МТЮ 100 мкм/год и 100 мкм соответственно, что не соответствует критерию для конструкционных материалов, сформулированному в настоящей статье.

В расплавах молярного состава 0,73LiF—0,27BeF₂ и 0,71LiF—0,27BeF₂—0,02UF₄ с добавкой теллура при [U(IV)]/[U(III)] = 35 ± 5 исследованные никель-молибденовые сплавы имели высокую коррозионную стойкость. Межкристаллитная коррозия образцов не обнаружена. Потеря массы образцов сплава ХН80МТЮ составила 0,19 мг/см², что соответствует скорости равномерной коррозии не более 5 мкм/год.

Результаты, полученные в реакторном эксперименте MSRE (США) и позднее при обосновании проекта полномасштабного ЖСР типа MSBR (США), а также в лабораторных в других странах, позволяют утверждать, что очистка топливной соли состава Li,Be,An/F от растворимых продуктов деления может быть основана на методе восстановительной экстракции в жидкий висмут [12]. Характерное время рециклирования актиноидов в этом случае можно ожидать на уровне 30 эф. сут. Данный метод мало подходит для системы Li,Na,K,An/F, содержащей фториды натрия и калия. В качестве альтернативного варианта очистки такой соли от растворимых продуктов деления может рассматриваться метод осаждения актиноидов и лантаноидов в виде малорастворимых во фторидных расплавах оксидов. Характерное время рециклирования можно ожидать на уровне 300 эф. сут, что может привести к увеличению объема соли во внешнем топливном цикле по сравнению с рассмотренным в расчетах для этого типа растворителя, следовательно, существенно снизится эффективность сжигания. Однако для определения возможностей метода при решении поставленной задачи требуется большой объем экспериментальных НИР.

Из приведенных результатов можно сделать вывод, что решение вопросов, которые связаны с созданием конструкционного материала, надежно удерживающего топливную соль в реакторном контуре, с контролем окислительно-восстановительного потенциала системы, минимизацией критической загрузки актиноидов не только в реакторном контуре, но и во внешнем топливном цикле ЖСР, разработкой малоотходных процессов регенерации топливной соли с минимальным временем рециклирования Np, Am, Cm, существенно повлияет на выбор оптимальной технологической схемы ЖСР, включая состав топливной соли (рис. 2). По совокупности



Р и с. 2. Параметры, характеризующие ЖСР с топливной солью состава Li,Na,K,An/F (—) и Li,Be,An/F (—): 1 — максимальная температура топливной соли 10 °C; 2 — время эксплуатации, лет; 3 — период рециклирования An, эф. сут; 4 — период выведения растворимых продуктов деления 10 эф. сут; 5 — потери An при рециклировании за 50 лет, т; 6 — стартовая загрузка An, т; 7 — количество утилизированных Np, Am, Cm, 10 кг/год; 8 — критическая молярная доля фторидов трансурановых элементов, %; 9 — эффективность сжигания Np, Am, Cm, %; 10 — время выхода на равновесный режим, лет

указанных критериев экспериментального подтверждения свойств материалов топливного контура, достижения требуемой эффективности трансмутации Np, Am, Cm для начальной стадии разработки исследовательского ЖСР предпочтение может быть отдано топливной соли состава Li,Be,An/F, конструкционному материалу — никель-молибденовый сплав типа ХН80МТЮ, легированный алюминием и титаном, и схеме переработки топливной соли Li,Be,An/F на основе восстановительной экстракции в жидкий металл Bi—Li.

Авторы признательны А.В. Лопаткину и А.В. Хаперской за помощь и сотрудничество, а также НИЦ «Курчатовский институт» и Госкорпорации «Росатом» за поддержку работы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ignatiev V., Feynberg O., Gnidoi I. e.a. Molten salt actinide recycler & transforming system without and with Th—U support: fuel cycle flexibility and key material properties. — *Ann. Nucl. Energy*, 2014, v. 64, p. 408—420.
2. Игнатиев В.В., Фейнберг О.С., Хаперская А.В. и др. Жидкосольевой реактор как необходимый элемент замыкания ядерного топливного цикла по всем актиноидам. — *Атомная энергия*, 2018, т. 125, вып. 5, с. 251—255.
3. Ignatiev V., Afonichkin V., Feynberg O. e.a. ISTC № 1606 Project Final Report. Moscow Intern. Sci. and Technol. Centre, Russia, 2007.
4. Суренков А.И., Игнатиев В.В., Абалин С.С. и др. Коррозионная и механическая стойкость никелевых сплавов в жидкосольевых ядерных реакторах. — *Атомная энергия*, 2018, т. 124, вып. 1, с. 34—39.
5. Surenkov A., Ignatiev V., Presnyakov M. e.a. Effect of the [U(IV)]/[U(III)] ratio on selective chromium corrosion and tellurium intergranular cracking of Hastelloy N alloy in the fuel LiF—BeF₂—UF₄ salt. — *European Phys. J. Nucl. Sci. Technol.*, 2020, v. 6, № 4, p. 12—21.
6. Лизин А.А., Томилин С.В., Осипенко А.Г. и др. Исследование растворимости PuF₃ и AmF₃ в расплаве 73LiF—27BeF₂. — *Атомная энергия*, 2019, т. 126, вып. 6, с. 321—324.
7. Мерзляков А.В., Игнатиев В.В., Абалин С.С. Измерение кинематической вязкости расплава молярного состава 73LiF—27BeF₂ и влияние на вязкость эвтектики добавок трифторида церия и тетрафторида циркония. — Там же, 2018, т. 125, вып. 2, с. 86—88.
8. Лизин А.А., Томилин С.В., Гневашов О.Е. и др. Растворимость PuF₃, AmF₃, CeF₃, NdF₃ в расплаве LiF—NaF—KF. — Там же, 2013, т. 115, вып. 1, с. 11—16.
9. Лизин А.А., Томилин С.В., Игнатиев В.В. и др. Изучение совместной растворимости PuF₃ и UF₄ в расплаве фторидов лития, натрия и калия. — *Радиохимия*, 2015, т. 57, вып. 5, с. 425—429.
10. Merzlyakov A., Ignatiev V., Abalin S. Viscosity of LiF—NaF—KF eutectic and effect of cerium trifluoride and uranium tetrafluoride additions. — *Nucl. Engng Des.*, 2014, v. 278, p. 268—273.
11. *Molten Salt Reactor and Thorium Energy*. Ed by T. Dolan. Амстердам: Elsevier, 2017.
12. Rodrigues D., Durán-Klie G., Delpech S. Pyrochemical reprocessing of molten salt fast reactor fuel: focus on the reductive extraction step. — *Nukleonika*, 2015, v. 60, № 4, p. 907—914.

Поступила в Редакцию 22.05.20

УДК 621.039.4

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПЕРЕНОСА ГАЗОВОЙ ФАЗЫ В ПОТОКЕ ТЯЖЕЛОГО ЖИДКОМЕТАЛЛИЧЕСКОГО ТЕПЛОНОСИТЕЛЯ В ТЕПЛОГИДРАВЛИЧЕСКОМ КОДЕ HYDRA-IBRAE/LM

Алипченков В.М., Грудцын Я.В., Мосунова Н.А. (ИБРАЭ РАН, г. Москва)

e-mail: nam@ibrae.ac.ru

Канальный код HYDRA-IBRAE/LM предназначен для расчета теплогидравлических характеристик в контурах и теплообменном оборудо-

вании атомных станций, использующих в качестве теплоносителя жидкие металлы [1, 2]. С его помощью можно моделировать переходные и