

Государственная корпорация по атомной энергии «Росатом»
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РФ –
ФИЗИКО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ
имени А. И. Лейпунского

ФЭИ – 3270

Иванов Р.Э., Деменева И.В., Коробейников В.В.

**РАСЧЁТНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ И РАЗРАБОТКА
ПРЕДЛОЖЕНИЙ ПО СЖИГАНИЮ МЛАДШИХ АКТИНИДОВ
В РЕАКТОРНЫХ УСТАНОВКАХ**

Обнинск-2017

Иванов Р.Э., Деменева И.В., Коробейников В.В.

Расчётные исследования и разработка предложений по сжиганию младших актинидов в реакторных установках.

Препринт ФЭИ – 3270, Обнинск, 2017. – 12 с.

В статье представлены расчетные результаты исследования по сжиганию МА в реакторных установках с быстрым спектром нейтронов.

Использование быстрых реакторов для сжигания МА может явиться весьма, эффективным путем в решении общей проблемы снижения активности долгоживущих отходов ядерной энергетики. Анализ возможностей быстрых реакторов для этой цели показывает целесообразность рассмотрения двух направлений:

- использование традиционных быстрых энергетических реакторов, топливо которых содержит в виде небольшой примеси малые актиниды;
- использование специализированных активных зон (или специализированных быстрых реакторов), топливо которых содержит максимально возможное количество малых актинидов.

Технически первый вариант является более экономически выгодным из-за того, что для его реализации потребуется усовершенствовать уже существующие реакторы. Но с точки зрения радиохимии, более выгодным может быть использование специализированных активных зон которые позволят достичь больших глубин выгорания, а значит меньшего объема отходов.

В качестве расчетной модели такой активной зоны выбран реактор типа БН-600 с гибридной активной зоной и боковым экраном, содержащим ТВС с ТВЭЛ с МА.

Также приведены рекомендации по требованию к невозвратимым потерям МА при их рециклировании.

Проведенные исследования показали возможность использования даже реактора БН-600 (а не специализированного быстрого реактора) для сжигания МА требуемой глубины выжигания с топливом, содержащим пористую металлическую матрицу, пропитанную оксидами МА.

Ключевые слова

Минорные актиниды, выжигание, переработка отходов, технологические потери, реакторы на быстрых нейтронах, боковой экран, пористая сталь, БН-600, рецикл, топливные циклы.

Введение

Управление отработавшим топливом является серьезной проблемой для всех стран, где была развита атомная энергетика (АЭ), независимо от точки зрения относительно ее будущего использования, дальнейшего развития или поэтапного сворачивания всех ядерных программ.

Большая часть опасности от отработанного топлива происходит всего от нескольких химических элементов – нептуния, америция, кюрия – так называемых младших актинидов (МА), присутствующих в отработанном ядерном топливе (ОЯТ).

В настоящее время в мире 439 реакторов вырабатывают мощность 372 ГВт. Еще 34 блока строятся. Большинство из этих реакторов это легководные ядерные реакторы которые производят 20–30 т отработавшего ядерного топлива ежегодно. Обычно более 98,5 % от этого количества составляет U^{238} и короткоживущие продукты деления, которые не представляют долговременной радиологической опасности. Приблизительно 0,4 % составляют долгоживущие продукты деления такие как Цезий, стронций, технеций и йод. Остальную часть (0,7–2,5) %, представляющую наибольшую опасность из-за своей радиотоксичности и высокого тепловыделения, составляют Pu и младшие актиниды.

По данным МАГАТЭ [1] на 2006 год в мире было накоплено около 110 тонн минорных актинидов в хранилищах ОЯТ и около 40 тонн в высокоактивных отходах после переработки. На рисунке 1 представлен прогноз накопления МА в мире.

По своим нейтронно-физическим свойствам МА не относятся к хорошо делящимся нуклидам, таким, как U^{235} и Pu^{239} , а по химическим свойствам весьма близки к продуктам деления из группы редкоземельных элементов. Поэтому при химической переработке облученного топлива не было стимула их выделять. Исторически сложилось так, что с самого начала работы первых ядерных реакторов при переработке облученного топлива МА оставались с основной массой продуктов деления, составляя РАО высокой удельной активности [2].

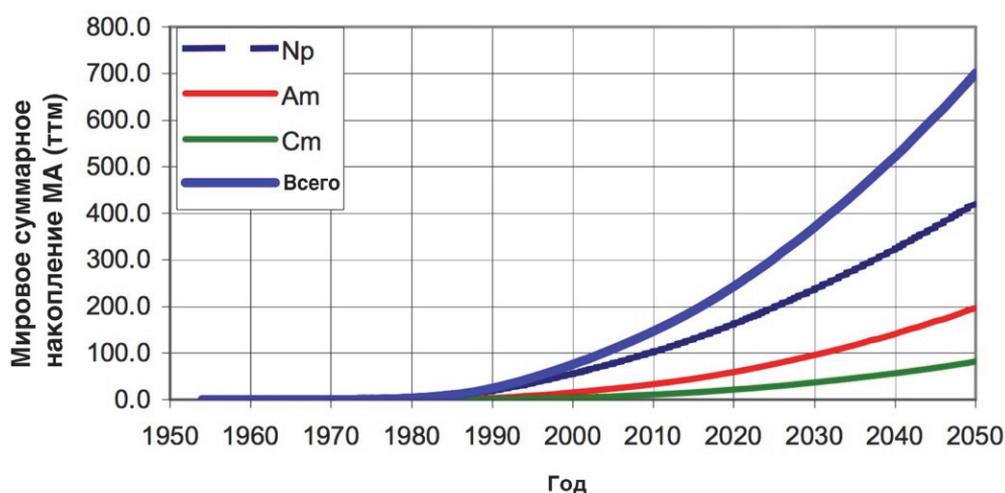


Рис. 1. Прогнозируемое накопление МА в мире

Однако МА являются радиотоксичными нуклидами, отличаются достаточно длительными периодами полураспада, интенсивной генерацией нейтронов спонтанного деления и во многом определяют уровень остаточного тепловыделения при длительном хранении облученного топливного материала. Если облученное топливо захоранивать без переработки, то после тысячи лет выдержки МА будут определять тепловую нагрузку могильника на длительный срок. Поэтому предпочтительнее выделять МА из облученного топлива и их утилизировать в ядерных установках.

Физические основы выжигания МА

Ядерно-физические свойства МА заметно отличаются от таковых для основных нуклидов, используемых в качестве топлива в ядерных реакторах. В первую очередь речь идет о характере зависимости сечения деления от энергии нейтронов, на рисунке 2 приведены зависимости сечения деления (а) и сечения захвата (б) для некоторых нуклидов МА. Можно видеть, что отличительной чертой здесь является то, что при возрастании энергии нейтронов значение сечения деления заметно повышается, в то время как сечение захвата, наоборот снижается.

Таким образом, для эффективного выжигания МА можно использовать быстрые реакторы, а также электроядерные и термоядерные установки, в blankets которых формируется жесткий спектр нейтронов. Наиболее продвинутыми и промышленно освоенными, безусловно, являются быстрые реакторы [2]. Жесткий спектр нейтронов позволит увеличить долю сжигания МА за счет нейтронов от их деления и снизить необходимое количество добавляемых «внешних» делящихся изотопов, что важно с экономической точки зрения.

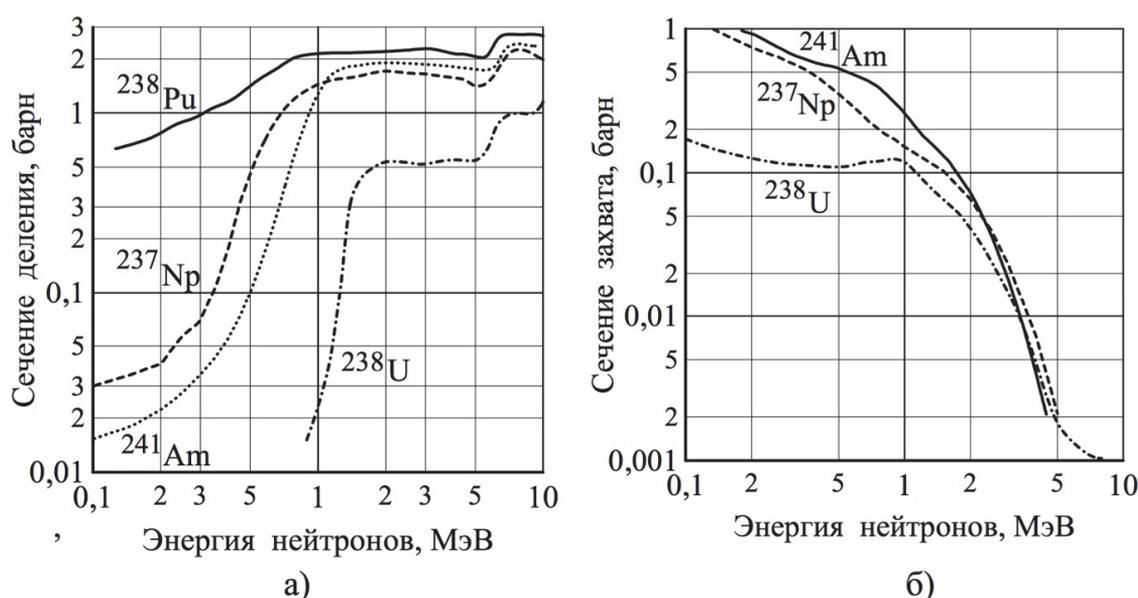


Рис. 2. Зависимость сечения деления (а) и сечения захвата (б) от энергии нейтронов для нуклидов МА

Использование быстрых реакторов для сжигания МА должно стать эффективным путем в решении общей проблемы снижения активности долгоживущих отходов ядерной энергетики.

К этим реакторам предъявляются следующие требования:

- Топливо не должно содержать U^{238} , чтобы не нарабатывать Am и Cm, а также для размещения МА в топливе, что обеспечивает применение инертного разбавителя.
- Нейтронно-физические свойства этих реакторов должны быть такими, чтобы в процессе облучения топлива в активной зоне преимущественно происходило деление нуклидов МА по сравнению с радиационным захватом нейтронов, что естественно приводит к образованию новых высокоактивных изотопов, а это потребует дополнительных затрат на их сжигание.

Для удовлетворения этим требованиям одним из наиболее подходящих может быть топливо с пористой металлической матрицей, которое представляет собой каркас из пористого металла который обрабатывается до заданных размеров топливного сердечника, а затем пропитывается растворами, из которых в процессе термодеструкции образуются оксиды тяжелых металлов: $(Am^{241})O_2$, $(Am^{243})O_2$, $(Np^{237})O_2$ [3].

Отличительными особенностями металлических матриц являются их высокая теплопроводность и высокий (по сравнению с керамиками) коэффициент температурного расширения. Первая из них за счет высокой теплопроводности металла может позволить значительно снизить температуру в центральной зоне топливного сердечника. Вторая из-за значительного увеличения линейных размеров топливных сердечников – улучшить параметры безопасности реакторов в аварийных ситуациях, ограничивая рост мощности за счет введения отрицательной реактивности, обусловленной уменьшением плотности делящихся нуклидов в активной зоне реактора из-за увеличения длины топливных сердечников при повышении их температуры [4, 5, 6].

Исследования по обоснованию топлива с пористой металлической матрицей для сжигания МА в быстром реакторе типа БН-600

В данной работе рассмотрена возможность сжигания МА в реакторе типа БН-600, чтобы ускорить разработку специального топлива с пористой металлической матрицей. В качестве расчетной модели выбран реактор типа БН-600 с гибридной активной зоной и боковым экраном, содержащим ТВС с ТВЭЛ из пористых металлических сердечников с МА.

Из МА рассматриваются Np^{237} , Am^{241} и Am^{243} . В качестве материала пористой металлической матрицы рассмотрена сталь (X18H9T). На первом этапе исследований была выбрана пористость металлических сердечников, равная 60 % от объема сердечника. Выбрана объемная доля заполнения пор оксидами МА (NpO_2 , AmO_2), равная 50 % от объема сердечника или примерно 83 % объема пор.

Перевод реактора типа БН-600 в реактор-выжигатель плутония (чем обусловлено появления гибридной активной зоны), в первую очередь, связан с заменой воспроизводящих экранов, выполняемых на основе обедненной двуокиси урана, на невоспроизводящие, например, стальные.

Такое решение не позволяет эффективно использовать нейтроны, утекающие в боковой экран. В связи с этим целесообразно использовать боковой экран для сжигания МА.

В данной работе рассматривается первый шаг решаемой проблемы применительно к реактору типа БН-600 с гибридной активной зоной. На заданном этапе рассмотрения торцевые воспроизводящие экраны сохранены с целью использования разработанной конструкции тепловыделяющего элемента (ТВЭЛ) и ТВС активной зоны.

С точки зрения экономии нейтронов, вылетающих из активной зоны в боковой экран, целесообразно, отказаться от ССЗ и использовать эти ячейки для сборок содержащих сердечники из пористых металлических матриц с МА.

Расчетная модель реактора типа БН-600 и основные расчетные нейтронно-физические характеристики

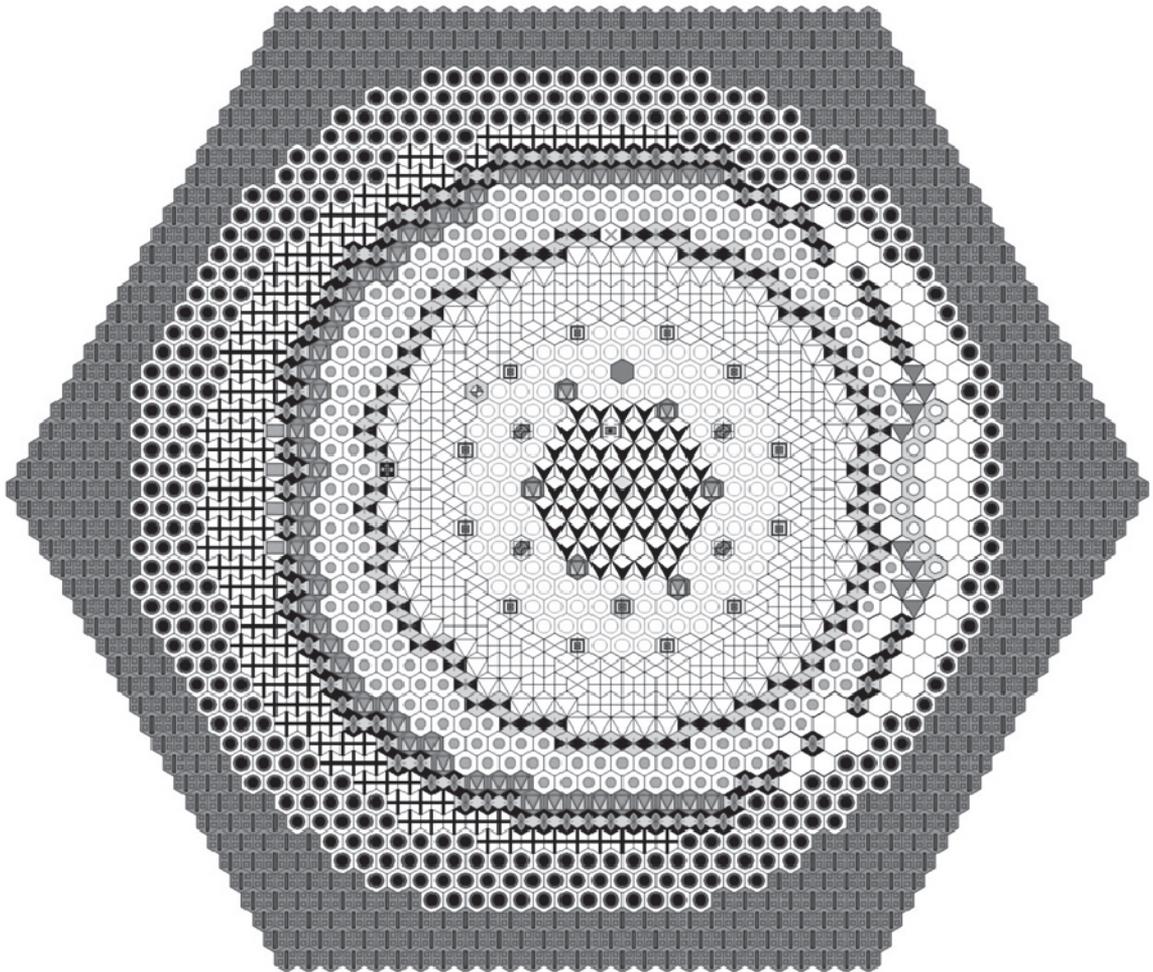
В качестве расчетной модели реактора для расчетных исследований по выжиганию МА в БЭ выбран реактор типа БН-600 с гибридной активной зоной. Основные его характеристики приведены в следующей таблице. Расположение ТВС в реакторе показано на рисунке 3.

Таблица 1

Основные конструктивные характеристики ТВС и реактора типа БН-600

Характеристика	Значение
Тепловая мощность, МВт	1470
Топливный материал ТВС с урановым топливом	окись обогащенного урана
Топливный материал ТВС с МОХ топливом	смесь окиси урана и окиси плутония
Материал бокового экрана	МА (Np-237, Am-241 и Am-243)
Материал торцевой зоны воспроизводства	окись обедненного урана
Количество ТВС в активной зоне, штук	394
в том числе:	
– с урановым топливом	303
– со смешанным топливом (PuO ₂ + UO ₂)	91
– с МА (NpO ₂ , AmO ₂)	242
Масса топлива в активной зоне, кг	12960
в том числе	
– уранового(UO ₂), кг	9966
– смешанного (PuO ₂ + UO ₂), кг	2994
Содержание диоксида плутония в смешанном топливе, %	21,3
Потребление плутония за год при КИУМ=0,77, кг	281
Размер «под ключ» и толщина стенки шестигранного чехла, мм	96 □ 2

Характеристика	Значение
Количество твэлов в ТВС	127
Диаметр и толщина оболочки твэла, мм	6,9 □ 0,4
Высота активной зоны, мм	1030
Размеры топливной таблетки (втулки), мм – наружный диаметр – внутренний диаметр	□ 5,9 □ 1,7
Плотность топлива, г/см ³	~ 10,4



-  ТВС с сердечниками, содержащими МА в металлической пористой матрице (ряд ТВС окружающих активную зону), 165 ТВС
-  ТВС с сердечниками, содержащими МА в металлической пористой матрице (ТВС вместо стальных сборок защиты, используемых в традиционном реакторе с гибридной зоной), 76 ТВС
-  ТВС с сердечниками, содержащими МА в металлической пористой матрице (одиночная сборка для уточнения расчетных параметров при выгорании МА в ней), 1 ТВС

Рис. 3. Расчетная картограмма реактора типа БН-600 с гибридной активной зоной и сборками с минорными актинидами в боковом экране

Гибридная активная зона включает в себя 303 урановых ТВС трех типов обогащения, 91 ТВС со смешанным топливом, 27 стержней СУЗ, два источника нейтронов. По радиусу активная зона разбита на четыре зоны, отличающиеся друг от друга видом и обогащением топлива:

- ЗМО с топливом диоксидным урановым топливом с обогащением 17 % по изотопу U^{235} , расположенная в центре активной зоны.
- ЗСО с диоксидным урановым топливом с обогащением 21 % по изотопу U^{235} , расположенная концентрично вокруг ЗМО.
- ЗБО со смешанным топливом, расположенная концентрично вокруг ЗСО. В качестве базового принят следующий изотопный состав плутония в смешанном уран-плутониевом топливе – $Pu^{238} / Pu^{239} / Pu^{240} / Pu^{241} / Pu^{242} = 0,13 / 91,72 / 6,55 / 1,17 / 0,43$ %.
- Состав МА: 60 % Np-237 и 40 % Am-(241+243)
- ЗБО с диоксидным урановым топливом с обогащением 26 % по изотопу U^{235} , расположенная концентрично вокруг ЗБО со смешанным уран-плутониевым топливом.

ТВС содержат части верхнего и нижнего торцевых экранов из таблеток диоксида обедненного или естественного урана, размещенных в общей оболочке с топливными таблетками. Критические параметры реактора обеспечиваются наличием в активной зоне около 2.2 т урана-235 и плутония.

Расчет трансмутации младших актинидов (Np^{237} , Am^{241} , Am^{243}) в боковом экране реактора типа БН-600

Расчеты проводились в программном комплексе TRIGEX [7], результаты приведены как для начала периода облучения, так и после 500 эффективных суток облучения в реакторе на номинальной мощности. Время облучения, равное 500 эфф. суток, выбрано примерно соответствующее временному интервалу четырех кратной перегрузке топлива в активной зоне.

Наличие МА в БЭ не влияет существенно на реактивность реактора. Значения эффективного коэффициента размножения нейтронов (K -эфф), практически для всех рассматриваемых вариантов не превышают K -эфф_{крит}=1,0. Изменение реактивности реактора от «выгорания» МА находится в пределах $\pm 0,6$ (%)ΔK/K.

Таблица 2

Количество минорных актинидов, трансмутируемое при облучении минорных актинидов в расчетной ячейке после облучения в БЭ в течение 500 эфф. суток

	Am-241	Am-243	Np-237
Начальная загрузка МА (кг)	18,62	18,77	17,72
Выгорело (кг)	2,25	1,72	1,99
Выгорело (%)	12,08	9,16	11,89

**Расчет температуры на поверхности одиночного ТВЭЛ
с младшими актинидами и тепловыделяющей сборки с этими ТВЭлами
при свободной конвекции**

В процессе α -распада младших актинидов в рассматриваемых топливных сердечниках выделяется энергия, примерно около 5 мэВ на распад. Содержание МА в ТВС ограничено температурой на поверхности ТВС. Отвод тепла от нагретых вертикальной и горизонтальной труб при свободном движении воздуха около них рассчитывался по методике, изложенной в книге Михеева М.А. и Михеевой И.М. [8].

Таблица 3

**Расчетные результаты температуры на поверхности ТВС, находящейся
в воздушной среде с температурой 30 °С**

	Вертикальное	Горизонтальное
ТВС Np-237	30,2	30,2
ТВС Am-241	246,2	217,3
ТВС Am-243	52,0	52,0

Свежие ТВС (до облучения), содержащие Am²⁴¹, имеют на поверхности чехлового шестигранника температуру примерно 250 и 550 °С в центре центрального ТВЭЛ в ТВС.

Это может потребовать принудительного охлаждения таких ТВС при их транспортировке или уменьшения содержания Am²⁴¹ в сердечниках.

Расчетные значения радиационной повреждающей дозы

Для реактора типа БН-600 из-за изменения прочностных свойств оболочек ТВЭЛ, одним из критериев, ограничивающих время облучения, принята величина радиационной повреждающей дозы (смещение на атом «СНА»). Эта величина ограничена значением примерно 90 сна. Для рассматриваемых ТВС с МА в БЭ использовано это ограничение, исходя из него было определено время нахождения ТВС в БЭ.

По программе TRIGEX были рассчитаны максимальные значения повреждающих доз на оболочки ТВЭЛ ТВС за один интервал перегрузки топлива в активной зоне, равный 140 эфф. суток.

Используя эти результаты, определено допустимое время облучения ТВС с МА в БЭ, равное 1260 эфф. сут, что соответствует 9 интервалам между перегрузками топлива в активной зоне.

В соответствии со временем облучения ТВС в БЭ (1260 эфф. сут) пересчитаны основные характеристики трансмутации выбранных нуклидов: Np²³⁷, Am²⁴¹ и Am²⁴³, приведенные в следующей таблице.

**Количество минорных актинидов, трансмутируемое в расчетной ячейке
после облучения в боковом экране в течение 1260 эфф. суток**

	Am-241	Am-243	Np-237
Начальная загрузка МА (кг)	18,62	18,77	17,72
Выгорело (кг)	5,15	4,03	4,62
Выгорело (%)	27,67	21,45	26,04

**Расчетные рекомендации по технологическим потерям в процессе
радиохимической переработки МА при их рециклировании**

Необходимость глубокой очистки выгоревшего топлива от МА является главным условием целесообразности трансмутации в быстрых реакторах вообще. Чем большая часть МА будет уничтожаться в реакторе, тем меньше надо будет перерабатывать отработавшего топлива и тем меньше будет потерь. При заданной величине потерь в течение полного выжигания МА, относительная потеря на каждом шаге переработки может быть оценена по формуле:

$$\eta = E \cdot f / (1 - E \cdot (1 - f)),$$

где:

η – относительные потери,

f – относительное уменьшение массы МА при облучении в БЭ в течение 1260 эфф. сут,

E – отношение «потери» на каждом шаге переработки топлива при изготовлении сердечников с МА к массе МА в начальный момент до радиохимической переработки.

**Оценочное значение относительных потерь при радиохимической переработке
ТВС с минорными актинидами после облучения в боковом экране при заданном
значении общих потерь от общего количества минорных актинидов, (%)**

Общие потери	Am-241	Am-243	Np-237
1 %	0,30 %	0,23 %	0,28 %
0,1 %	0,077 %	0,058 %	0,072 %

Суммарные потери актинидов, равные 1 %, при рециклировании топлива с МА могут быть получены при уровне технологических потерь не больше 0,3 %.

Для получения суммарных потерь, равных 0,1 %, как того требует объявленный принцип радиационно-миграционной эквивалентности захораниваемых РАО, технологические потери при переработке топлива не должны превышать 0,07 %.

Выводы

Были проведены расчётные исследования и разработаны предложения по сжиганию младших актинидов в реакторной установке типа БН- 600.

В качестве расчетной модели выбран реактор типа БН-600 с гибридной активной зоной и боковым экраном, содержащим ТВС с ТВЭЛ из пористых металлических сердечников с МА.

В результате проведенных расчётных исследований определена компоновка гибридной активной зоны реактора БН-600 с боковым экраном, содержащим ТВС с пористыми металлическими сердечниками, в которых поры заполнены МА (Am^{241} , Am^{243} и Np^{237}).

Свежие ТВС (до облучения), содержащие Am^{243} , имеют на поверхности чехлового шестигранника температуру примерно 250 и 550 °С в центре центрального ТВЭЛ в ТВС. Это может потребовать принудительного охлаждения таких ТВС при их транспортировке или уменьшения содержания Am^{243} в сердечниках.

Проведенные исследования показывают возможность использования даже реактора БН-600 (а не специализированного быстрого реактора) для сжигания МА требуемой глубины выжигания с топливом, содержащим пористую металлическую матрицу, пропитанную оксидами МА.

Список литературы

1. Status of Minor Actinide Fuel Development http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Pub1415_web.pdf
2. А.Н. Шмелев В.А., Апсэ Г.Г. Куликов. Физические основы обезвреживания долгоживущих радиоактивных отходов. Потенциал инновационных технологий. Учебное пособие. – М.: МИФИ, 2008. с. 102.
3. Иванов А.П., Матюхин Н.М., Портяной А.Г., Сердунь Е.Н., Сорокин А.П., Сорокин Г.А. Методы измерения и расчета теплофизических характеристик пористых структур: Препринт ФЭИ-2757. – Обнинск, 1999. – С. 32.
4. Анциферов В.Н., Храмцов В.Д., Питиримов О.М., Щурик А.Г. Свойства высокопористых металлов // Порошковая металлургия. – 1980. – №12. – С. 20–24.
5. Чиркин В.С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники. – М.: Атомиздат, 1968. – 484 с.
6. Скороход В.В. Теория физических свойств пористых и композиционных материалов и принципы управления их микроструктурой в технологических процессах. // Порошковая металлургия. – 1995. – №1/2. – С. 53–71.
7. Серегин А.С. Аннотация программы TRIGEX для малогруппового нейтронно-физического расчета реактора в трехмерной геометрии. // ВАНТ, Серия: Физика и техника ядерных реакторов, вып. 4(32), 1983 г.
8. Михеев М.А., Михеева И.М. Основы теплопередачи. – М.: Энергия, 1977. – С. 94.

Подписано к печати 27.09.2017 г. Формат 60×84 ¹/₁₆. Усл. п. л. 0,3. Уч.-изд. л. 0,5.
Тираж 35 экз. Заказ № 282.

Отпечатано в ОНТИ методом прямого репродуцирования с оригинала авторов.
249033, Обнинск Калужской обл., пл. Бондаренко, 1.
ГНЦ РФ – Физико-энергетический институт имени А.И. Лейпунского.