

Исследование влияния гомогенного добавления минорных актинидов в урановое оксидное ядерное топливо на нейтронно-физические характеристики ТВС реактора ВВЭР-1200

В.О. Скулкин,* Р.А. Внуков†

Обнинский институт атомной энергетики НИЯУ МИФИ
Россия, 249039, Калужская область, город Обнинск, тер. Студгородок, д. 1
(Поступила в редакцию 31.05.2023; подписана в печать 12.11.2023)

В работе рассмотрено влияние добавления диоксида америция в топливо на нейтронно-физические характеристики (НФХ) тепловыделяющей сборки реактора типа ВВЭР-1200 (модель В-392М). Моделирование осуществлялось с условиями радиального отражения и аксиальной утечки. Оценивались коэффициент размножения, неравномерность энерговыделения, коэффициент воспроизводства, доля запаздывающих нейтронов, изменение массы америция в топливе. Расчеты выполнены в программном комплексе Serpent 2. Использовалось константное обеспечение Jeff 3.1.1. Рассматривалась статистика 10^7 нейтронных историй. Статистическая погрешность коэффициента размножения $\sim 0.02\%$, доли запаздывающих нейтронов 0.1% , коэффициента воспроизводства 0.05% , для неравномерности энерговыделения и изменения изотопного состава топлива оценка не производилась. Результаты показали преимущественные показатели при добавлении оксида америция в топливо с позиции оценки коэффициента размножения, коэффициента воспроизводства. В противовес ухудшилась доля запаздывающих нейтронов. Неравномерность энерговыделения по ТВС не претерпела каких-либо изменений. Спектр нейтронов остался идентичным исходной ТВС. В итоге в рамках моделирование возможность сжигания Am241 в тепловом реакторе подтверждена.

PACS: 89.30.Gg.

УДК: 621.039.54.

Ключевые слова: коэффициент размножения, доля запаздывающих нейтронов, коэффициент воспроизводства, неравномерность энерговыделения, минорные актиниды, выжигание.

ВВЕДЕНИЕ

Выжигание минорных актинидов (МА) обусловлено необходимостью радикального снижения объемов радиоактивности и тепловыделения РАО.

Ввиду разного периода полураспада минорные актиниды по-разному влияют на тепловыделение РАО в различные периоды времени. На начальном временном промежутке основной вклад вносят продукты деления; через 200 лет — изотопы Am и Cm; более 100000 — Np-237 [1]. В зависимости от этого различные МА требуют разного обращения с ними. Np, имеющий малое удельное энерговыделение, может использоваться для трансмутации в топливе или пойти в захоронение. Am предпочтительно использовать в топливе для трансмутации. Cm можно хранить в перерабатываемой форме в течение 100 лет.

Теоретические исследования показывают, что предпочтительно выжигать МА в быстром спектре нейтронов ввиду особенностей ядерных сечений деления и захвата.

Трансмутация может быть осуществлена двумя способами: гетерогенным и гомогенным. Гомогенный: МА добавляются в стандартное топливо. Гетерогенный: МА составляют само топливо.

Трансмутация в реакторах типа LWR предпочтительна для Am-241. Am поглощая нейтрон превраща-

ется в Am-242m с большим сечением деления в тепловой области [2].

Утилизация МА (Am-241) в тяжеловодных реакторах более эффективна, чем в LWR за счет меньшего паразитного захвата нейтронов, возможности непрерывной перегрузки ТВС и небольших размеров ТВС. Работа [3] показывает: при выгорании 10.6 МВт-сут/кг масса Am и Np уменьшилась на 57.3% и 10.6% соответственно.

В высокотемпературных реакторах возможно более глубокое выгорание, поэтому можно выжигать МА более эффективно. Расчеты в [4] показали: при выгорании 661,3 МВт-сут/кг масса Np-237 уменьшилась в 4 раза, Am-241 — в 10 раз, Am-242m — в 3 раза, Am-243 возросла в 2.5 раза.

Реакторы на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем для выжигания МА более эффективны из-за особенностей сечений деления и поглощения большинства МА. Экспериментально в быстрых реакторах рассматривалась как гомогенная, так и гетерогенная трансмутация МА. В рамках эксперимента SUPERFACT в активную зону были помещены твэлы с содержанием изотопов Am и Np 2% и трансмутационные мишени с содержанием этих же изотопов 45%. Результаты показали скорость трансмутации Np порядка 24–27%, Am — 27–30% в год [5].

Исследования выжигания МА в быстрых реакторах со свинцовым теплоносителем также проводились. В работе [6] рассматривается гомогенное и гетерогенное включение Np и Am в СНУП-топливо реактора БРЕСТ-ОД-300. При дожигании только собствен-

* slava_skulkin@mail.ru

† vnukovra@oiate.ru

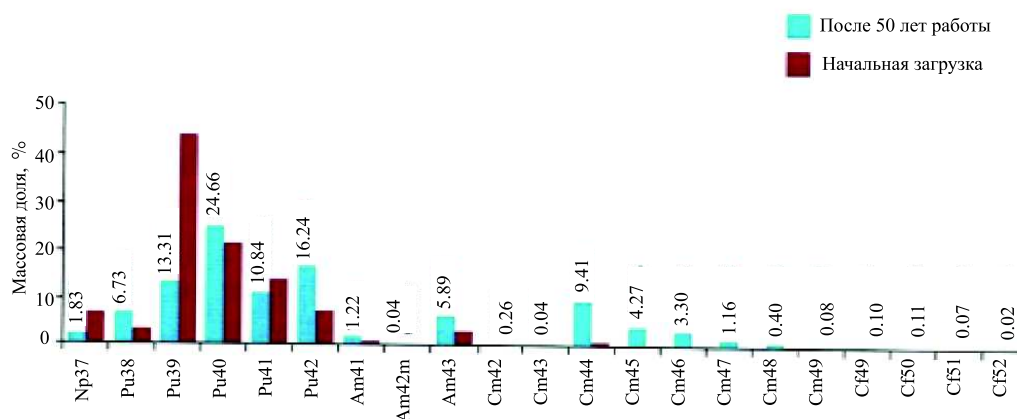


Рис. 1. Изменение массовой доли МА [9]

ных МА в топливо гомогенно добавляется 0.1% Np и 0.4% Am, что составляет равновесное содержание этих элементов при многократном рециклировании. Добавление такого количества МА не должно влиять на нейтронно-физические характеристики реактора [7].

Жидкосольевой реактор — на сегодняшний день перспективный метод утилизации МА, благодаря высокоэффективному балансу нейтронов, большой глубины выгорания, возможности непрерывного регулирования топливного состава, безопасности реактора, отсутствия проблем с теплоотдачей. Если Am и Np могут находиться в ЖСР, пока не поделятся, то Cm накапливается при работе реактора.

Интересным может показаться утилизация МА в электроядерных установках из-за жесткого спектра нейтронов и большой плотности потока нейтронов. Проведенный эксперимент TARK, описанный в работе [8], подтверждает возможность трансмутации Tc-99. Данный вывод применяем и к МА.

С позиции отечественных перспективных направлений утилизации МА трансмутация в первую очередь рассматривается в быстром реакторе с натриевым теплоносителем, в частности в реакторе БОР-60. В работе [9] в рамках эксперимента изготовлено 2 твэла с урановым топливом и содержанием Np-237 до 5% и помещены в активную зону. По результатам эксперимента: при выгорании 12.5% и 19.5% тяжелых атомов уменьшение массы Np-237 составило 16.9 и 19.0% от изначальной.

Кроме этого, проводились исследования по выжиганию МА в области со смягченным спектром нейтронов. Результаты исследований показали, что в такой области трансмутация Am происходит наиболее эффективно. Уменьшение исходной массы Am-241 за 5 лет облучения составило 90%, при этом доля разделившегося Am-241 — около 30%. Другим интересным исследованием является использование реактора с америциевым топливом.

В работе [10] рассматривается реактор RBEC, только с америциевым топливом. В результате расчета: при начальной загрузке Am порядка 36 т трансмутировано 80% от исходной массы, но только 60% подвергается делению.

Как и в других государствах, в отечественной науке также проводились исследования сжигания МА в жидкосольевом реакторе. В работе [11] в качестве растворителя фторидов выбрана топливная соль ${}^{73}\text{LiF}{}^{27}\text{BeF}_2$ [12]. При этом растворимость МА при температуре 600°C составляет 2%. Расчетный темп сжигания 104 кг МА в год на 1 ГВт. Результат представлен на рис. 1.

Существуют другие концепции топлива для ЖСР. Топливная соль FLiNaK [13, 14] может использоваться в реакторе, работающем на фторидах МА, урана и плутония. В таком случае растворимость МА составляет 20–30% при температуре 600°C. То есть такой реактор может работать только на МА, но для запуска реактора в первую микрокампанию эффективнее загружать топливо из U-5. Расчетное моделирование указывает на возможность достигнуть темпа сжигания МА около 620 кг в год на 1 ГВт. Результат представлен на рис. 2.

Не менее интересное исследование уже касается гибридного реактора с термоядерным источником нейтронов. Работа [15], проводимая специалистами из НИЦ «Курчатовский институт» и НИЯУ МИФИ, рассматривает возможности ГТР для трансмутации МА. МА располагаются в бланкете и облучаются 5 лет. Результаты представлены в таблице 1. Можно видеть, что выгорание МА составляет 3–4%, в реакторе IHR 15.4%.

1. МЕТОДЫ И МОДЕЛИРОВАНИЕ

В работе был рассмотрен долгоживущий актинид Am-241 в легководном реакторе. В данной модели реализуется следующая ядерная реакция. Америций-241

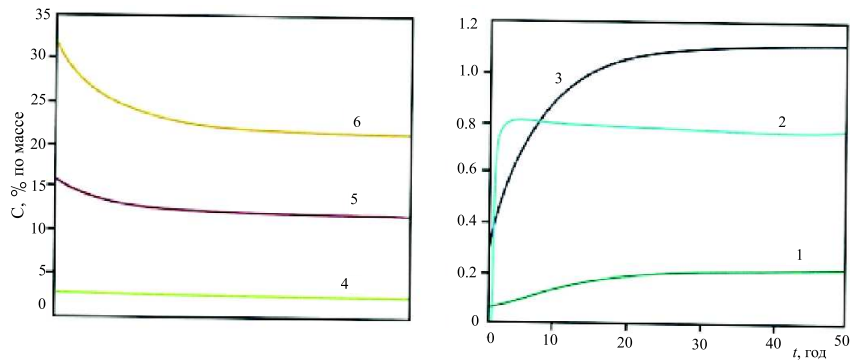


Рис. 2. Изменение содержания Cm-245 (1), Cm-242 (2), Cm-244 (3), Am-243 (4), Np-237 (5), Am-241 (6) в активной зоне БЖСР со стартовой загрузкой на основе U-235

Таблица 1.

		DEMO-FNS ()	DEMO-FNS ()	PIHR	IHR
Загрузка топлива в бланкет, тонн		26.24	19.7	26.24	41.68
Время топливной кампании с учетом КИУМ, лет		16.7	16.7	6.25	5.25
Средняя мощность энерговыделения в бланкете, МВт(т)		472	398	472	3100
Изменение массы актинидов, кг/тонна	Np	-9.9 (3.5%)	-5.2 (1.8%)	-19.1 (6.7%)	-100.3 (35.0%)
	Am	-70.2 (10.5%)	-63.2 (9.5%)	-60.8 (9.1%)	-241.8 (36.2%)
	Cm	-0.4 (7.7%)	-1.0 (21.2%)	+2.8 (57.5%)	+17.7 (358.1%)
	U	+2.4	+1.6	+0.9	+3.0
	Pu	+43.5	+29.5	+41.7	+174.0
Выгорание актинидов, кг (%)		906.4 (3.6%)	755.0 (4.0%)	904.4 (3.6%)	6148.0 (15.4%)
Темп трансмутации, кг/год		54.3	45.2	144.7	1171.0

захватывает нейтрон и с некоторой вероятностью переходит в америций-242 метастабильный, который имеет сечение деления больше, чем сечение радиационного захвата в тепловой области. Эта последовательность ядерных реакций позволяет выжигать минорные актиниды в тепловом реакторе.

В исследовании рассматривалась ТВС Z49A2 (см. рис. 3) теплового реактора типа ВВЭР-1200 по причине того, что это перспективный реактор, который используется и будет использоваться в Российской атомной энергетике и за рубежом. Поэтому расчеты для этого реактора будут наиболее актуальны.

В процессе работы варьировалась концентрация оксида америция-241 в твэге в диапазоне от 0.1 до 100%. Исследование проводилось при условии отсутствия выгорающего поглотителя, гадолиния, и одинакового обогащения по урану-235 (3.6 %). То есть для случая с 5% оксида америция вместо 5% оксида гадолиния концентрация урана-235 в ТВС идентичная. Во всех остальных случаях она либо ниже, либо выше, так как обогащение в стержнях с америцием оставалось неизменным. Таким образом, отслеживалось влияние материального параметра на характеристики среды.

В расчете были приняты некоторые допущения: неизменяемая концентрация борной кислоты в тепло-

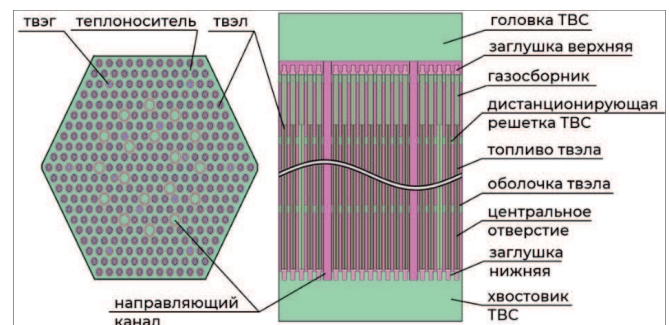


Рис. 3. Расчетная модель ТВС

носителе, отсутствие моделирования частичных перегрузок, отсутствие органов регулирования СУЗ.

Нейтронно-физический расчет осуществлялся в программном комплексе Serpent 2, реализующий метод Монте-Карло.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В рамках исследования можно составить ряд отслеживаемых характеристик.

Эффективный коэффициент размножения нейтронов, как одна из важнейших характеристик, по которому можно судить о возможности протекания цепной реакции деления в модели. Его оценка позволяет судить о возможности замены ТВС исходной Z49A2 на модернизированную (с америцием). Критерием выбора доли америция в топливе твэгов вместо гадолиния является равенство усредненного коэффициента размножения на начало и конец кампании.

Энерговыделение по ТВС позволяет рассмотреть влияние добавления америция на равномерность поля энерговыделения. Исследование происходит параллельно оценке эффективного коэффициента размножения для многокритериального подбора доли америция в топливе.

Так как в процессе трансмутации образуется америций-242 метастабильный, который является делящимся нуклидом, то америций-241 вносит вклад в КВ. Чем выше КВ, тем выше возможности получения глубоких выгораний ядерного топлива.

По доле запаздывающих нейтронов можно судить о возможности управления реактором (в частности возможностях подбора органов регулирования СУЗ).

Накопление/сжигание Америция-241 в твэлах и твэлах с америцием позволяет ответить на вопрос: возможно ли выжигать минорные актиниды в тепловом реакторе без существенного изменения конструкции ТВС, а также характере эксплуатации.

2.1. Коэффициент размножения

Эффективный коэффициент размножения, как видно из графика на рис. 4, зависит от добавляемой концентрации как в начале кампании, так и в конце. Если же сравнить с коэффициентом размножения исходной ТВС, то можно сделать следующие выводы: коэффициент размножения исходной ТВС, имеющей гадолиний в качестве выгорающего поглотителя, имеет схожий вид с коэффициентом в модели с добавлением америция 6%. Таким образом, можно предположить, что наиболее подходящая концентрация америция для твэга находится в этой области.

Более низкие доли оксида америция требуют дополнительной компенсации избыточной реактивности. Так как в реакторах ВВЭР-1200 концентрация борной кислоты находится на близких значениях к предельным на период начала кампании (существует требование по положительному плотностному коэффициенту реактивности), использовать ее в теплоносителе для дополнительного ввода отрицательной реактивности в начале кампании нельзя. Альтернативными вариантами являются изменение обогащения ($K_{эфф}$ в конце кампании снизится), изменение других ТВС в зоне реакто-

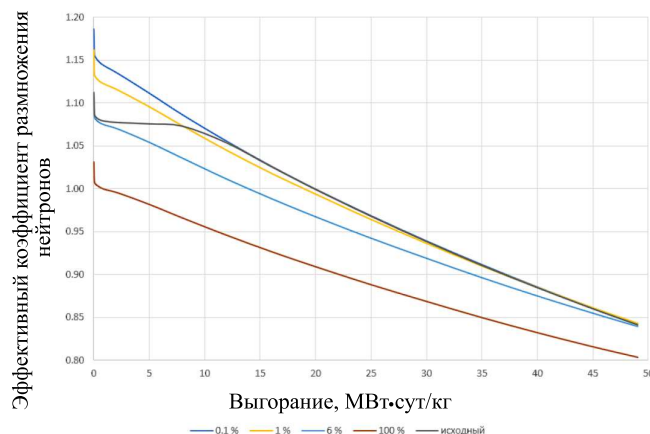


Рис. 4. Зависимость коэффициента размножения от выгорания

ра (потенциально задачу необходимо рассматривать на полномасштабной модели активной зоны), изменение введение альтернативных пассивных компенсаторов.

2.2. Неравномерность энерговыделения

Диаграммы энерговыделения по ТВС при разных концентрациях и выгорании представлены на рис. 5, 6. При малой концентрации влияние добавления америция мало.

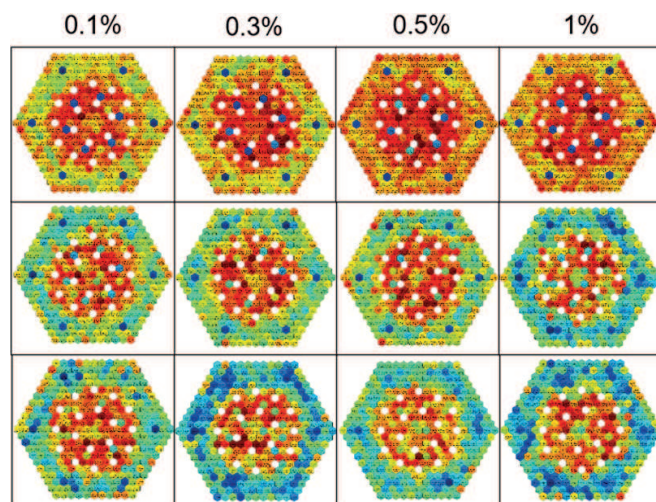


Рис. 5. Энерговыделение по ТВС при малых концентрациях

Но в то же время показателен предельный случай. Энерговыделение с увеличением концентрации америция все более неравномерно. В начале наблюдается сильная депрессия в зоне твэлов с америцием, в конце кампании эти же твэлы с америцием горят наиболее эффективно из-за накопившегося метастабильного америция-242. Для случаев с 6–8% эффект является незначительным (внешний ряд стержней с аме-

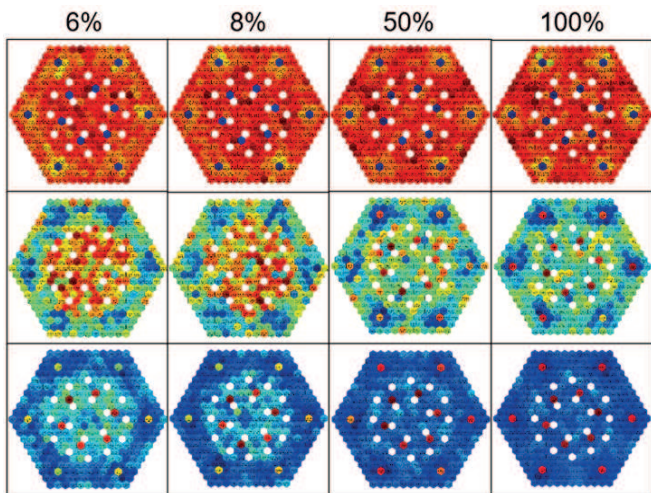


Рис. 6. Энерговыведение по ТВС при больших концентрациях

рицием имеет близкое к центральным твэлам энерговыделение), в случаях более высокой доли америция в топливе очевидно, что топливо к концу кампании не выгорает полностью. Таким образом, потенциально возможно использование таких твэлов с америцием по окончании топливной кампании. Однако открытым обстоит вопрос технологии извлечения части твэлов из ТВС для последующей эксплуатации, минуя выдержку ОЯТ.

2.3. Коэффициент воспроизводства

Коэффициент воспроизводства растет в силу наработки того же метастабильного америция-242, график представлен на рис. 7.

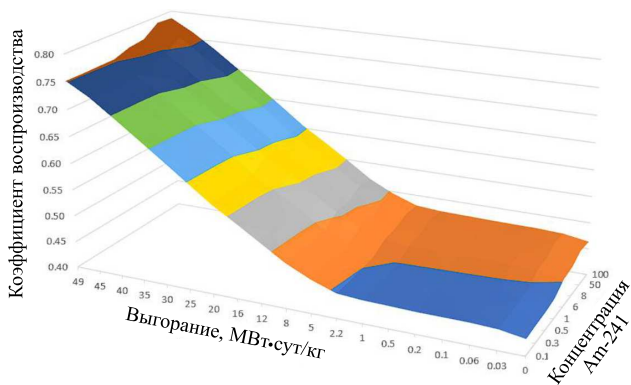


Рис. 7. Зависимость коэффициента воспроизводства от выгорания и доли оксида америция

Любое добавление америция вместо гадолиния дает прирост КВ, поскольку гадолиний при захвате нейтронов не дает делящихся ядер. При добавлении америция сверх 5% следует рассмотреть две ситуации:

уменьшение общей доли урана-235, как делящегося нуклида, уменьшение урана-238 как сырьевого нуклида. КВ в рамках расчета представляет собой отношение скоростей наработки делящихся нуклидов к их убыли. Так как с уменьшением доли урана и ростом доли америция в топливе количество делящихся нуклидов в начале кампании падает, то КВ будет расти, поскольку зависимость скорости убыли концентрации делящихся нуклидов зависит от концентрации линейно. Если принять, что весь накопленный уран-238 переходит в плутоний-239 (что является грубым допущением, поскольку нептуний-239 частично поглощает нейтроны), то достаточно сравнения микроскопических сечений радиационного захвата σ с (рис. 8).

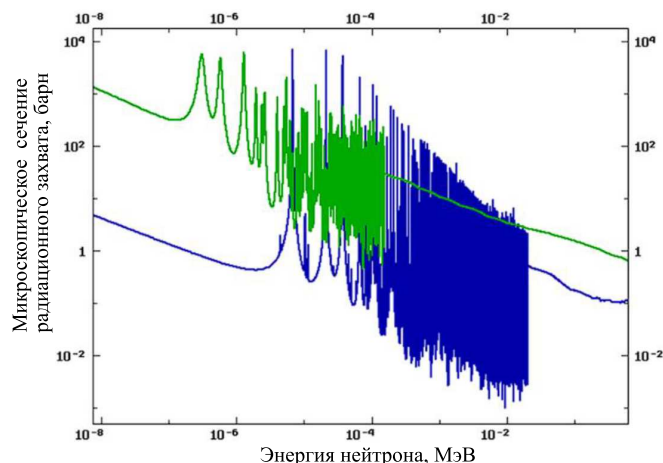


Рис. 8. Сравнение сечений радиационного захвата урана-238 (синий) и америция-241 (зеленый)

Очевидно, накопление америция-242m более вероятно, чем плутония-239 (при захвате нейтрона америцием-241 нейтрона с 10% вероятностью образуется метастабильный америций-242, при этом в тепловой области вероятность захвата нейтрона на ядрах америция-241 на 2.5 порядка выше, чем у ядер урана-238). В связи с этим КВ по второму признаку также выше.

Со временем описанный эффект при более высоких долях америция сказывается сильнее, поэтому рост КВ в течение кампании при долях америция 50% и 100% значительно выше.

В совокупности стоит отметить, что улучшение коэффициента размножения и коэффициента воспроизводства относительно исходной модели является нестандартным положительным результатом, поскольку характеристики с позиции радиационного захвата ураном-238 являются противоположными величинами: чем выше значимость радиационного захвата, тем ниже Кэф и выше КВ.

2.4. Доля запаздывающих нейтронов

На рис. 9 можно видеть, что с увеличением концентрации америция доля запаздывающих нейтронов уменьшается в начале кампании и остается ниже на протяжении всего времени, что негативно сказывается на возможностях управления реактором в случае замены уран-гадолиниевого топлива на оксид америция.

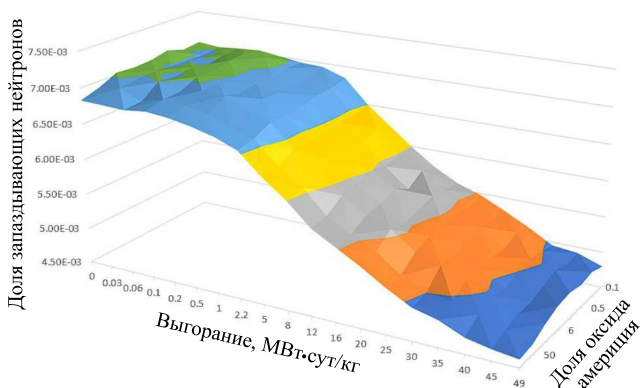


Рис. 9. Зависимость доли запаздывающих нейтронов от выгорания и доли оксида америция

Если говорить о малых долях америция в топливе (замена только оксида гадолиния на оксид америция либо с частичной заменой оксида урана на оксид америция), то эффект незначителен и им можно пренебречь в условиях эксплуатации реактора. Основной вклад в снижение доли запаздывающих нейтронов вносит накопление плутония-239 в твэлах. Так как америций добавляется только в 12 стержней из 312, эффект внесения америция меньше, чем от наработки плутония-239. Таким образом, негативным влиянием (на возможностях управления реактором) от добавления америция вплоть до 8% можно пренебречь.

2.5. Количество америция в топливе

Рассматривая вопрос о наработке и выжигании америция-241 в легководном реакторе, стоит упомянуть важную тонкость. Топливо твэлов первоначально не имеет америция в своем составе, и именно в них мы рассматриваем наработку, а в твэлах с америцием — сжигание.

По первому графику на рис. 10 можно сделать вывод: масса сжигаемого америция-241 в твэлах с америцием превышает массу нарабатываемого в обычных твэлах уже при минимальной концентрации америция 0.1%. А в предельном случае превышает более, чем в 200 раз, как показано на рис. 11.

Таким образом, выжигание америция-241 возможно в тепловых реакторах. При задании реалистичного состава америция (из отработавшего ядерного топлива)

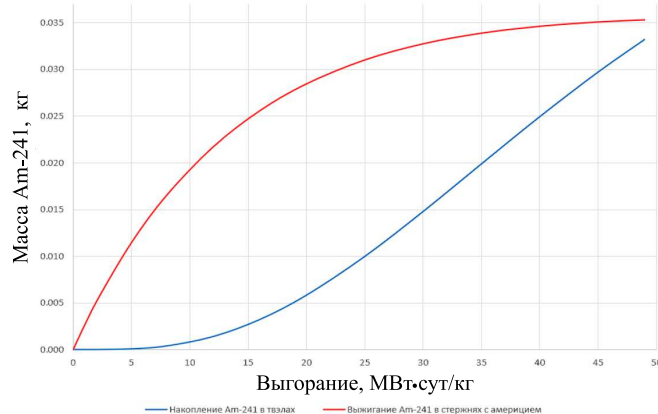


Рис. 10. Накопление/сжигание америция-241 при доле оксида америция 0.1%

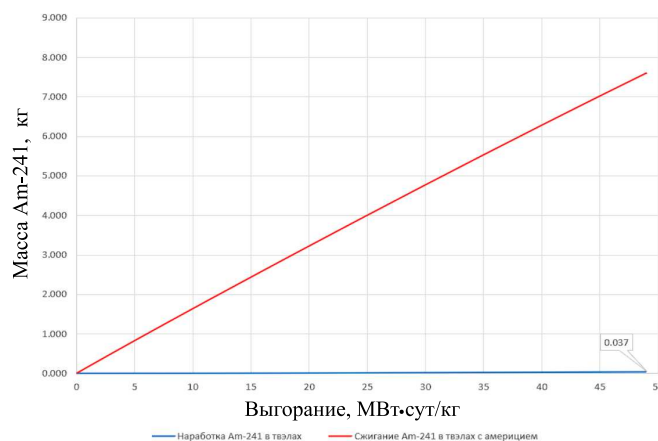


Рис. 11. Накопление/сжигание америция-241 при доле оксида америция 100%

общая доля америция-241 снизится до ~80%, в связи с чем общий эффект выжигания минорных актинидов не изменится: при 6–8% оксида америция в стержнях большая его часть выгорит в рамках топливной кампании, при 50–100% часть америция-241m сохранится и после окончания топливной кампании. При долях меньше 6% весь заложенный америций сгорает полностью (америций остается в топливе на конец кампании, поскольку некоторое количество накапливается из урана-238).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Были рассмотрены результаты некоторых нейтронно-физических характеристик при замене части топлива из диоксида урана на оксид америция с чистым америцием-241. Данный вариант представлен только с позиции физической оценки перспектив выжигания минорных актинидов, поскольку технологически достигнуть очищения америция-241 от других изото-

пов представляется труднодостижимым в настоящее время (по крайней мере, экономически не выгодным).

Оптимальной долей оксида америция с позиции рассмотренных нейтронно-физических характеристик является 6% в стержнях, расположенных в местах размещения ТВЭГов ТВС Z49A2. Таким образом, полная

замена оксида гадолиния и частично оксида урана на оксид америция позволяет получить более высокий КВ, практически идентичную долю запаздывающих нейтронов, схожие $K_{эфф}$ в начале и конце кампании, более выравненное поле энерговыделение потвэльно в ТВС на середину и конец кампании.

- [1] Bergelson B., Gerasimov A., Zaritskaya T. et al. Decay heat power and radiotoxicity of spent uranium, plutonium and thorium fuel at long-term storage. Beijing: SMiRT 18, 2005., 18th international Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology.
- [2] OECD NEA. French R&D on the Partitioning and Transmutation of Long-lived Radionuclides: An international Peer Review of the 2005 CEA Report. Papers: OECD Publishing, 2006.
- [3] Zashchev K. Transmutation of VVER-1000 spent nuclear fuel in CANDU reactors. София: ЕНЕРГИЕН ФОРУМ 2017, 2017.
- [4] Euratom. Plutonium and Minor Actinide Management in Thermal High-Temperature Gas-Cooled Reactor (PUMA): Publishable Final Activity Report. 2010.
- [5] Prunier C., Boussard F., Koch L., Coquerelle M. Some specific aspects of homogeneous Am and Np based fuels transmutation through the outcomes of the superfast experiment in phenix fast reactor. Б.м.: Atomic Energy Commission and European Institute for Transuranium Elements, 1993 г.
- [6] Грачев А.Ф. Вовлечение минорных актинидов в замкнутый топливный цикл проекта «ПРОРЫВ». Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. 4. 2017 г.
- [7] Власкин Г.Н. // Атомная энергия. **116**, 5. (2014).
- [8] European organization for nuclear research – Cern. The TARC experiment (PS211): Neutron-driven Nuclear Transmutation by adiabatic resonance crossing. Geneva: Cern, 1999.92-9083-156-1.
- [9] International atomic energy agency (IAEA). Status of Minor Actinide Fuel Development. Vienna: IAEA, 2009. NF-T-4,6.
- [10] Коробейников В.В. Колесов В.В. Каражелевская Ю.Е. Терехова А.М. // Изв. вузов. Ядерная Энергетика. 2. (2019).
- [11] International Atomic Energy (IAEA). Advanced Reactor Technology Options for Utilization and Transmutation of Actinides in Spent Nuclear Fuel. Vienna: IAEA, 2009.
- [12] Игнатъев В.В. // Атомная энергия. **125**, 5. (2018).
- [13] Пономарев Л.И. // Атомная энергия. **126**, 3 (2019).
- [14] Дегтярев А.М. Пономарев Л.И. // Атомная энергия. **112**, 6. (2012).
- [15] Shlenskii M., Kuteev B. // Applied Sciences. 10. (2020).

Investigation of the effect of homogeneous addition of minor actinides to uranium oxide nuclear fuel on the neutronics of the fuel assembly of the VVER-1200 reactor

V.O. Skulkin^a, R.A. Vnukov^b

¹Obninsk Institute Nuclear Energy National Research Nuclear University MEPhI. Obninsk, 249039, Russia
E-mail: ^aslava_skulkin@mail.ru, ^bvnukovra@oiate.ru

The paper considers the effect of the addition of americium dioxide to fuel on the neutronics of the fuel assembly of the reactor type VVER-1200 (model V-392M). The simulation was carried out with conditions of radial reflection and axial leakage. The multiplication factor, the power peaking factor, the conversion ratio, the proportion of delayed neutrons, and the change in the mass of americium in the fuel were estimated. Calculations were performed in the Serpent 2 software package. Jeff 3.1.1 constant software was used. Statistics of 10^7 neutron histories were considered. The statistical error of the multiplication coefficient is $\sim 0.02\%$, the proportion of delayed neutrons is 0.1%, the reproduction coefficient is 0.05%, for uneven energy release and changes in the isotopic composition of the fuel, no assessment was made. The results showed preferential indicators when adding americium oxide to the fuel from the point of view of the evaluation of the reproduction coefficient, the reproduction coefficient. In contrast, the proportion of delayed neutrons worsened. The unevenness of the fuel assembly energy release has not undergone any changes. The neutron spectrum remained identical to the original fuel assembly. As a result, within the simulation, the possibility of burning Am241 in a thermal reactor was confirmed.

PACS: 89.30.Gg.

Keywords: multiplication factor, power peaking factor, conversion ratio, proportion of delayed neutrons, minor actinides, burnout.

Received 31 May 2023.

Сведения об авторах

1. Скулкин Вячеслав Олегович — студент; e-mail: slava_skulkin@mail.ru.
2. Внуков Руслан Адхамович — преподаватель, аспирант; e-mail: vnukovra@oiate.ru.