
**ЭКСПЛУАТАЦИЯ ОБЪЕКТОВ
АТОМНОЙ ОТРАСЛИ**

УДК 621.039.5

**ЖИДКОСОЛЕВЫЕ РЕАКТОРЫ С ТЕПЛОВОМ И БЫСТРЫМ
СПЕКТРОМ ДЛЯ ТРАНСМУТАЦИИ МИНОРНЫХ АКТИНИДОВ****О. Ашраф^{*,**}, Г. В. Тихомиров^{*}**

^{} Институт ядерной физики и технологий – Национальный исследовательский ядерный университет МИФИ, Москва, Россия*

*^{**} Кафедра физики, Факультет педагогического образования, университет Айн-Шамс, Каир, Египет*

Долгоживущие минорные актиниды (МА) ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{243}Cm , ^{244}Cm и ^{245}Cm ответственны за эффективную дозу и выделение тепла после непосредственного захоронения в глубоких геологических формациях. Таким образом, долгоживущие МА представляют собой основное бремя ядерной энергетики. Долгоживущие МА еще не использовались в качестве ядерного топлива. Следовательно, трансмутация этих МА предлагается в качестве альтернативы прямому окончательному захоронению. В данной работе мы анализируем и сравниваем эффективность трансмутации МА в критическом однофазном двухзонном ториевом реакторе (Single-fluid Double-zone Thorium-based Molten Salt Reactor – SD-TMSR) и маломощном жидкосолевым реакторе с быстрым спектром (Small Molten Salt Fast Reactor – SMSFR). Мы изучаем изменение $K_{\text{эфф}}$ и реактивности активной зоны с различными нагрузками МА, сдвигом спектра нейтронов, эволюцией во времени МА и запасов основных нуклидов, а также коэффициентом трансмутации (КТ). КТ долгоживущих МА рассчитывается с использованием кода Монте-Карло SERPENT-2. Полный поток нейтронов в SD-TMSR и SMSFR может достигать $4,1 \times 10^{14}$ и $1,8 \times 10^{15}$ н/см²с, соответственно. Результаты показывают, что SD-TMSR потребляет около 50% генерируемых изотопов Pu в топливной соли, однако, SMSFR потребляет около 86,5% генерируемых изотопов Pu. Во время выгорания мы применяем непрерывную переработку топливной композиции, поэтому активная зона остается критической, а общая масса топлива в активной зоне и в бланкете практически постоянна. Результаты показывают, что оба реактора эффективно трансмутируют ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am и ^{243}Cm , в то время как SMSFR имеет более высокий КТ, чем SD-TMSR. КТ общих МА достигает 54,84% и 87,97% в SD-TMSR и SMSFR, соответственно.

Ключевые слова: жидкосольевой реактор, трансмутация, непрерывная переработка, минорные актиниды, SERPENT, код Монте-Карло, SD-TMSR, коэффициентом трансмутации.

Поступила в редакцию 24.08.2020

После доработки 13.10.2020

Принята к печати 16.10.2020

Введение

Трансурановые элементы (ТРУ) накапливаются во время работы ядерных реакторов в ядерном топливе. Среди ТРУ долгоживущие минорные актиниды (МА) нептуний, америций и кюрий отвечают за эффективную дозу и выделение тепла после непосредственного захоронения в глубоких геологических формациях [1]. Поэтому долгоживущие МА представляют собой основное бремя ядерной энергетики. Отделенный от ТРУ плутоний может использоваться с ураном в качестве МОКС-топлива в энергетических реакторах [2]. Однако добавление МА в МОКС-топливо может повлиять на характеристики активной зоны в аварийных условиях. Долгоживущие МА еще не использовались в качестве ядерного топлива. Поэтому трансмутация этих МА предлагается в качестве альтернативы прямому захоронению. Трансмутация уменьшает количество долгоживущих МА, превращая их в

короткоживущие продукты деления (ПД) и/или в некоторые полезные ТРУ. Следовательно, трансмутация уменьшает объем, тепловыделение и радиотоксичность высокоактивных отходов при длительном хранении.

В ранее опубликованных работах исследовалась трансмутация МА в различных типах ядерных реакторов, включая как тепловые, так и быстрые реакторы. Сечения долгоживущих МА в области тепловых нейтронов значительно выше, чем в области быстрых нейтронов. Кроме того, ^{237}Np , ^{241}Am и ^{243}Am имеют очень высокие сечения захвата нейтронов в тепловой области. Таким образом, эти долгоживущие МА могут захватывать тепловые нейтроны и превращаться в ^{239}Pu , $^{242\text{m}}\text{Am}$, ^{243}Cm и ^{245}Cm , которые имеют очень высокие сечения деления. Следовательно, тепловые реакторы могут эффективно трансмутировать МА [3]. Реакторы на быстрых нейтронах имеют высокий поток нейтронов, большое отношение сечений к захвату и отрицательное потребление нейтронов. Таким образом, они признаны в качестве альтернативных систем для трансмутации МА [4]. Однако многие быстрые реакторы сталкиваются со многими проблемами, включая безопасность, экономичность и конструкционные материалы. Например, в жидкометаллических быстрых реакторах использование жидкометаллического теплоносителя (например, Na, Pb, Pb-Bi и т.д.) представляет проблему из-за сильной коррозии окружающей среды. В газоохлаждаемых быстрых реакторах, высокие температуры могут сократить срок службы материала. Для быстрых подкритических реакторов стабильная работа требует надежной ускорительной технологии.

Значительный интерес направлен на топливный цикл $\text{Th}/^{233}\text{U}$, поскольку Th порождает небольшое количество ТРУ [1]. Жидкосольевой реактор (ЖСР) предназначен для работы на основе топливного цикла $\text{Th}/^{233}\text{U}$. Международный Форум реакторов «Поколение IV» (Generation IV International Forum – GIF) выбрал ЖСР для дальнейшего изучения и исследования [5]. ЖСР имеет много преимуществ, которые согласуются с технологическими целями GIF, такими как: собственная безопасность, жидкое топливо, непрерывная переработка топливной композиции, отличная экономия нейтронов и работа при давлении, близком к окружающему, в первичном контуре. Уникальные характеристики систем ЖСР делают их очень перспективными для целей трансмутации. Одной из ключевых особенностей ЖСР является жидкое топливо, то есть нет необходимости изготавливать топливные элементы, содержащие актиниды высокого уровня. Более того, в системах ЖСР применяются технологии непрерывной переработки топливной композиции с возможностью добавления нуклидов в топливо и выведения их из него, что приводит к потреблению МА с высокой степенью выгорания и минимальной обработкой.

Основная цель настоящей работы заключается в анализе и сравнении характеристик трансмутации МА в критическом однофазном двухзонном ториевом реакторе (Single-fluid Double-zone Thorium-based Molten Salt Reactor – SD-TMSR) и маломощном жидкосольевом реакторе с быстрым спектром (Small Molten Salt Fast Reactor – SMSFR). Мы изучаем изменение $K_{\text{эфф}}$ и реактивности активной зоны с различными нагрузками МА, сдвигом спектра нейтронов, эволюцией во времени МА и запасов основных нуклидов, а также коэффициентом трансмутации (КТ).

SD-TMSR представляет собой ЖСР с тепловым спектром и графитом в качестве замедлителя, работающий в топливном цикле $\text{Th}/^{233}\text{U}$. Напротив, SMSFR – это ЖСР быстрого спектра без замедлителя, который имеет конфигурацию активной зоны, аналогичную MSFR, но с меньшим объемом активной зоны. SMSFR также предназначен для работы на основе топливного цикла $\text{Th}/^{233}\text{U}$.

Мы используем SERPENT-2 [6] для выполнения всех расчетов, представленных в этой статье. Мы применяем процедуру выгорания ЖСР, включенную в SERPENT-2, для моделирования непрерывной переработки топливной композиции.

Описание моделей SD-TMSR и SMSFR

Геометрия SD-TMSR и состав топлива

В 2018 г. академия наук Китая представила проект SD-TMSR [7]. Структура активной зоны SD-TMSR основана на жидкосолевом реакторе-размножителе (Molten Salt Breeder Reactor – MSBR) [8] и TMSR [9]. На рисунке 1 показана общая конфигурация SD-TMSR.

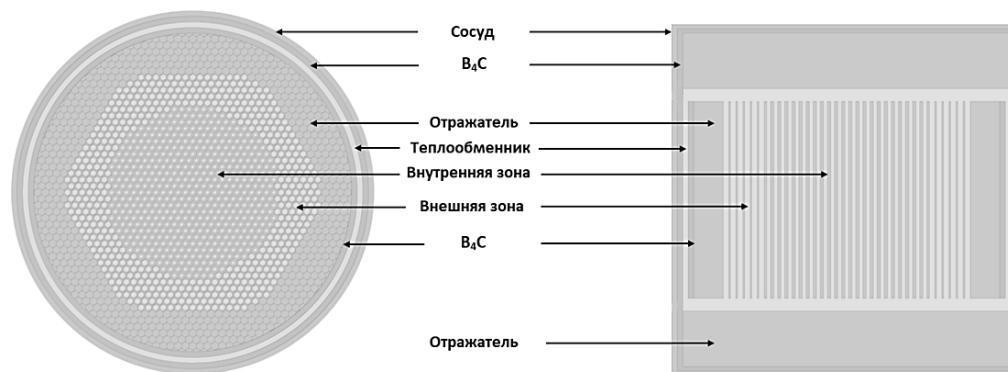


Рисунок 1 – модель SD-TMSR [SD-TMSR model]

Активная зона SD-TMSR представляет собой правый цилиндр (с диаметром и высотой, равным 460 см), разделенный на внешнюю зону (522 топливных трубки) и внутреннюю зону (486 топливных трубок) для повышения коэффициента воспроизводства. Графитовые шестиугольные призмы с длиной стороны 7,5 см заполняют активную зону. Жидкое топливо непрерывно циркулирует через топливные каналы, которые пронизывают гексагональные призмы графита. Как радиальные, так и осевые отражатели окружают активную зону, чтобы уменьшить утечку нейтронов. Толщина радиального отражателя составляет 50 см, а высота осевого отражателя составляет 130 см. Цилиндр B_4C толщиной 10 см окружает отражатели для экранирования. Внешний сосуд SD-TMSR представляет собой сплав на основе никеля толщиной 10 см (Hastelloy N), в котором находятся графитовые элементы, топливная соль, отражатель, цилиндр B_4C и промежуточный теплообменник. Основные характеристики SD-TMSR приведены в таблице 1.

Таблица 1 – Основные характеристики SD-TMSR [11] и SMSFR [12] [Main characteristics of SD-TMSR and SMSFR]

Параметры	SD-TMSR	SMSFR
Тепловая мощность (МВт)	2250	500
Состав топлива (моль %)	$70LiF-17,5BeF_2-12,5HMF_4$	$77,5LiF-22,5(HM)F_N$
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))	$-6,7 \times 10^{-4}$	$-8,82 \times 10^{-4}$
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

Состав топливной соли представляет собой $\text{LiF-BeF}_2\text{-(HM)F}_N$ (70-17,5-12,5 мол.%), где HM – тяжелый металл (т.е. ^{232}Th , ^{233}U и долгоживущие МА), и N зависит от выбранного тяжелого металла и термохимическое состояние соли жидкого топлива. Состав долгоживущих МА взят из состава отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) коммерческого реактора с водой под давлением (Pressurized Water Reactor – PWR) со средним выгоранием разряда 33 ГВт-сут./тU и после 3 лет охлаждения. Весовые доли долгоживущих МА (мас.%) приведены в таблице 2 [10]. Объем и плотность топливной соли составляют 52,9 м³ и 3,3 г/см³, соответственно.

Таблица 2 – Весовые доли долгоживущих МА (мас.%) [Weight fractions of long-lived MA]

^{237}Np	^{241}Am	^{243}Am	^{243}Cm	^{244}Cm	^{245}Cm
56,2	26,4	12	0,03	5,11	0,26

Геометрия SMSFR и состав топлива

На рисунке 2 показана общая конфигурация SMSFR. Активная зона SMSFR представляет собой правый цилиндр (диаметр и высота которого равен 124 см), заполненный топливной солью.

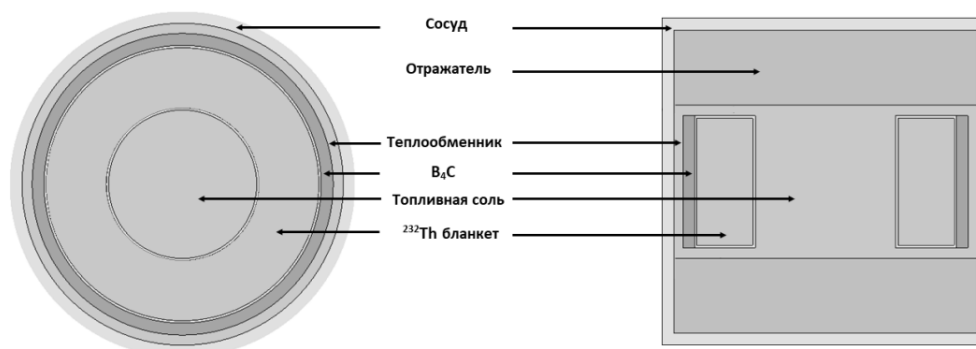


Рисунок 2 – Модель SMSFR [SMSFR model]

Радиальный бланкет толщиной 50 см, заполненный ^{232}Th , окружает активную зону, чтобы улучшить коэффициент воспроизводства. Ториевой бланкет окружен цилиндром B_4C толщиной 10 см для экранирования. Осовой отражатель высотой 60 см окружает активную зону, чтобы уменьшить утечку нейтронов. Наконец, сосуд толщиной 10 см вмещает все компоненты SMSFR. Отражатель и сосуд изготовлены из Hastelloy N. Основные характеристики SMSFR обобщены в таблице 1. Состав топливной соли LiF-(HM)F_N (77,5-22,5% мол.). HM – это ^{232}Th , ^{233}U и долгоживущие МА. Весовые доли долгоживущих МА (мас.%) приведены в таблице 2. Объем и плотность топливной соли составляют 3 м³ и 4,1 г/см³ соответственно.

Методология и инструменты

В данной работе SERPENT-2 моделирует 3D-модель реактора SD-TMSR и SMSFR с различными начальными массовыми нагрузками. Для всех расчетов в настоящей работе мы использовали библиотеку сечений ENDF/B-VII. Результаты расчётов соответствуют работе реактора и были получены при моделировании 25000 нейтронов за цикл, 50 неактивных и 500 активных циклов (т.е. $12,5 \times 10^6$ активных нейтронных траекторий за цикл). Каждый шаг пропускал 50 неактивных циклов перед началом активных подсчетов, чтобы обеспечить сходимость распределения источников деления. Сходимость проверена по энтропии источника деления. Время полного выгорания SD-TMSR и SMSFR составляло 40 лет со статистической погрешностью в $K_{\text{эфф}} \pm 36$ рсм. В данной работе мы анализируем конечную область. Процедура выгорания MSR, предоставленная кодом SERPENT-2, моделирует непрерывную

переработку топливной композиции. Процедура MSR более подробно описана в наших предыдущих работах [11, 13]. На этапе выгорания активная зона поддерживалась критическим ($K_{эф} \approx 1,003$), а общая масса топлива в активной зоне и в бланкете была почти постоянной ($dm = 0,1\%$). Дрейф запаздывающих нейтронов в данной работе не рассматривается.

Рисунок 3 демонстрирует блок-схему этапов расчета. Код SERPENT решает уравнение Бейтмена с помощью расширенного матричного экспоненциального решения на основе метода рационального приближения Чебышева. Затем система извлекает газообразные продукты деления (ПД) и нерастворенные металлы в течение 30 с помощью системы барботирования газа. Другие ПД (лантаноиды и растворимые металлы) и Ра удаляются путем химической переработки с соответствующей скоростью удаления.

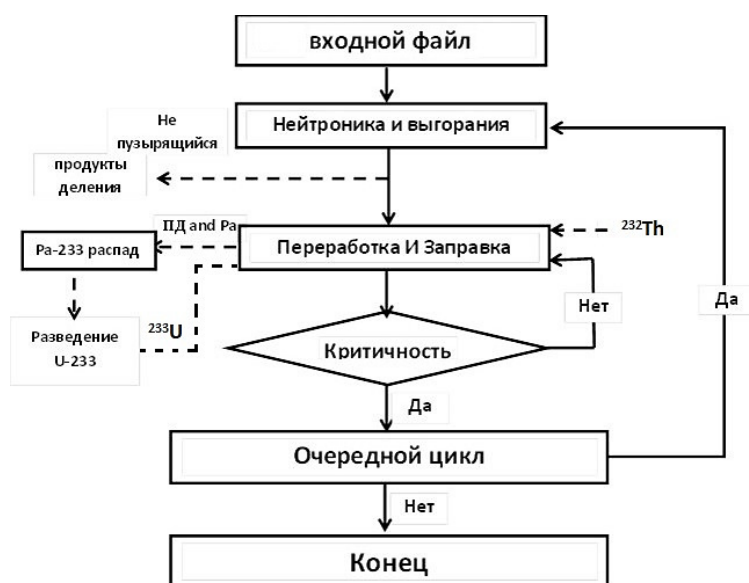


Рисунок 3 – Блок-схема процедур расчета [Flow chart of calculation procedures]

Извлечение ПД может быть смоделировано путем установки массового расхода этих элементов из активной зоны в ПД-бак. Ра извлекается из активной зоны с подходящей скоростью потока в Ра-бак для распада ($\tau_{1/2} = 27$ сут.) и получения ^{233}U . ^{233}U перенаправляется в активную зону в качестве свежего делящегося материала, а остальное составляет чистая выработка ^{233}U . Перегрузка ^{232}Th из внешнего запаса и ^{233}U из Ра-бака поддерживает критичность активной зоны во время выгорания.

Пусть ЖСР извлекает dN_e количество конкретного элемента e в течение времени dt , таким образом [9], формула (1):

$$dN_e = N_e \frac{dt}{T_r} \varepsilon_e, \quad (1)$$

где, T_r – это время, в течение которого вся соль подвергается повторной переработке; ε_e – эффективность извлечения.

Интегрируя уравнение 1, получим новый параметр, который называется константой удаления $\lambda_e = \frac{\varepsilon_e}{T_r}$. Для простоты, будем считать ε_e равным 100%, поэтому λ_e обратно пропорциональна T_r . Параметры переработки для SD-TMSR и SMSFR точно рассчитаны и обобщены в таблице 3. Для SD-TMSR мы приняли 10,59 сут. ($\lambda_e = -1.09 \times 10^{-6} \text{ c}^{-1}$) в качестве времени обработки для растворимых ПД и Ра [9]. Однако для SMSFR время обработки было установлено равным 180 сут. ($\lambda_e = -6.43 \times 10^{-8} \text{ c}^{-1}$) [12].

Таблица 3 – Таблица обработки для SD-TMSR и SMSFR [Processing table for SD-TMSR and SMSFR]

Перерабатывающая группа	Элементы	Время обработки		константа удаления λ_r [s ⁻¹]	
		SD-TMSR	SMSFR	SD-TMSR	SMSFR
ПД и нерастворенные металлы	H, He, N, O, Ne, Ar, Kr, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Sb, Te, Xe, Lu, Hf, Ta, W, Re, Os, Ir, Pt, Au, and Rn.	30 с	30 с	-3.33E-02	-3.33E-02
Извлечение лантаноидов и других растворимых ПД путем химической переработки	Zn, Ga, Ge, As, Se, Br, Rb, Sr, Y, Zr, Cd, In, Sn, I, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, and Yb.	10.59 сут.	180 сут.	-1.09E-06	-6.43E-08
Извлечение Pa путем химической переработки	Pa	10.59 сут.	180 сут.	-1.09E-06	-6.43E-08

Результаты и выводы

Нагрузка МА

Концентрация тяжелого металла (НМ) в исходной топливной соли составляет 12,5 и 22,5 мол.% для SD-TMSR и SMSFR соответственно (см. табл. 1). НМ состоит из ²³²Th, ²³³U и долгоживущих МА. Концентрация ²³³U в топливной соли поддерживается постоянной и равной 0,6 и 5,2 мол.% для SD-TMSR и SMSFR соответственно, чтобы получить максимально допустимую избыточную реактивность при загрузке МА = 0 т (без загрузок МА). Затем загрузка МА увеличивается с 0 до 5,82 т за счет инвентаря ²³²Th. Рисунок 4 иллюстрирует изменение $K_{эфф}$ с нагрузками МА при фиксированной концентрации ²³³U.

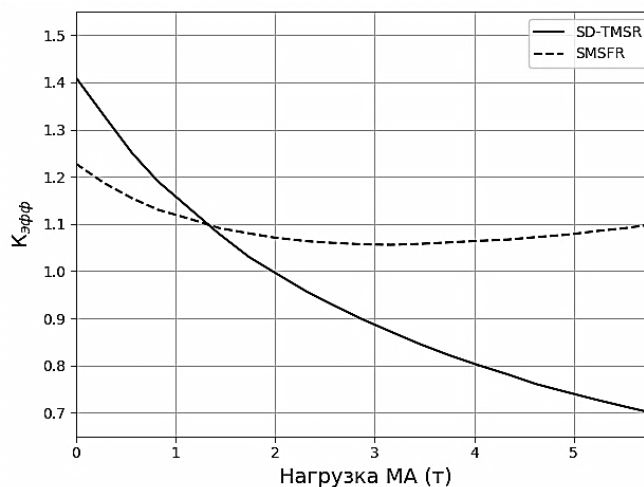


Рисунок 4 – Изменение эффективного коэффициента размножения с нагрузками МА при фиксированной концентрации ²³³U для SD-TMSR и SMSFR (статистическая погрешность в $K_{эфф} \approx 36$ pcm), моделирование без выгорания [Change in effective multiplication factor with MA loads at a fixed concentration of ²³³U for SD-TMSR and SMSFR (statistical error in $K_{эфф} \approx 36$ pcm), simulation without burnout]

Для SD-TMSR $K_{эфф}$ уменьшается с увеличением загрузок МА и достигает $\approx 0,69$ при максимальной загрузке МА (то есть 5,82 т). Однако, для SMSFR $K_{эфф}$ уменьшается до минимального значения при загрузке МА 3,15 т, затем снова увеличивается и достигает 1,1 при максимальной загрузке МА. Долгоживущие МА имеют большое количество поглотителей тепловых нейтронов, поэтому $K_{эфф}$ уменьшается с увеличением нагрузок МА. Кроме того, увеличение загрузки МА приводит к жесткости нейтронного спектра, как показано на рисунках 5 и 6. Следовательно, повышение загрузки МА уменьшает среднее микроскопическое сечение ²³³U, что приводит к

уменьшению $K_{эфф}$, как это видно для SD-TMSR и SMSFR (см. рис. 4). Кроме того, жесткость нейтронного спектра (в результате увеличения загрузки МА) увеличивает среднее макроскопическое сечение деления самих МА, что приводит к увеличению $K_{эфф}$. Для SMSFR этот эффект становится значительным при высоких нагрузках МА. Увеличение $K_{эфф}$ от МА превышает уменьшение $K_{эфф}$ от ^{233}U , и $K_{эфф}$ снова увеличивается при высоких нагрузках МА (3,15 т, см. рис. 4). Этот результат согласуется с ранее опубликованным результатом [12] для аналогичного SMSFR и рассчитывается по SCALE и MCNP. На рисунках 5 и 6 показан нормализованный спектр нейтронного потока для SD-TMSR и SMSFR с различными нагрузками МА (от 0 до 5,82 т). Увеличение МА нагрузок ужесточает нейтронный спектр в обоих реакторах. Для SD-TMSR (рис. 5) жесткость нейтронного спектра, возникающая в результате увеличения инвентарной загрузки МА, обусловлена более близкой энергией поглощения резонансного захвата МА к пику тепловой энергии по сравнению с ^{232}Th , что приводит к поглощению большего количества тепловых нейтронов. Для SMSFR (рис. 6) увеличение нагрузки МА приводит к поглощению большего количества нейтронов в области резонансного захвата. Следовательно, нейтронный спектр ужесточает с увеличением МА нагрузок, как показано на рисунке 6.

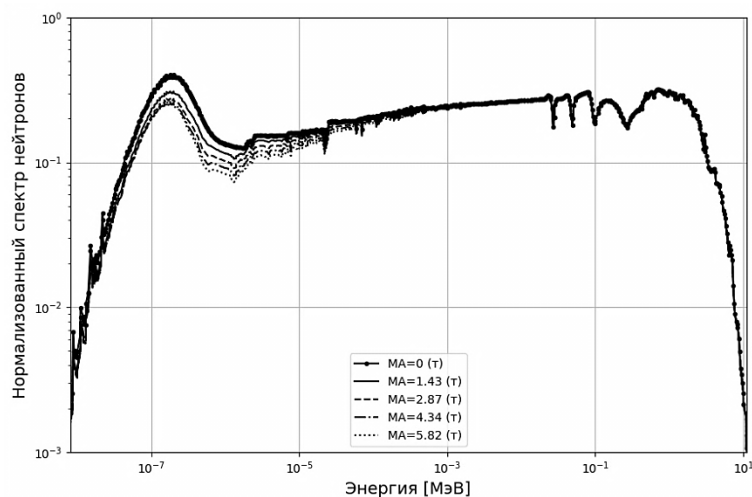


Рисунок 5 – Энергетический спектр нейтронного потока при различных нагрузках МА для SD-TMSR (моделирование без выгорания) [Energy spectrum of neutron flux at various MA loads for SD-TMSR (non-burnup simulation)]

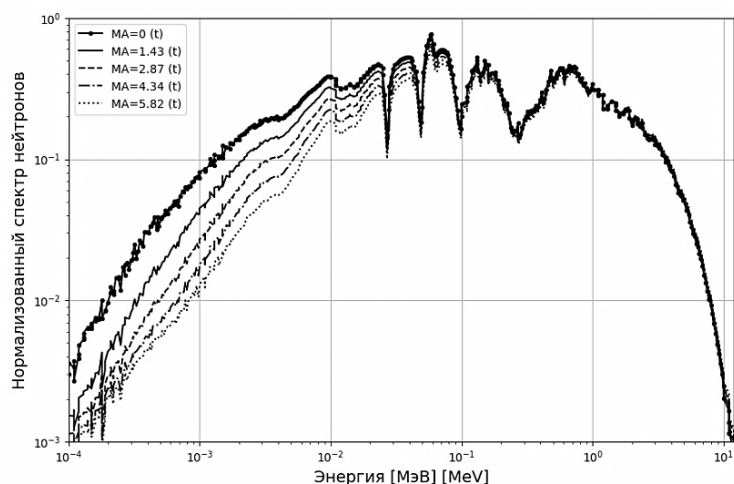


Рисунок 6 – Энергетический спектр нейтронного потока при различных нагрузках МА для SMSFR (моделирование без выгорания) [Energy spectrum of neutron flux at various MA loads for SMSFR (simulated without burnup)]

Начальный запас ^{233}U , необходимый для критичности ($K_{\text{эфф}} \approx 1.003$) как функция нагрузок МА для SD-TMSR и SMSFR, представлен на рисунке 7. Для SD-TMSR начальный запас ^{233}U возрастает линейно с нагрузками МА и достигает около 7,79 т для максимальной нагрузки МА. Однако, для SMSFR начальный запас ^{233}U возрастает до максимального значения при загрузке МА = 3,15 т, затем он снова уменьшается и достигает около 1,38 т для максимальной загрузки МА. Начальный запас ^{233}U , необходимый для критичности, коррелирует с изменением $K_{\text{эфф}}$, записанным на рисунке 4.

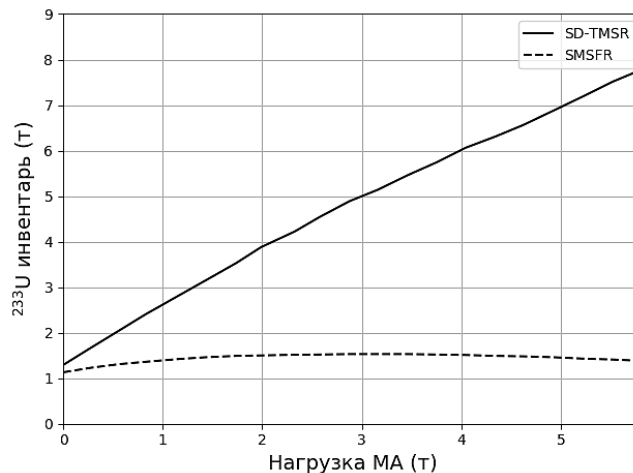


Рисунок 7 – Начальный инвентарь ^{233}U , необходимая для критичности ($K_{\text{эфф}} \approx 1.003$), как функция нагрузок МА для SD-TMSR и SMSFR (моделирование без выгорания) [Initial inventory of ^{233}U required for criticality ($K_{\text{эфф}} \approx 1.003$) as a function of MA loads for SD-TMSR and SMSFR (simulation without burnup)]

На рисунке 8 показано изменение $K_{\text{эфф}}$ во время выгорания при различных нагрузках МА для SD-TMSR и SMSFR соответственно.

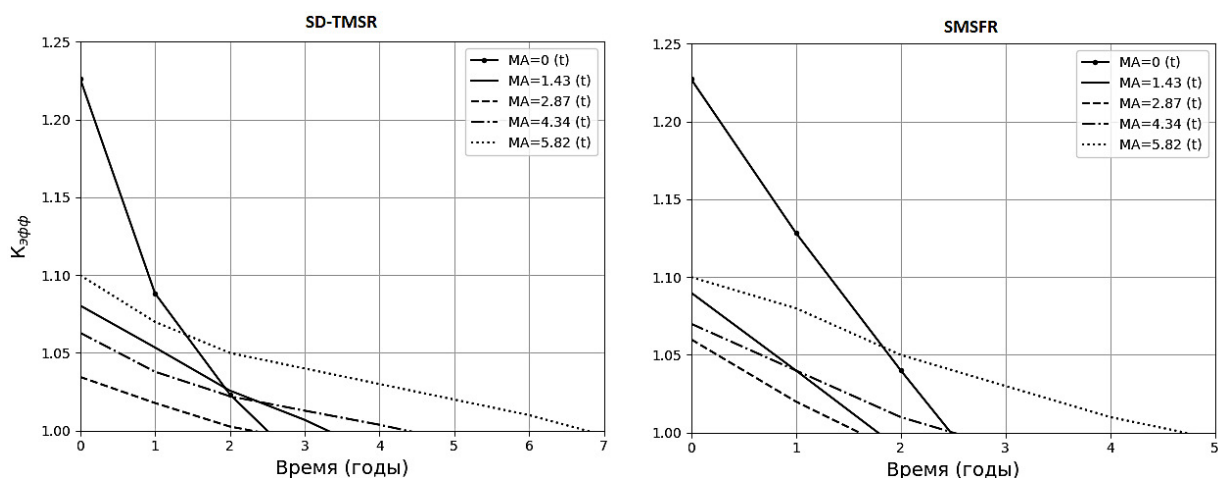


Рисунок 8 – Изменение эффективного коэффициента размножения во время выгорания при различных нагрузках МА для SD-TMSR и SMSFR (статистическая погрешность в $K_{\text{эфф}} \approx 36$ pcm, моделирование без непрерывной переработки топливной композиции) [Change in effective multiplication factor during burnup under different MA loads for SD-TMSR and SMSFR (statistical error in $K_{\text{эфф}} \approx 36$ pcm, simulation without online processing and refueling)]

$K_{\text{эфф}}$ уменьшается в результате выгорания исходных делящихся материалов и производства ядовитых продуктов деления (непрерывная переработка не применяются). Количество ^{233}U , генерируемого из ^{232}Th в SD-TMSR и SMSFR, недостаточно для поддержания критичности и противодействия паразитному поглощению нейтронов. Таким образом, оба реактора относительно быстро становятся подкритическими для разных нагрузок МА. При максимальной загрузке МА

(МА = 5,82 т) оба реактора становятся подкритическими при значительно более позднем времени работы, чем при других нагрузках МА, поскольку спектр нейтронов при высоких нагрузках МА ужесточает; больше ^{232}Th преобразуется в ^{233}U . Кроме того, при относительно высоких нагрузках МА положительная реактивность от делящихся МА (например, ^{239}Pu , ^{238}Np , ^{242}Am и ^{244}Am) снижает начальные потери реактивности (из-за выгорания исходных делящихся материалов). Следовательно, более высокие нагрузки МА поддерживают углубление выгорания и улучшают возможности трансмутации МА, как показано на рисунке 8.

Трансмутация МА

При загрузке МА = 5,82 т (см. рис. 8), можно получить относительно большое время работы как для SD-TMSR, так и для SMSFR. Кроме того, соответствующая начальная избыточная реактивность является относительно низкой и может быть компенсирована применением непрерывной переработки топливной композиции. Как длительное время работы, так и низкая начальная избыточная реактивность необходимы для углубления выгорания и контроля ЖСР.

Долгоживущие МА могут быть трансмутированы двумя различными способами в активной зоне реактора. Первый способ заключается в поглощении нейтронов, а затем в процессе деления с образованием короткоживущих ПД или стабильных нуклидов. Второй способ – захват нейтронов и превращение их в новые высокорadioактивные изотопы ТРУ. Цель трансмутации достигается после того, как долгоживущие радиоактивные МА становятся стабильными нуклидами, короткоживущими ПД или полезными радиоактивными изотопами (т.е. имеют практическое применение). Целью настоящего исследования является вычисление и сравнение коэффициента трансмутации как в SD-TMSFR, так и в SMSFR. В критических условиях наши расчеты показывают, что полный нейтронный поток в SD-TMSR и SMSFR может достигать $4,1 \times 10^{14}$ и $1,8 \times 10^{15}$ н/см²с соответственно.

Для анализа возможности трансмутации МА мы приняли два случая: МА = 0 т и МА = 5,82 т, что соответствует минимальной и максимальной нагрузкам МА. Во время выгорания мы применили непрерывную-схему переработки топливной композиции, описанную в разделе методологии и инструментов. Мы непрерывно извлекали ^{233}Pa и удаляли ПД из топливной соли и добавляли ^{232}Th и ^{233}U .

На рисунках 9 и 10 показана эволюция запасов важных нуклидов при нагрузке Ма = 0 т (сплошная линия) и нагрузке Ма = 5,82 т (пунктирная линия) для SD-TMSR и SMSFR соответственно.

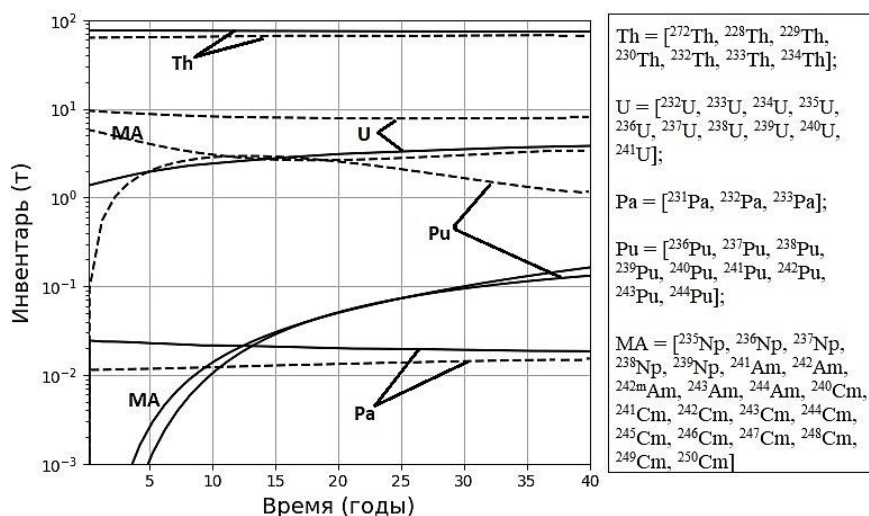


Рисунок 9 – Эволюция важных нуклидов и запасов МА при МА = 0 т (сплошная линия) и МА = 5,82 т (пунктирная линия) для SD-TMSR при непрерывной переработке (10,59 сут.) (МА включает Np, Am, Cm)
[Evolution of important nuclides and MA stocks at MA = 0 t (solid line) and MA = 5.82 t (dashed line) for SD-TMSR during online processing (10.59 days) (MA includes Np, Am, Cm)]

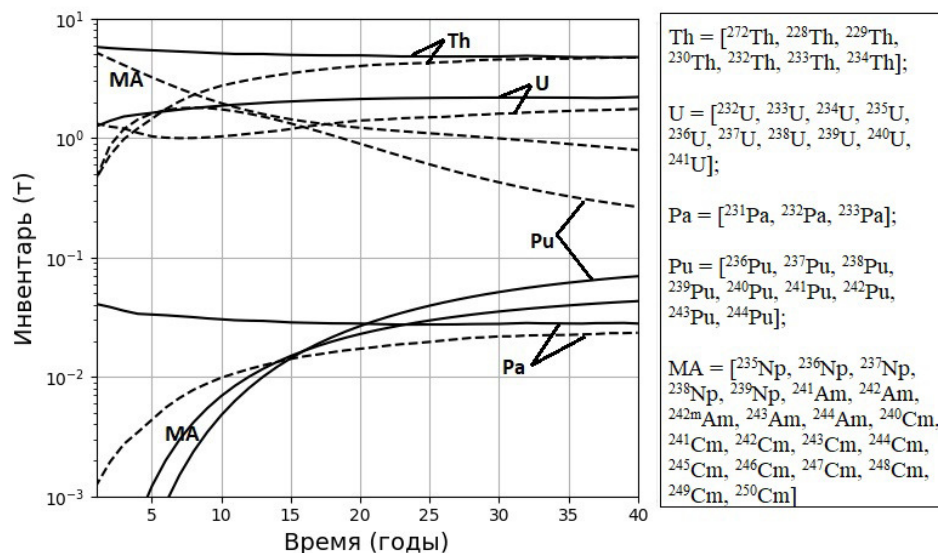


Рисунок 10 – Эволюция важных нуклидов и запасов МА при МА = 0 т (сплошная линия) и МА = 5,82 т (пунктирная линия) для SMSFR при непрерывной переработке (180 сут.) (МА включает Np, Am, Cm)
[Evolution of important nuclides and MA stocks at MA = 0 t (solid line) and MA = 5.82 t (dashed line) for SMSFR during online processing (180 days) (MA includes Np, Am, Cm)]

Для SD-TMSR при МА = 0 т (сплошная линия) масса протактиния в топливной соли уменьшается незначительно и достигает 18,3 кг в конце рабочего времени. Кроме того, Th и U образуют относительно небольшие количества МА (Np, Am и Cm) и Pu во время выгорания. Масса МА и Pu увеличивается со временем выгорания. Уровень Pu в топливной соли коррелирует с массой МА; однако для достижения равновесия МА потребуется больше времени, чем для Pu. Запас U увеличивается во время работы и достигает равновесия через ≈ 20 лет. На рисунке 9 показано, что перегрузка активной зоны Th помогает поддерживать почти постоянный запас тяжелых материалов в течение всего времени эксплуатации. При загрузке МА = 5,82 т (пунктирная линия) запасы Th и Pa незначительно увеличиваются во время работы. Запасы Th и Pa достигают около 67,9 т и 15,9 кг в конце рабочего времени. Масса Pu увеличивается в течение первых 15 лет эксплуатации (из-за захвата нейтронов в Np и Am), а затем уменьшается и достигает примерно 1 т в конце рабочего времени. Около 50% образующихся изотопов Pu в топливе потребляется за последние 25 лет эксплуатации. Это указывает на то, что мы можем сжигать изотопы Pu, которые генерируются во время трансмутации МА SD-TMSR. Запас U немного уменьшается со временем и достигает 7,5 т в конце рабочего времени. Запас МА уменьшается до минимального значения через 20 лет эксплуатации, затем он снова увеличивается и достигает 3,3 т в конце рабочего времени.

На рисунке 11 показано изменение во времени общего запаса МА, Np, Am и Cm за 40 лет выгорания для SD-TMSR и SMSFR, когда общая начальная загрузка МА = 5,82 т. Как показано на рис. 11, для SD-TMSR уменьшение запасов МА в течение первых 20 лет эксплуатации из-за трансмутации изотопов Np и Am. Увеличение запаса МА после 20 лет эксплуатации происходит главным образом из-за накопления изотопов Cm (в основном ^{244}Cm и ^{245}Cm) в результате последовательностей захвата нейтронов и бета-распада в изотопах Am и Pu. Изотопы с нечетной массой Cm могут использоваться в тепловых реакторах благодаря их относительно высокому сечению деления в области тепловой энергии. Однако их небольшие доли запаздывающих нейтронов могут повлиять на управление тепловым реактором.

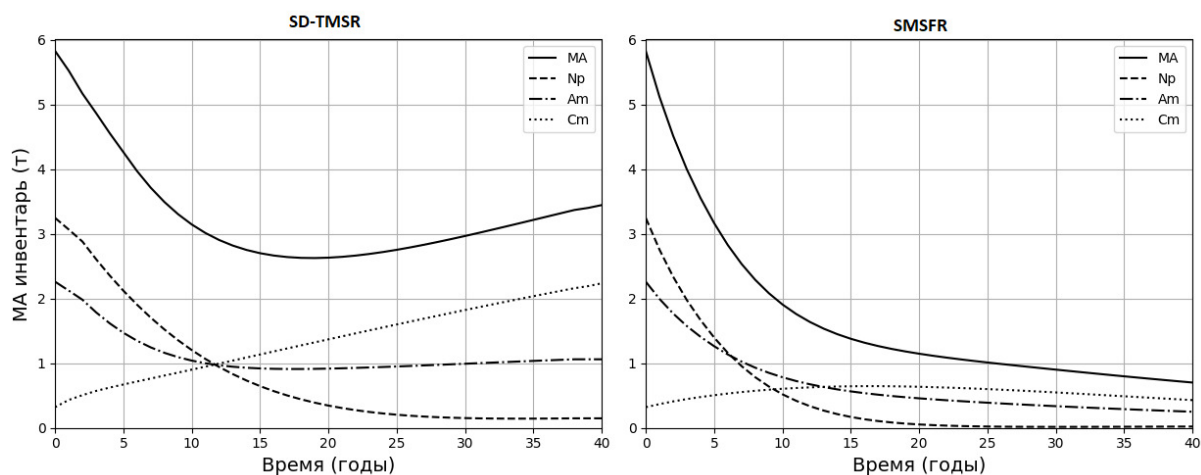


Рисунок 11 – Эволюция общего запаса МА, Np, Am и Cm за 40 лет выгорания для SD-TMSR и SMSFR (общий начальный МА = 5,82 т) [Evolution of total stock of MA, Np, Am and Cm over 40 years of burnup for SD-TMSR and SMSFR (total initial MA = 5.82 t)]

Для SMSFR (см. рис. 10) при загрузке МА = 0 т (сплошная линия) запасы Pa, MA, Pu, U и Th изменяются так же, как в SD-TMSR, но с меньшим количеством. Масса Pa, MA, Pu, U и Th достигает 29 кг, 43 кг, 72 кг, 2,2 т и 4,7 т, соответственно в конце рабочего времени. Инвентарь U достигает равновесия через 20 лет. При нагрузке МА = 5,82 т (пунктирная линия) запасы Th и Pa увеличиваются в процессе эксплуатации. Запасы Th и Pa достигают около 4,7 т и 23,3 кг в конце рабочего времени. Масса Pu увеличивается в течение первых 8 лет эксплуатации из-за захвата нейтронов в Np и Am, а затем уменьшается (по мере превращения большего количества МА) и достигает примерно 270 кг в конце времени работы.

Около 86,5% образующихся изотопов Pu в топливе потребляется за последние 30 лет эксплуатации. Это указывает на то, что SMSFR может эффективно сжигать изотопы Pu, которые генерируются во время трансмутации МА. Запас U уменьшается со временем эксплуатации, а затем увеличивается через 8 лет и достигает 1,76 т в конце срока эксплуатации. Запас U (в основном ^{233}U) сильно связан с реактивностью от МА и произведенного Pu. При максимальной загрузке МА (МА = 5,82 т) масса Pu увеличивается в течение первых 8 лет эксплуатации из-за захвата нейтронов в Np и Am, а затем уменьшается по мере превращения большего количества МА. Положительная реактивность от МА и его генерирующего Pu уменьшает начальные потери реактивности. Поэтому для поддержания критичности SMSFR требуется лишь небольшое количество подачи ^{233}U в течение первых 8 лет. Подача ^{233}U увеличивается в течение оставшихся 32 лет, чтобы противодействовать выгоранию Pu. Запас МА уменьшается со временем работы и достигает около 700 кг в конце времени работы.

Как показано на рисунке 11, для SMSFR – резкое уменьшение общего запаса МА из-за трансмутации изотопов Np и Am путем деления и захвата. SMSFR – это ЖСР с быстрым спектром, поэтому трансмутация МА может происходить напрямую из-за высокого потока нейтронов. Что касается трансмутации Cm, то после 18 лет эксплуатации потребление изотопов Cm (в основном ^{244}Cm и ^{245}Cm) больше, чем накопление его из изотопов Am и Pu. ^{244}Cm имеет период полураспада 18,1 года и может распадаться в двух режимах: спонтанное деление и α -режим. Таким образом, общий запас Cm уменьшается после 18 лет эксплуатации и достигает примерно 430 кг в конце рабочего времени, как показано на рисунке 11 для SMSFR.

Мы подсчитали коэффициент трансмутации (КТ) всех МА, ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{243}Cm , ^{244}Cm и ^{245}Cm для SD-TMSR и SMSFR во время выгорания. КТ (%) рассчитывается по следующей формуле (2) [12]:

$$КТ_{(t)} = \left(1 - \frac{M_{(t)}}{M_{(нв)}}\right) \times 100, \quad (2)$$

где, $КТ_{(t)}$ – коэффициент трансмутации МА (%) во время работы t ;

$M_{(t)}$ – инвентарь МА во время работы t ;

$M_{(нв)}$ – инвентарь МА в начале выгорания.

На рисунке 12 показан КТ (%) от общего МА, рассчитанного по формуле (2) за 40 лет выгорания для SD-TMSR и SMSFR. Для SD-TMSR КТ общей МА увеличивается в течение первых 20 лет эксплуатации и достигает 54,84%, затем он уменьшается в течение оставшихся 20 лет и составляет 40,96%. Снижение КТ после 20 лет эксплуатации связано с накоплением изотопов ^{244}Cm и ^{245}Cm (см. рис. 11). ^{244}Cm может распадаться в двух режимах: режим спонтанного деления для создания короткоживущих ПД и α -режим для производства ^{240}Pu . Затем ^{240}Pu захватывает нейтрон и производит ^{241}Pu с $\tau_{1/2} = 14$ лет. ^{245}Cm существует в МА с очень малой долей около 0,26%, в то время как он имеет относительно большой период полураспада (8500 лет). Кюрий является основным источником нейтронов и тепла от радиоактивного распада. Таким образом, для SD-TMSR начальные загрузки МА должны содержать мало или не содержать изотопа кюрия. Непрерывное извлечение изотопов Cm может повысить КТ в SD-TMSR; однако, требуется специальное хранилище, так как Cm эффективно способствует теплоте распада отходов. Выключение SD-TMSR после 20 лет эксплуатации является еще одним сценарием, позволяющим избежать нежелательного накопления изотопов Cm. За 20 лет работы SD-TMSR достигает максимального значения КТ и превращает около 3,2 т из 5,82 т МА в Pu, короткоживущие ПД и стабильные нуклиды.

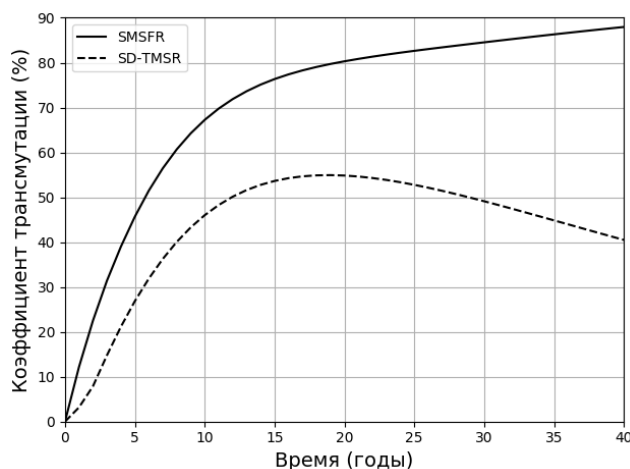


Рисунок 12 – Коэффициент трансмутации (%) в течение 40 лет выгорания для SD-TMSR и SMSFR, соответственно [Transmutation rate (%) over 40 years burnup for SD-TMSR and SMSFR, respectively]

Для SMSFR КТ увеличивается с выгоранием и достигает около 87,97% после 40 лет эксплуатации. Здесь относительно высокий коэффициент трансмутации обусловлен высоким нейтронным потоком в SMSFR по сравнению с SD-TMSR.

Верификация с другими кодами

Верификация нейтронного расчета SD-TMSR была дана в нашей опубликованной статье [11]. Полученные результаты были сопоставлены с Ли и др. [7]. Ли и его коллеги использовали собственный инструмент MSR-RS на основе SCALE 6.1 и применили его к SD-TMSR. Однако мы приняли процедуру выгорания ЖСР, включенную в SERPENT-2, для моделирования непрерывной оперативной переработки и дозагрузки одного и того же реактора (то есть SD-TMSR). Оба метода применяли один и тот же период переработки, а именно: извлечение газообразных ПД и нерастворенных

металлов за 30 с и удаление растворимых ПД и Ра в течение 10,59 сут. (то есть 5 м³/сут.). Кроме того, оба метода извлекали ²³³Ра из активной зоны и повторно вводили полученный ²³³U в активную зону для критичности как можно скорее. Существует хорошее согласие между характеристиками топлива и параметрами безопасности, полученными каждым методом (более подробно см. [11]). Для SMSFR результаты настоящей работы были сопоставлены с ранее опубликованными результатами [12] для аналогичного SMSFR и рассчитаны по SCALE и MCNP. Например, максимальное отклонение в начальном $K_{эфф}$ (при МА = 0 т) оказалось <1% [12].

Заключение

Коэффициент трансмутации долгоживущих МА, включая ²³⁷Np, ²⁴¹Am, ²⁴³Am, ²⁴³Cm, ²⁴⁴Cm и ²⁴⁵Cm, был рассчитан с использованием кода SERPENT-2 Monte-Carlo для 3D-модели SD-TMSR и SMSFR. Мы изучили влияние добавления долгоживущих МА на $K_{эфф}$, реактивность активной зоны и спектр нейтронов в SD-TMSR и SMSFR. При максимальной загрузке МА реакторы становятся подкритическими при значительно более позднем времени работы, чем при других нагрузках МА, поскольку спектр нейтронов при высоких нагрузках МА стал жестким. Высокие нагрузки МА поддерживают углубление выгорания и улучшают возможности трансмутации МА. Временная эволюция запасов важных нуклидов при МА = 0 т и 5,82 т была проанализирована для SD-TMSR и SMSFR соответственно. При МА = 0 т для обоих реакторов Th и U производят относительно небольшие количества МА (Np, Am и Cm) и Pu во время работы. При МА = 5,82 т для SD-TMSR около 50% образующихся изотопов Pu в топливе потребляется в течение последних 25 лет эксплуатации, в то время как SMSFR потребляет около 86,5% образующихся изотопов Pu в топливе за последние 25 лет. Таким образом, за 30 лет работы оба реактора могут эффективно сжигать превращенные изотопы Pu. Результаты показывают, что оба реактора эффективно трансмутируют ²³⁷Np, ²⁴¹Am, ²⁴³Am и ²⁴³Cm, в то время как SMSFR имеет более высокий коэффициент трансмутации, чем SD-TMSR. Для SD-TMSR максимальный коэффициент трансмутации для всех МА составляет 54,84% при t = 20 лет. Для SMSFR 40 лет эксплуатации приводят к относительно высокому коэффициенту трансмутации – 87,97%. Этот высокий коэффициент трансмутации обусловлен высоким нейтронным потоком в SMSFR по сравнению с SD-TMSR. На основании анализа SD-TMSR и SMSFR было установлено, что SMSFR лучше, чем SD-TMSR, в достижении цели трансмутации.

Работа финансировалась Программой конкурентоспособности МИФИ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ REFERENCES

- [1] Liu B., Jia R., Han R., Lyu X., Han J., Li W. Minor Actinide Transmutation Characteristics in AP1000 // *Annals of Nuclear Energy*. 2018. Vol. 115. P. 116-125.
- [2] Ramirez J.R., Enriquez P., Castillo R., Alonso G. MOX Fuel Use in a BWR with Extended Power Up-Rate // *Annals of Nuclear Energy*. 2012. Vol. 50. P. 63-70.
- [3] Liu, B., Hu, W., Wang, K., Huang, L., Ouyang, X., Tu, J., Zhu, Y. Transmutation of MA in the High Flux Thermal Reactor // *Journal of Nuclear Materials*. 2013. Vol. 437. P. 95-101.
- [4] Salvatores, M., Slessarev, I., Uematsu, M. A Global Physics Approach to Transmutation of Radioactive Nuclei // *Nuclear Science and Engineering*. 1994. Vol. 116. P. 1-18.
- [5] DoE, U.S. A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems. 2002. URL: http://gif.inel.gov/roadmap/pdfs/gen_iv_roadmap.pdf.
- [6] Leppänen, J., Pusa, M., Viitanen, T., Valtavirta, V., Kaltiaisenaho, T. The Serpent Monte Carlo code: Status, development and applications in 2013 // *Annals of Nuclear Energy*. 2014. Vol. 82. P. 142-150.
- [7] Li, G.C., Cong, P., Yu, C.G., Zou, Y., Sun, J.Y., Chen, J.G., Xu, H.J. Optimization of Th-U Fuel Breeding Based on a Single-Fluid Double-Zone Thorium Molten Salt Reactor // *Progress in Nuclear Energy*. 2018. Vol. 108. P. 144-151.

- [8] Robertson, R.C. CONCEPTUAL DESIGN STUDY OF A SINGLE-FLUID MOLTEN-SALT BREEDER REACTOR. (No. ORNL-4541). comp.; Oak Ridge National Lab., Tenn. 1971.
- [9] Nuttin, A., Heuer, D., Billebaud, A., Brissot, R., Le Brun, C., Liatard, E., Loiseaux, J.M., Mathieu, L., Meplan, O., Merle-Lucotte, E., Nifenecker, H. Potential of Thorium Molten Salt Reactors detailed Calculations and Concept Evolution with a View to Large Scale Energy Production // Progress in Nuclear Energy. 2005. Vol. 46. P. 77-99.
- [10] Mukaiyama, T., Yoshida, H., Ogawa, T. Minor Actinide Transmutation in Fission Reactors and Fuel Cycle Considerations. «Use of Fast Reactors for Actinide Transmutation. Proceedings of a Specialists Meeting held in Obninsk, Russian Federation, 22-24 September 1992». Vienna. 1993.
- [11] Ashraf, O., Rykhlevskii, A., Tikhomirov, G.V., Huff, K.D. Whole Core Analysis of the Single-Fluid Double-Zone Thorium Molten Salt Reactor (SD-TMSR) // Annals of Nuclear Energy. 2020. Vol. 137. P. 107115.
- [12] Yu, C., Li, X., Cai, X., Zou, C., Ma, Y., Han, J., Chen, J. Analysis of Minor Actinides Transmutation for a Molten Salt Fast Reactor // Annals of Nuclear Energy. 2015. Vol. 85. P. 597-604.
- [13] Ashraf, O., Rykhlevskii, A., Tikhomirov, G.V., Huff, K.D. Strategies for Thorium Fuel Cycle Transition in the SD-TMSR // Annals of Nuclear Energy. 2020. Vol. 148. P. 107656.

Molten Salt Reactors with Thermal and Fast Spectrum for Minor Actinides Transmutation

O. Ashraf^{*,**1}, G.V. Tikhomirov^{*2}

^{*} Institute of Nuclear Physics and Engineering – National Research Nuclear University MEPhI, Moscow, Russia

^{**} Department of Physics, Faculty of Education, Ain Shams University, Cairo, Egypt

¹ ORCID iD: 0000-0002-9442-102X

WoS Researcher ID: V-1340-2018

email: osama.ashraf@edu.asu.edu.eg

² ORCID iD: 0000-0002-5332-7272

WoS Researcher ID: B-7860-2013

email: gvtikhomirov@mephi.ru

Abstract – Long-lived minor actinides (MA) like, Neptunium, Americium, and Curium are the major burden of nuclear power. Long-lived MAs have not yet been burned as nuclear fuel. Therefore, the transmutation of long-lived MAs is introduced as an alternative to direct final disposal. In current work, we compare the performance of MA transmutation in a critical Single-fluid Double-zone Thorium-based Molten Salt Reactor (SD-TMSR) and a Small Molten Salt Fast Reactor (SMSFR). We study the dynamic of K_{eff} and core reactivity with different MA loads, shift of the neutron spectrum, time evolution of MA and basic nuclide inventory, as well as the transmutation coefficient (TC). The TC of long-lived MA is calculated using the Monte Carlo code SERPENT-2. The total neutron flux in SD-TMSR and SMSFR can reach 4.1×10^{14} and 1.8×10^{15} n/cm²s, respectively. The results show that SD-TMSR consumes about 50% of the generated Pu isotopes in the fuel salt, however, SMSFR consumes about 86.5% of the generated Pu isotopes. During burnup, we apply online reprocessing and refueling, so the core remains critical, and the total mass of fuel in the core and in the blanket is practically constant. The results show that both reactors efficiently transmute ²³⁷Np, ²⁴¹Am, ²⁴³Am and ²⁴³Cm, while SMSFR has a higher TC than SD-TMSR. TC of total MA reaches 54.84% and 87.97% in SD-TMSR and SMSFR, respectively.

Keywords: molten salt reactor, transmutation, on-line-reprocessing, minor actinides, SERPENT, code Monte-Carlo, transmutation coefficient.