УДК 621.039.54

БАЛАНС АКТИНОИДОВ В ТОРИЙ-ПЛУТОНИЕВОМ ЯДЕРНОМ ТОПЛИВНОМ ЦИКЛЕ НА БАЗЕ СЕРИЙНОГО ЛЕГКОВОДНОГО РЕАКТОРА

В.И. Бойко, И.В. Шаманин, Т.Л. Сафарян

Томский политехнический университет E-mail: shamanin@phtd.tpu.ru

Изложена методика построения оптимальной схемы перемещения ядерного топлива, позволяющей организовать сверхдлинную компанию энергетического реактора. Определен баланс актиноидов в торий-плутониевом топливном цикле, образованном 8-летними компаниями реактора BBЭP-1000 при режиме движения топлива от периферии к центру активной зоны при частичном перемешивании в азимутальном направлении. Определена оптимальная схема перестановок тепловыделяющих сборок, обеспечивающая рекордное значение выгорания ядерного горючего 94,4 гВт-сут/т при глубине выгорания²³⁹Pu до 93,3 %.

Введение

Ядерные реакторы на урановом топливе всего мира суммарной электрической мощностью около 400 ГВт к 2010 г. наработают свыше 300 тыс. т облученного топлива [1]. При отсутствии рециклирования оно будет содержать около 3 тыс. т плутония, что может привести к обострению проблемы ядерной безопасности и расширению распространения ядерного оружия. Решение этой проблемы возможно при создании замкнутого топливного цикла или при реализации длинных (сверхдлинных) кампаний ядерных реакторов. Замыкание ядерного топливного цикла минимизирует потребление природного урана, но требует уничтожения долгоживущих отходов путем трансмутации и включения в цикл быстрых реакторов с расширенным воспроизводством вторичного ядерного горючего [2]. Плутоний энергетической кондиции является вторичным топливом, постоянно присутствует в составе общего баланса масс актиноидов в некотором равновесном количестве. Реализация длинных и сверхдлинных кампаний базируется на использовании плутония и высокообогащенного урана в качестве "запальных" нуклидов. Наработка и параллельно протекающее выгорание вторичного ядерного горючего организованы так, что достигаются предельные значения выгораний "запальных" и вторичных делящихся нуклидов, а также длительности кампаний. Ядерный топливный цикл в данном случае является открытым. При этом решаются несколько задач: минимизация потребления природного ядерного сырья; минимизация количества оружейных ядерных материалов, находящихся в обороте; выжигание потенциально опасных радионуклидов без использования дополнительных технических средств и технологических приемов. По-существу, речь идет о приближении к реализации принципа радиационной эквивалентности: сколько радиоактивности извлечено из недр Земли, столько же отправлено в них на захоронение.

В данной работе анализируется баланс актиноидов в открытом торий-плутониевом ядерном топливном цикле на базе серийного легководного реактора под давлением ВВЭР-1000. Все конструктивные особенности реактора и тепловыделяющих сборок (TBC) полагаются неизменными. Плутоний оружейной кондиции является "запальным", торий – воспроизводящим материалом, а уран-233 – вторичным ядерным горючим. Моделирование медленной нуклидной кинетики проводится с использованием пакета прикладных программ V.S.O.P.(97) [3].

Выбор режима движения топлива

При выборе режима движения топлива в ходе численных экспериментов проводилось последовательно усложнение схемы перемещений тепловыделяющих сборок. Базовая схема перемещений в ходе одной частичной перегрузки обеспечивает режим "от периферии к центру" активной зоны. Активная зона при этом дробится на N кольцевых зон, площади поперечных сечений которых равны: $S_1=S_2=S_3=...=S_N$. Частичная перегрузка включает в себя следующие операции (рис. 1):

- выгрузка топлива из зоны I;
- перемещение топлива из зоны в зону:
 - II \rightarrow I
 - III \rightarrow II
 -
 - $N \rightarrow (N-1)$
- загрузка свежего топлива в зону N (на периферию).



Рис. 1. Базовая схема перемещений (*R* — радиальное направление)

Минимальное количество зон, позволяющее грубо моделировать параметры кампании реактора, составляет 3. Одной расчетной схеме перемещения топлива соответствуют несколько возможных схем перемещения ТВС. Увеличение количества зон сокращает количество соответствующих схем, увеличивая тем самым подобие расчетной и технологической схем, и позволяет моделировать режим "от периферии к центру при частичном возврате (перемешивании)". Рис. 2 иллюстрирует этот случай. Частичная перегрузка в данном случае включает в себя следующие операции:

выгрузка топлива из зон І и ІІІ;

перемещение топлива из зоны в зону:

 $-II \rightarrow III$ (возврат-перемешивание);

$$-IV \rightarrow I;$$

$$-V \rightarrow II;$$

- $-VI \rightarrow IV;$
- VII \rightarrow V:
- -VIII \rightarrow VI;
- загрузка свежего топлива в зоны VII и VIII (на периферию).

Операции при этом группируются:

выгрузка топлива из зоны І и ІІІ;

перемещение топлива в освобожденные зоны:

$$-II \rightarrow III$$
 (перемешивание); IV $\rightarrow I$;

$$-V \rightarrow II: VI \rightarrow IV:$$

$$-$$
 VII \rightarrow V; VIII \rightarrow VI

загрузка свежего топлива в зоны VII и VIII.



Рис. 2. Схема перемещений с учетом перемешивания

За исключением выгрузки и загрузки, операции образуют 4 группы, что соответствует количеству циклов выгорания в кампании. Каждая периферийная TBC (зоны VII и VIII) в течение кампании (4 цикла) 3 раза перемещается по активной зоне: загрузка \rightarrow перемещение 5(6) \rightarrow перемещение 3(4) \rightarrow перемещение 1(2) \rightarrow выгрузка (в скобках – для зоны VIII).

Оптимальное количество секторов должно не только обеспечивать высокое подобие расчетной и технологической схем, но и удовлетворять физическим требованиям. Увеличение количества циклов выгорания, т.е. количества перестановок в течение кампании, увеличивает длительность пребывания ТВС в активной зоне. Следовательно, возрастают эффективность топливоиспльзования, глубина выгорания "запальных" нуклидов и вторичного ядерного горючего. Но при этом возрастает флюенс повреждающих нейтронов. Количество циклов выгорания имеет объективный предел. Предварительные нейтронно-физические расчеты показали, что при организации сверхдлинной кампании (около 8 лет), включающей в себя 5 циклов выгорания (4 частичные перегрузки), флюенс повреждающих нейтронов в активной зоне ВВЭР-100 приближается к значению 10²² см⁻². Дальнейшая эксплуатация сборок, элементы которых выполнены из цирконий-ниобиевых сплавов, недопустима. Если кампания образована меньшим количеством циклов, то накопление вторичного ядерного горючего превалирует над его выгоранием. 6 циклов обеспечивают преимущественное выгорание, но требуют использования новых конструкционных материалов. Таким образом, выбрана схема перемещения топлива, приведенная на рис. 3.



Рис. 3. Схема перемещений с учетом перемешивания (*Z* — аксиальное направление)

Данная схема перемещения топлива позволяет моделировать режим движения "от периферии к центру при частичном перемешивании в азимутальном направлении". 4 частичные перегрузки и 5 циклов выгорания образуют кампанию. В каждой частичной перегрузке 30 сборок выгружаются, 90 сборок перемещаются и 30 "свежих" сборок загружаются на периферию активной зоны. Это соответствует тому, что в ходе каждой перегрузки производятся операции:

- удаление облученного топлива из зон I, III и V;
- перемещение топлива по маршруту:
- 1. $II \rightarrow I; IV \rightarrow III; VI \rightarrow V;$
- 2. $IX \rightarrow II; VIII \rightarrow IV; VII \rightarrow VI;$
- 3. XII \rightarrow IX; XI \rightarrow VIII; X \rightarrow VII;
- 4. $XV \rightarrow XII; XIV \rightarrow XI; XIII \rightarrow X;$
- подпитка "свежим" топливом в зоны XV, XIV и XIII.

Длительности циклов выгорания составляют 1288, 374, 463, 449 и 462 эфф. сут. для 1–5-ого циклов, соответственно. Длительность кампании составляет 8,3 года. Флюенс повреждающих нейтронов составляет: 5,39·10²¹ см⁻² – для сборок, выгружаемых из активной зоны после 1-ого цикла; 6,2·10²¹ см⁻² – после 2-ого; 6,83·10²¹ см⁻² – после 3-ого и 8,22·10²¹ см⁻² – после 4-ого до выхода на 5-ый – равновесный цикл. После 5-ого цикла флюенс достигает значения 9,18·10²¹ см⁻². В течение следующих кампаний все выгружаемые из активной зоны ТВС будут эксплуатироваться в течение 5 циклов и характеризоваться тем же предельным значением флюенса.

Перестановки тепловыделяющих сборок

Стартовая загрузка активной зоны (рис. 4) образована 3 типами ТВС: тип $1 - 90 \%^{232}$ Th $- 10 \%^{239}$ Pu (42+1(центральная) штуки); тип $2 - 92 \%^{232}$ Th $- 8 \%^{239}$ Pu (54 штуки); тип $3 - 94 \%^{232}$ Th $- 6 \%^{239}$ Pu (54 штуки). Представленность ТВС в различных радиальных зонах приведена в табл. 1.

Радиальная	Тип сборки			Радиальная	Тип сборки			
зона	1	2	3	зона	1 2		3	
I	9,71	23,30	66,99	VIII	-	52,94	47,06	
11	-	36,36	63,64	IX	-	17,65	82,35	
	1	23,53	76,47	Х	24,00	76,00	-	
IV	-	41,18	58,82	XI	30,00	70,00	-	
V	-	39,39	60,61	XII	73,00	27,00	-	
VI	-	15,15	84,85	XIII	94,00	6,00	-	
VII	-	43,75	56,25	XIV, XV	100,00	-	-	

Таблица 1. Представленность сборок по зонам, %



Рис. 4. Стартовая загрузка

В ходе частичной перегрузки производятся перестановки ТВС в направлении "от периферии к центру" активной зоны при частичном перемешивании в азимутальном направлении. На рис. 5 приведены маршруты перестановок сборок, которые производятся за 6 шагов.

На первом шаге из активной зоны выгружаются 30 ТВС типа 3, которые отработали первый цикл выгорания. На 2–5 шагах производится последовательная перестановка сборок в освобожденные на предыдущих шагах каналы. После пятого шага освобождаются 30 периферийных каналов, в которые загружаются свежие сборки типа 1.

Баланс актиноидов при движении топлива

В течение первой кампании, до выхода на равновесный (5-ый) цикл выгорания, из активной зоны выгружаются сборки, топливо которых облучалось один (1-ый) цикл, два (1+2-ой) цикла, три (1+2+3-ий) цикла и 4 цикла. Топливо сборок, выгружаемых после 5-ого цикла, имеет равновесный состав. Он будет идентичным для всех сборок, выгружаемых после каждого цикла выгорания во всех следующих кампаниях. В табл. 2 приведен материальный состав топлива, характеризующий баланс актиноидов при перемещении по различным маршрутам.

На рис. 6 и 7 приведены параметры медленной нуклидной кинетики для TBC типа 1 в течение кампании, образованной пятью циклами выгорания.

Третий и четвертый циклы выгорания является переходными. Простое накопление вторичного ядерного горючего прекращается. Скорость выжигания урана-233 приближается к скорости его на-



Шаг 1





Шаг 2



Illar 3



Шаг б

Рис. 5. Маршруты перестановок ТВС (сектор симметрии 60°, шаги 1-6)

работки и в 5-ом цикле они становятся равными. Это справедливо также для урана-235, а плутоний-241 преимущественно выжигается.

Содержание актиноидов в облученном топливе

Материальный состав облученных и выгружаемых из активной зоны ТВС приведен в табл. 3. Подпитка производится тридцатью ТВС, в состав которых входят 15,41 т ²³²Th и 1,76 т ²³⁹Pu.

После 1-ого цикла выгорания 30 ТВС типа 3, которые находились в центральном секторе активной зоны, выгружаются. Глубина выгорания ²³⁹Ри

для них достигает 82,9 %. Масса ²³⁹Pu в каждой такой ТВС уменьшается от 40,152 до 6,87 кг. Массы ²⁴⁰Pu, ²⁴²Pu, ²⁴¹Am и ²⁴³Am в каждой ТВС составляют 4,93; 0,74; 0,17 и 0,17 кг, соответственно. Такие ТВС могут быть использовании в 3-ем цикле выгорания путем замены ТВС типа 3, которые не выгружались после 1-ого и облучались в течение 2-ого цикла. Глубина выгорания ²³⁹Pu в ТВС типа 1, которые облучались все 5 циклов, достигает 89,4 %. Масса ²⁴¹Pu в каждой такой ТВС, выгружаемой после равновесного цикла, составляет 4,04 кг. Массы ²⁴⁰Pu, ²⁴²Pu, ²⁴¹Am, ²⁴³Am, ²⁴²Cm, ²⁴⁴Cm и ²³³Pa составляют 6,61; 1,3; 0,6; 0,4; 0,05; 0,18 и 0,24 кг, соответственно.



Рис. 6. Отношение значений концентраций в конце цикла выгорания к значениям в начале цикла (кольцевая зона – 14)



Рис. 7. Массы основных актиноидов в расчете на одну ТВС

Актиноиды	²³² Th	²³³ Pa	233U	²³⁵ U	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	
2	F24 27	0.000	0.00	цикл	40.200	0.000	0.00	0.00	
загрузка Вытрузка	531,3/	0,000	0,00	0,000	40,208	0,000	0,00	0,00	
рыі рузка	515,47	0,555	0,00	о, 199 Кольце	о, 547 вая зона	1,41/ a	4,44	0,97	
Маршрут 1									
1 15									
Загрузка	533,55	0,000	0,00	0,000	37,948	0,000	0,00	0,00	
Выгрузка	515,97	0,547	8,55	0,192	8,018	1,349	4,19	0,93	
Маршрут 2	загрузка								
Загрузка	0,00	0,000	0,00	0,000	39,441	0,000	0,00	0,00	
Выгрузка	514,82	0,522	8,53	0,186	8,858	1,456	4,38	0,92	
Маршрут 3	загрузка								
3 JEDVAKA	532.10	0.000	2	цикла	30 158	0.000	0.00	0.00	
Загрузка Выгрузка	512 35	0.343	9,197	0,000	6.633	1,146	4,062	1,11	
p j 5Ku	5.2,55	5,5 5	5,157	51271	5,000	.,	.,002	', ''	
Маршрут 4	загрузка								
Загрузка	531,37	0,000	0,00	0,000	40,195	0,000	0,00	0,00	
Выгрузка	511,46	0,377	9,217	0,245	6,712	1,151	4,146	1,135	
Маршрут 5	загрузка (IV) перестановка (III) выгрузка								
Загрузка	0.00	0.000	0.00	0.000	37 933	0.000	0.00	0.00	
Выгрузка	512,79	0,428	9,242	0,267	5,502	0,977	3,78	1,15	
Маршрут б	загрузка VI перестановка V выгрузка								
			3	цикла					
Загрузка Выгрузка	533,55	0,000	0,00	0,000	37,911	0,000	0,00	0,00	
Маршрузка	212,42 U,233 9,514 U,2/4 5,419 U,952 3,605 1,16								
mapapy				→ ("			ワ		
Загрузка	0,00	0,000	0,00	0,000	40,168	0,000	0,00	0,00	
Выгрузка	509,05	0,304	9,652	0,305	5,066	0,887	3,70	1,28	
Маршрут 8	загрузка (VIII) перестановка (IV) перестановка (III) выгрузка								
Загрузка	0,00	0,000	0,00	0,000	40,178	0,00	0,00	0,00	
Выгрузка	507,20	0,374	9,798	0,356	4,015	0,72	3,411	1,38	
Маршрут 9	загрузка (VI) перестановка (VI) перестановка (V) выгрузка								
-	1	~	4	цикла			-		
Загрузка	516,87	0,000	0,00	0,000	55,481	0,000	0,00	0,00	
Выгрузка	494,14	0,168	10,477	0,321	10,520	1,800	5,381	1,381	
Маршрут 10									
Загрузка	0,00	0,000	0,00	0,000	50,429	0,00	0,00	0,00	
Выгрузка	496,66	0,248	10,587	0,387	7,160	1,30	4,60	1,455	
Маршрут 11	загрузка	XI	→ (`		N	-•(Ш выгр	рузка	
Загрузка	0,00	0,000	0,00	0,000	51,204	0,000	0,00	0,00	
Выгрузка	501,71	0,360	10,821	0,471	5,459	1,020	4,281	1,625	
	загрузка						выгр	узка	
Маршрут 12									
5 циклов									
Загрузка	513,75	0,000	0,00	0,000	58,668	0,000	0,00	0,00	
выгрузка	489,00	0,145	10,703	0,380	7,489	1,426	5,054	1,1/2	

Таблица 2. Масса актиноидов в сборке, облученной в течение циклов выгорания, кг

Продолжение табл. 2



Таблица 3. Содержание актиноидов в топливе

Загрузка, т Выгорание,		Выгрузка 3·10 ТВС, т								
222Th	²³⁹ Pu	ГВт•сут/т	²²² Th	²³³ Pa	²³³ U	²³⁵ U	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
1-ый цикл выгорания										
79 6,86	50,29	5,13	0,006	0,087	0,002	0,085	0,014	0,044	0,010	
		5,16	0,005	0,086	0,0019	0,08	0,0135	0,042	0,009	
			5,15	0,005	0,085	0,0018	0,09	0,0145	0,044	0,009
2-ой										
15,41 1,76	15,15	5,12	0,0034	0,092	0,0024	0,066	0,011	0,041	0,011	
		5,11	0,0038	0,092	0,0024	0,067	0,011	0,041	0,011	
			5,13	0,0043	0,092	0,0026	0,055	0,010	0,038	0,011
З-ий										
15,41 1,76	16,8	5,12	0,0025	0,095	0,0027	0,054	0,0095	0,036	0,011	
		5,09	0,003	0,097	0,003	0,051	0,0089	0,037	0,013	
			5,07	0,0037	0,098	0,0035	0,040	0,0072	0,034	0,014
4-ый										
15,41 1,76			4,97	0,0017	0,105	0,0032	0,105	0,018	0,054	0,014
	18,16	4,97	0,0025	0,106	0,0039	0,071	0,013	0,046	0,014	
			5,02	0,0036	0,108	0,0047	0,054	0,01	0,043	0,016
5-ый										
15,41 1,76		18,11	4,89	0,0015	0,107	0,0038	0,075	0,014	0,051	0,017
	1,76		4,86	0,0025	0,111	0,0045	0,081	0,015	0,053	0,017
			4,84	0,0035	0,112	0,0056	0,056	0,01	0,046	0,018

Заключение

Анализ баланса актиноидов в открытом торийплутониевом ядерном топливном цикле на базе серийного легководного реактора ВВЭР-1000 позволяет сформулировать следующие выводы:

- торий-плутониевая загрузка по стандартной схеме, включающая ТВС трех типов (10%, 8% и 6% по ²³⁹Pu), позволяет организовать сверхдлинную кампанию – 3030 эфф. суток (8,3 г.);
- оптимальным является режим движения топлива от периферии к центру активной зоны при частичном перемешивании в азимутальном направлении;
- оптимальное количество циклов выгорания, обеспечивающее выход на режим равенства скоростей наработки и выжигания вторичного ядерного горючего, составляет 5. При этом значение флюенса повреждающих нейтронов для ТВС, облученных в течении 5 циклов, достигает своего предельного значения 9,18·10²¹ см⁻²;
- выгорание для ТВС, отработавших до выгрузки всю кампанию (5 циклов), достигает рекордно-

го значения 94,4 ГВт сут/т. Даже для ТВС, которые отработали только 1-й цикл выгорания и были выгружены, выгорание составляет 52,1 ГВт сут/т, что почти в 2 раза превосходит выгорание в урановых ТВС, отработавших стандартную кампанию (3·272 эфф. сут.);

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Kusters H., Kienzler B., Kolarik Z. et al. The nuclear fuel cycle for transmutation: critical review // Intern. Conf. En Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle System Global-95. – Versailles, France, 1995. – V. 1. – P. 1076–1083.
- Поплавский В.М., Матвеев В.И., Работнов Н.С. Замыкание ядерного топливного цикла: баланс актиноидов и безопасность // Атомная энергия. – 1996. – Т. 81. – № 2. – С. 123–128.
- выгружаемые ТВС как по количеству содержащегося плутония, так и по его нуклидному составу не пригодны для использования в военных целях. Глубина выгорания ²³⁹Ри в ТВС, выгружаемых после равновесного цикла, достигает рекордного значения 85,3...93,3 %.
- Shamanin I.V., Ukhov A.A., Rütten H.J., Haas K.A., Sherer W. The use of (Th,U,Pu)O₂ Fuel in a water-water energy reactor (WWER-1000): Physics and fuel cycle simulation by means of the V.S.O.P. (97) computer code // Forschungszentrum Jülich. FZJ – ISR – IB – 1/1999. – 40 p.

УДК 66.023.2

УРАВНЕНИЕ ПЕРЕНОСА ВЕЩЕСТВА И ЛЁГКОЙ КОМПОНЕНТЫ ВДОЛЬ ПО КОЛОННЕ БЕЗ ПОТЕРЬ

И.А. Тихомиров, Д.Г. Видяев, А.А. Гринюк

Томский политехнический университет E-mail: orlov@phtd.tpu.edu.ru

Описана схема и методика непрерывного разделения изотопов амальгамно-обменным методом в противоточной колонне с насадкой из колец Рашига. Выведено уравнение переноса вещества и лёгкой компоненты вдоль по колонне.

Для разделения щелочных и щелочноземельных элементов и их изотопов в промышленности используется амальгамно-обменный метод, который основан на непрерывном обмене между двумя фазами – амальгамой (интерметаллическим соединением металла с ртутью) и раствором гидроксида металла в противоточных насадочных колоннах. Для того чтобы наиболее эффективно организовать разделительный процесс необходимо иметь математический аппарат (математическую модель), достаточно точно описывающий его. При этом необходимо учесть все процессы, сопровождающие разделение (разложение амальгамы при контакте с водным раствором щелочи, образование газовой фазы в процессе разложения, потери фаз и т.д.) [1].

Задачей данной работы был вывод уравнения переноса вещества и изотопа вдоль по колонне без учета потерь, которое необходимо в дальнейшем для вывода уравнения разделения элементов (изотопов) в обменной колонне.

Для реализации поставленной задачи рассмотрим схему и методику непрерывного разделения изотопов амальгамно-обменным методом в противоточной насадочной колонне.

1. Общие принципы непрерывного разделения амальгамно-обменным методом

Изотопные отношения лёгкой компоненты к тяжёлой в амальгаме $\beta_2 = [c_2/1 - c_2]_{AM}$ в растворе

 $\beta_1 = [c_1/1 - c_1]_{p-p}$ определяют величину равновесного коэффициента изотопного разделения:

$$\alpha = \frac{\beta_2}{\beta_1} = \left[\frac{c_2}{1 - c_2}\right]_{AM} / \left[\frac{c_1}{1 - c_1}\right]_{p - p}$$

Здесь: c_1, c_2 – относительная доля лёгкой компоненты в растворе и амальгаме соответственно; относительная доля тяжёлой компоненты в растворе и амальгаме – $(1-c_1), (1-c_2)$.

Между амальгамой и раствором со временем наступает изотопное равновесие, приводящее к "раздвижению" изотопных концентраций от c_1 до c_2 . Величина расхождения (c_2-c_1) при однократном процессе разделения сравнительно мала. Встаёт вопрос, каким же образом можно организовать процесс с бо́льшим обогащением. Это можно сделать, организовав непрерывный процесс разделения на обменной колонне с "насадками" и регенерацией фаз, используя тот факт, что амальгама и раствор щёлочи – две несмешивающиеся фазы.

Схема движения фаз в противоточной обменной колонне через насадку приведена на рис. 1.

Колонна заполняется насадкой из колец Рашига, которые обычно делают из винипласта или других механически и химически стойких пластмасс. Общий вид колец Рашига изображён на рис. 2.

Поток амальгамы диспергируется (дробится) на решётках перед насадкой и движется через насадку