

УДК 621.039.5

МЕТОДИКА ОЦЕНКИ ЭФФЕКТИВНОСТИ ТРАНСМУТАЦИИ ДОЛГОЖИВУЩИХ МИНОРНЫХ АКТИНОИДОВ

© 2021 г. О. Ашраф^а *, Г. В. Тихомиров^а

^аНациональный исследовательский ядерный университет "МИФИ", Москва, 115409 Россия

*E-mail: osama.ashraf@edu.asu.edu.eg

Поступила в редакцию 04.03.2021 г.

После доработки 11.05.2021 г.

Принята к публикации 12.05.2021 г.

Долгоживущие минорные актиноиды (МА); америций, нептуний и кюрий являются основными участниками долгосрочной радиотоксичности отработавшего топлива. Таким образом, трансмутация этих МА рассматривается в качестве альтернативы непосредственному захоронению. До настоящего времени не было разработано однозначного международно признанного количественного критерия эффективности трансмутации МА, хотя это было бы весьма желательно. Абсолютное и относительное снижение общей массы МА совершенно неадекватно, поскольку они игнорируют накопление более высоких радиотоксичных долгоживущих МА из трансмутированного нуклида. В данной работе мы предлагаем новый критерий эффективности трансмутации МА в ядерных реакторах и демонстрируем его работоспособность при сравнении двух жидкосолевых реакторах; однофазный двухзонный ториевый жидкосолевой реактор (Single-fluid Double-zone Thorium-based Molten Salt Reactor – SD-TMSR) и маломощный жидкосолевой реактор с быстрым спектром (Small Molten Salt Fast Reactor – SMSFR). Кроме того, предлагаемый критерий учитывает массу всех полезных МА, короткоживущих МА и короткоживущих продуктов деления (ПД). Мы представляем новый подход к загрузке МА в SD-TMSR и SMSFR. Общее изменение массы актиноидов и ПД во время облучения было рассчитано с использованием код SERPENT-2. Результаты показывают, что эффективность трансмутации ^{241}Am , основного кандидата на трансмутацию, в SD-TMSR намного выше, чем в SMSFR. После 1500 дней облучения эффективность трансмутации достигает 82.6% для SD-TMSR, однако для SMSFR достигает 52.5%.

Ключевые слова: жидкосолевой реактор, трансмутация, минорные актиноиды, SERPENT, SD-TMSR, SMSFR, коэффициентом трансмутации

DOI: 10.56304/S2079562920060068

ВВЕДЕНИЕ

Долгоживущие минорные актиноиды (МА); америций, нептуний и кюрий вносят основной вклад в долгосрочную радиотоксичность отработавшего топлива [1]. Таким образом, извлечение МА из отработавшего топлива снижает радиотоксичность долгоживущих отходов. Долгоживущие МА еще не использовались в качестве ядерного топлива. Таким образом, трансмутация этих МА рассматривается в качестве альтернативы непосредственному захоронению [2, 3]. Трансмутация направлена на преобразование МА в короткоживущие продукты деления (ПД) и/или некоторые полезные трансурановые элементы (ТРУ), подвергая их нейтронному потоку.

Международный Форум реакторов “Поколение IV” (Generation IV International Forum – GIF) выбрал жидкосолевой реактор (ЖСР) в качестве кандидата для реакторов следующего поколения [4–6]. ЖСР очень перспективны для целей транс-

мутации благодаря своим уникальным характеристикам. Жидкое топливо является одной из ключевых особенностей ЖСР, следовательно, нет необходимости изготавливать ТВЭЛы, содержащие высокоуровневые актиноиды. Более того, в ЖСР применяются функции непрерывной переработки и дозагрузки, что приводит к потреблению МА с высоким выгоранием и минимальным обращением [7].

До настоящего времени не было разработано однозначного международно признанного количественного критерия эффективности трансмутации МА, хотя это было бы весьма желательно [8]. Абсолютное или относительное уменьшение общей массы МА является основным параметром, описывающим процесс трансмутации. Однако этот массовый параметр совершенно неадекватен, так как он рассчитывает уменьшение массы МА независимо от произведенных нуклидов, которые могут иметь более высокую радиотоксичность.

Таблица 1. Основные характеристики SD-TMSR и SMSFR

Параметры	SD-TMSR	SMSFR
Тепловая мощность (МВт)	2250	500
Состав топлива (моль %)	$70\text{LiF}-17.5\text{BeF}_2-12.5(\text{HM})\text{F}_4$	$77.5\text{LiF}-22.5(\text{HM})\text{F}_N$
Обогащение ^7Li (%)	99.995	99.995
Температура топлива (К)	900	1023
Плотность топлива (г/см ³)	3.3	4.1
Коэффициент расширения топлива (г/(см ³ К))	-6.7×10^{-4}	-8.82×10^{-4}
Плотность графита (г/см ³)	2.3	2.3
Плотность B_4C (г/см ³)	2.54	2.54
Обогащение ^{10}B (%)	18.4	18.4
Диаметр/высота активной зоны (см)	460/460	124/124
Длина стороны гексагональной графитовой сборки (см)	7.5	
Внутренний радиус (см)	3.5	
Внешний радиус (см)	5	
Соотношение расплавленной соли и графита во внутренней подзоне	0.357	
Соотношение соли расплава и графита во внешней подзоне	1.162	
Объем топлива (м ³)	52.9	3.0

Основная цель настоящей работы — обосновать новый критерий оценки эффективности трансмутации МА в ядерных реакторах и продемонстрировать его работоспособность при сравнении двух жидкосольевых реакторов. ^{241}Am считается основным кандидатом на трансмутацию из-за его относительно большого количества, длительного периода полураспада и значительного вклада в радиотоксичность. Поэтому мы анализируем и сравниваем эффективность трансмутации ^{241}Am как в критическом SD-TMSR [9, 10], так и в SMSFR [11] на основе предложенного критерия. Мы используем SERPENT-2 [12] для выполнения всех расчетов, представленных в этой статье.

ОПИСАНИЕ МОДЕЛЕЙ SD-TMSR И SMSFR

Геометрия SD-TMSR и состав топлива

SD-TMSR представляет собой графит-замедлитель ЖСР с тепловым спектром и тепловой мощностью 2250 МВт. Активная зона SD-TMSR является правильным цилиндром, разделенным на внешнюю зону и внутреннюю зону для улучшения коэффициента воспроизводства. Радиус топливных каналов во внешней и внутренней зоне составляет 5 и 3.5 см соответственно. Шестиугольные призмы (из графита) с длиной стороны 7.5 см заполняют активную зону SD-TMSR. Топливная соль непрерывно циркулирует по топливным каналам, которые протыкают шестиугольные призмы графита. Как радиальные, так и осевые графитовые отра-

жатели окружают активную зону, чтобы уменьшить утечку нейтронов. Высота осевого графитового отражателя составляет 130 см, а толщина радиального графитового отражателя — 50 см. Другой цилиндр B_4C толщиной 10 см окружает отражатели для защиты. Внешний резервуар представляет собой хастеллой (сплав на основе никеля) толщиной 10 см, в котором находятся шестиугольники графита, топливная соль, отражатели, цилиндр B_4C и промежуточный теплообменник. Основные характеристики SD-TMSR приведены в табл. 1.

В данном исследовании жидкая топливная композиция представляет собой $\text{LiF}-\text{BeF}_2-(\text{HM})\text{F}_N$ (70–17.5–12.5 мол. %), где HM — это тяжелый металл (т.е. ^{232}Th и ^{233}U), а N зависит от типа тяжелого металла и термохимическое состояние топливной соли. В текущем исследовании $N = 4$. Объем и плотность жидкого топлива составляют 52.9 м³ и 3.3 г/см³ соответственно.

Геометрия SMSFR и состав топлива

Активной зоной SMSFR является правый цилиндр (высотой и диаметром 124 см), заполненный топливной солью. Радиальный бланкет толщиной 50 см, заполненный ^{232}Th , окружает активную зону, увеличивая коэффициент воспроизводства. Бланкет ^{232}Th окружен цилиндром B_4C для защиты. Осевого графитовый отражатель высотой 60 см окружает активную зону для уменьшения утечки нейтронов. Наконец, сосуд из хастеллой толщи-

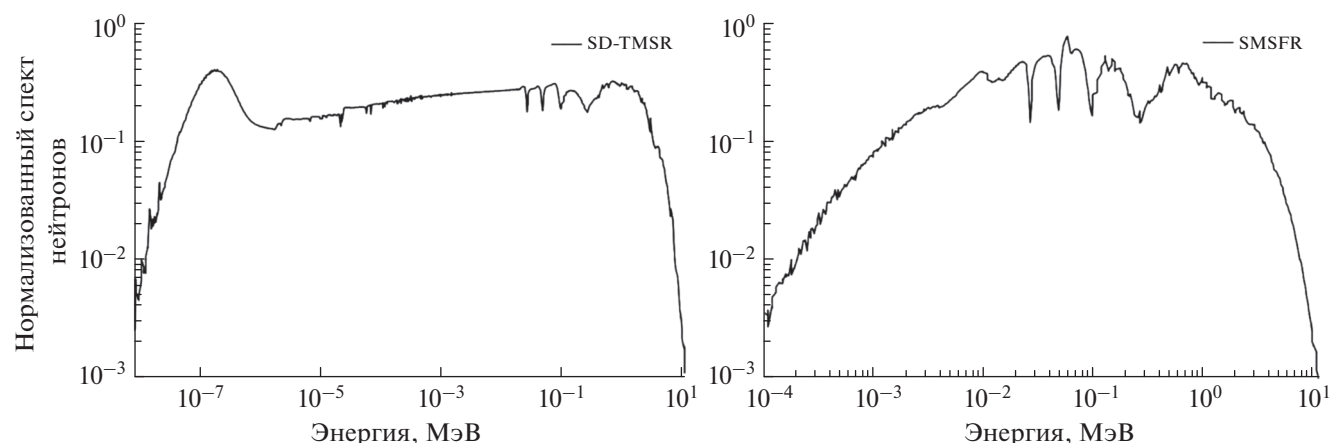


Рис. 1. Энергетический спектр нейтронного потока на BOL для SD-TMSR и SMSFR.

ной 10 см вмещает все компоненты SMSFR. Основные характеристики SMSFR приведены в табл. 1. Состав топливной соли — $\text{LiF}-(\text{HM})\text{F}_\text{N}$ (77.5–22.5 мол. %). Объем и плотность топливной соли составляют 3 м^3 и 4.1 г/см^3 соответственно.

Загрузка минорных актиноидов

Мы предлагаем новый подход к загрузке МА в активную зону реактора. В центре активной зоны процесс трансмутации более эффективен, чем на периферии активной зоны благодаря высокому потоку нейтронов. Таким образом, мы выбираем центральный канал SD-TMSR и SMSFR для загрузки МА. Центральный канал имеет объем $40.84 \cdot 10^3 \text{ см}^3$. Изначально, для SD-TMSR центральный канал заполнен жидкой солью, состоящей из LiF и BeF_2 (66 и 34 мол. %). Однако для SMSFR центральный канал заполнен только LiF в виде жидкой соли. Затем МА (^{241}Am в данном исследовании) непрерывно вводится в центральный канал обоих реакторов. Чтобы предотвратить загрязнение всего топливного цикла МА (сильные альфа- и нейтронные излучатели), мы замыкаем центральный контур. Дополнительно мы моделируем два отдельных бака; Pu + U бак и ПД бак. Первый бак используется для хранения изотопов Pu и U, извлеченных из центрального канала. Второй бак используется для хранения всех продуктов деления, образующихся в процессе трансмутации, в центральном канале. Предлагаемый подход объединяет преимущества как гомогенного, так и гетерогенного подходов. Более подробно предлагаемый подход:

1. позволяет загружать МА в центре активной зоны, где поток нейтронов велик;
2. направлен на предотвращение загрязнения основного топливного цикла МА путем замыкания контура МА;

3. позволяет вводить МА непрерывно и с низкой скоростью ($<4 \text{ г/сут}$ в данном исследовании), чтобы избежать усиления спектра нейтронов в активной зоне; а также

4. позволяет извлекать изотопы Pu, U и ПД, которые негативно влияют на поведение активной зоны во время работы реактора.

МЕТОДОЛОГИЯ И ИНСТРУМЕНТЫ

Общие предположения

В этом исследовании SERPENT-2 моделирует 3D-модель SD-TMSR и SMSFR. Мы использовали библиотеку сечений ENDF/B-VII.0 для всех расчетов в текущей работе. Результаты, продемонстрированные в этой работе, были получены после моделирования $12.5 \cdot 10^6$ активных нейтронных историй за цикл. Моделирование состояло из 500 активных циклов $2.5 \cdot 10^4$ нейтронов, разделенных на 8 параллельных задач. Каждое моделирование пропускало 50 неактивных циклов перед началом активных подсчетов, чтобы учесть конвергенцию распределения источников деления. Сходимость проверена по энтропии источника деления. Статистическая погрешность в $k_{\text{эф}}$ составляла ≤ 36 пмр. Удельная энергонапряженность как для SD-TMSR, так и для SMSFR равна 0.023 кВт/гU . Полный поток нейтронов составляет $4.1 \cdot 10^{14}$ и $1.8 \cdot 10^{15} \text{ н см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ для SD-TMSR и SMSFR соответственно. Нормализованный спектр нейтронного потока на единицу латаргии в начале жизни (beginning-of-life — BOL) как для SD-TMSR, так и для SMSFR показан на рис. 1.

Переработка и дозагрузка

В этой работе, мы считаем, что ^{241}Am непрерывно вводится в центральный канал SD-TMSR и SMSFR из внешнего хранилища с одинаковой ско-

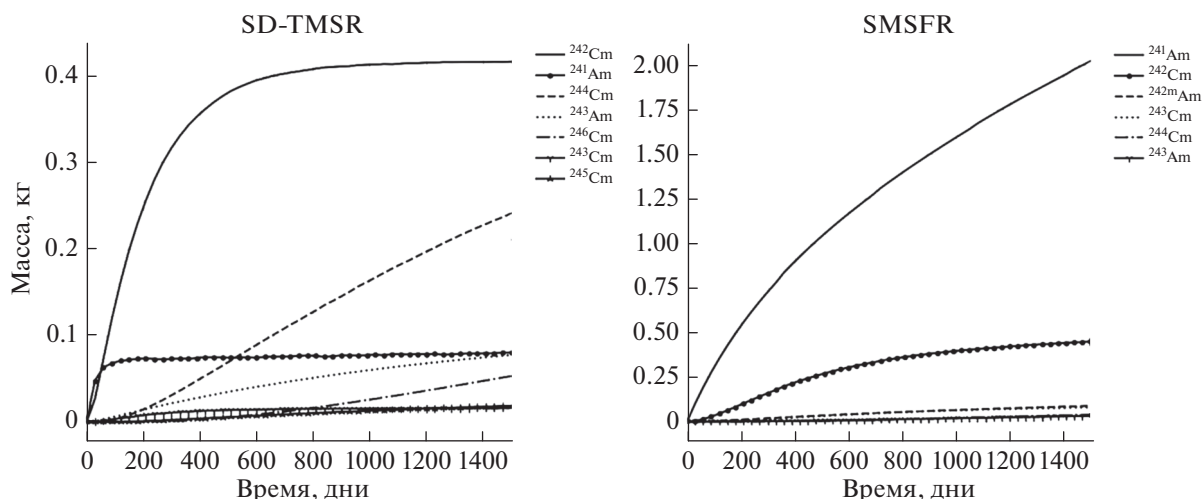


Рис. 2. Временная эволюция ^{241}Am и его основных продуктов реакции в центральном канале SD-TMSR и SMSFR.

ростью подачи — 3.55 г/день. Pu, U и растворимые ПД извлекаются из центрального канала путем химической переработки. Таким образом, система ежедневно перерабатывает определенное количество жидкой соли. В настоящей работе эффективное время экстракции Pu, U и растворимых ПД составляет ≈ 11.8 мин, что эквивалентно скорости химической переработки $5 \text{ м}^3/\text{день}$, выбранной в [9]. Все газообразные ПД и нерастворенные металлы, образующиеся в процессе трансмутации в центральном канале, выводятся в ПД бак в течение 30 с через систему барботирования газа.

Оценка эффективности трансмутации

На трансмутацию актиноидов влияют два основных фактора: нуклиды и нейтроны. Оба фактора следует классифицировать, чтобы оптимизировать процесс трансмутации. Нейтроны можно разделить на две группы — тепловые и быстрые. Согласно предложенному нами подходу к загрузке МА, актиноиды и ПД находятся в центральном канале, Pu + U бак и ПД бак. По истечении времени облучения t в центральном канале находятся остатки исходного (трансмутированного) нуклида, актиноиды и продуктов деления. Мы разделяем актиноиды на полезные актиноиды (Pu, U, Th), короткоживущие МА ($T_{1/2} < 30$ лет) (Ac, Bk, Cf, Es, Fm, Md, No, Lr) и долгоживущие МА (Pa, Np, Am, Cm). Продукты деления в центральном канале также делятся на: короткоживущие ПД и долгоживущие ПД (^{99}Tc , ^{129}I , ^{135}Cs , ^{126}Sn , ^{107}Pd , ^{93}Zr). Pu + U бак в основном содержит полезные актиноиды, а ПД бак содержит как короткоживущие, так и долгоживущие ПД.

Формула (1) вычисляет эффективность трансмутации ξ в любой момент времени на основе предложенного критерия:

$$\xi(t) = \left(\frac{M_1(t) + M_2(t) + M_3(t) + M_4(t) + M_5(t)}{M_0(t)} \right) \cdot 100\%, \quad (1)$$

где $\xi(t)$ — эффективность трансмутации в момент времени t ; $M_1(t)$ — масса полезных актиноидов в центральном канале в момент времени t ; $M_2(t)$ — масса короткоживущих МА в центральном канале в момент времени t ; $M_3(t)$ — масса короткоживущих ПД в центральном канале в момент времени t ; $M_4(t)$ — масса полезных актиноидов в Pu + U баке в момент времени t ; $M_5(t)$ — масса короткоживущих ПД в ПД баке в момент времени t ; $M_0(t)$ — начальная масса МА в момент времени t (без трансмутации).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Облучение ^{241}Am

На рис. 2 показано изменение во времени массы ^{241}Am и его основных продуктов реакции в центральном канале. Как показано на рис. 2, для SD-TMSR масса ^{241}Am достигает равновесия через ≈ 100 дней. Распад ^{242}Am приводит к нарастанию ^{242}Cm с максимальной массой 500% от равновесной массы ^{241}Am . ^{242}Cm достигает равновесия через ≈ 800 дней. ^{243}Am , ^{244}Cm и ^{246}Cm накапливаются во время облучения из-за радиационного захвата и будут последними изотопами, достигшими равновесия. ^{243}Cm и ^{245}Cm накапливаются довольно медленно и достигают равновесия через ≈ 1000 дней.

Для SMSFR ^{241}Am требуется больше времени для достижения равновесия, чем для SD-TMSR. ^{242}Cm достигает равновесия через ≈ 1400 дней об-

Таблица 2. Анализ трансмутации ^{241}Am в SD-TMSR и SMSFR после 1500 дней облучения

Изотопы	Остаточная масса через 1500 дней, кг		Коэффициент трансмутации, %	
	SD-TMSR	SMSFR	SD-TMSR	SMSFR
^{241}Am	0.08	2.00	98.50	62.96
MA	0.80	0.70	20.46	14.55
Pu	2.83	2.42	72.37	50.31
ПД	0.28	1.69	7.16	35.13

лучения. ^{242m}Am , ^{243}Am , ^{243}Cm и ^{244}Cm накапливаются довольно медленно во время облучения из-за радиационного захвата, как показано на рис. 2.

Эффективность трансмутации

Анализ трансмутации ^{241}Am в SD-TMSR и SMSFR после 1500 дней облучения суммирован в табл. 2. Коэффициент трансмутации для ^{241}Am достигает 98.50% и 62.96% после 1500 дней облучения в SD-TMSR и SMSFR, соответственно. Для SD-TMSR, ^{241}Am трансмутировался в основном в изотопы 72.37% Pu, 20.46% MA и 7.16% ПД. В то время как для SMSFR, ^{241}Am трансмутировался в основном в изотопы 50.31% Pu, 14.55% MA и 35.13% ПД. Из табл. 2 видно, что коэффициент трансмутации ^{241}Am в реакторе SD-TMSR в 1.56 раз выше, чем в SMSFR.

Мы предлагаем новый критерий эффективности трансмутации ^{241}Am в ядерных реакторах. На рис. 3 показана эффективность трансмутации $\xi(t)$ для ^{241}Am как в SD-TMSR, так и в SMSFR, рассчитанная по формуле (1). Эффективность трансмутации ^{241}Am в SD-TMSR намного выше, чем в SMSFR, это связано с более высоким микроскопическим

сечением ^{241}Am в области тепловой энергии, чем в области быстрых энергий. После 1500 дней облучения ξ достигает 82.6% для SD-TMSR, однако для SMSFR достигает 52.5%. Эффективность трансмутации учитывает массу всех полезных MA, короткоживущих MA и короткоживущих ПД. Массовые параметры, перечисленные в табл. 2, позволяют рассчитать уменьшение массы MA независимо от произведенных нуклидов. Таким образом, $\xi(t)$ отражает реальную картину эффективности трансмутации.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе предложен новый критерий эффективности трансмутации MA в ядерных реакторах. Мы представили новый подход к загрузке MA в активной зоне SD-TMSR и SMSFR. Предлагаемый подход сочетает в себе преимущества как гомогенного, так и гетерогенного подходов. Были смоделированы два отдельных бака; Pu + U бак и ПД бак. Первый бак использовался для хранения изотопов Pu и U, извлеченных из центрального канала реактора. Второй бак использовался для хранения всех ПД, полученных в процессе трансмутации, в центральном канале. Общее изменение массы актиноидов и ПД во время облучения было рассчитано с использованием SERPENT-2.

Эффективность трансмутации $\xi(t)$ ^{241}Am в SD-TMSR намного выше, чем в SMSFR. Это связано с более высоким микроскопическим сечением ^{241}Am (скоростью реакции) в области тепловой энергии, чем в области быстрой энергии. $\xi(t)$ отражает реальную картину эффективности трансмутации.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа финансировалась Программой конкурентоспособности МИФИ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Liu B., Jia R., Han R., Lyu X., Han J., Li W. // Ann. Nucl. Energy. 2018. V. 115. P. 116.
<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2018.01.031>

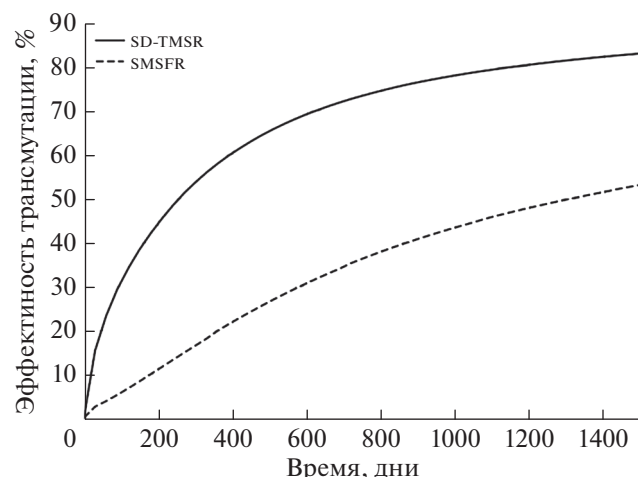


Рис. 3. Эффективность трансмутации $\xi(t)$ ^{241}Am в SD-TMSR и SMSFR.

2. Biss K.H., Thomauske B. // Ann. Nucl. Energy. 2018. V. 83. P. 25.
<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2015.03.042>
3. Yu C., Li X., Cai X., Zou C., Ma Y., Han J., Chen J. // Ann. Nucl. Energy. 2015. V. 85. P. 597.
<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2015.06.014>
4. U.S. Dept. Energy // Tech. Rep. 2002. P. 48.
5. Rosenthal M., Kasten P., Briggs R. // Nucl. Applications Technol. 1970. V. 8. P. 107.
<https://doi.org/10.13182/NT70-A28619>
6. Ashraf O., Tikhomirov G. // Ann. Nucl. Energy. 2020. V. 148. P. 107751.
<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2020.107751>
7. Ignatiev V., Feynberg O., Gnidoi I., Merzlyakov A., Surenkov A., Uglov V., Zagnitko A., Subbotin V., Sannikov I., Toropov A., et al. // Ann. Nucl. Energy. 2014. V. 64. P. 408.
<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2013.09.004>
8. Rabotnov N. // Tech. Rep. 2002.
9. Li G.C., Cong P., Yu C.G., Zou Y., Sun J.Y., Chen J.G., Xu H.J. // Prog. Nucl. Energy. 2018. V. 108. P. 144.
<https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2018.04.017>
10. Ashraf O., Rykhlevskii A., Tikhomirov G.V., Huff K.D. // Ann. Nucl. Energy. 2020. V. 137. P. 107115.
<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2019.107115>
11. Fiorina C., Aufiero M., Cammi A., Franceschini F., Krepel J., Luzzi L., Mikityuk K., Ricotti M.E. // Prog. Nucl. Energy. 2013. V. 68. P. 153.
<https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2013.06.006>
12. Leppanen J., Pusa M., Viitanen T., Valtavirta V., Kaltiainenaho T. // Ann. Nucl. Energy. 2015. V. 82. P. 140.
<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.08.024>

A Methodology for Determining the Transmutation Efficiency of Minor Actinides

O. Ashraf^{1, *}, and G. V. Tikhomirov¹

¹ National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

*e-mail: osama.ashraf@edu.asu.edu.eg

Received March 4, 2021; revised May 11, 2021; accepted May 12, 2021

Abstract—The long-lived minor actinides (MAs) are the major contributors to the long-term radiotoxicity of spent fuel. Therefore, the transmutation of these MAs is considered as an alternative way to the direct disposal. Up to now no definite internationally recognized quantitative criterion of MAs transmutation efficiency was worked out, although this would be highly desirable. The absolute and relative total mass reduction of MAs are completely inadequate. We introduce a new criterion for transmutation efficiency of MAs in nuclear reactors and demonstrate its efficiency by comparing two molten salt reactors; the Single-fluid Double-zone Thorium-based Molten Salt Reactor (SD-TMSR) and the Small Molten Salt Fast Reactor (SMSFR). The proposed criterion takes into account the mass of all useful MAs, short-lived MAs, and short-lived fission products (FPs). The proposed approach merges the advantages of both homogeneous and heterogeneous approaches. We introduce a new approach to load MAs into the SD-TMSR and SMSFR. The change in the actinides and FPs mass has been calculated using SERPENT-2 code. The results show that the transmutation efficiency of ²⁴¹Am, the prime candidate for transmutation, in the SD-TMSR is much higher than in the SMSFR. After 1500 days of radiation, the transmutation efficiency reaches 82.6% for SD-TMSR, however, for SMSFR it reaches 52.5%.

Keywords: molten salt reactor, transmutation, minor actinides, SERPENT, SD-TMSR, SMSFR, transmutation coefficient