

## Эффективное использование оружейного урана в ядерной энергетике

В. Е. МАРШАЛКИН, В. М. ПОВЫШЕВ

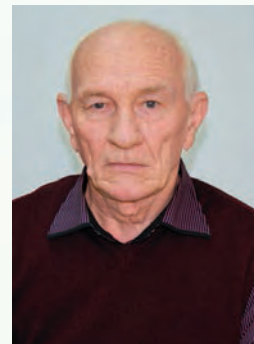
К настоящему времени известно одно масштабное использование оружейного урана, высокообогащенного изотопом  $^{235}\text{U}$  (в том числе  $^{235}\text{U}0,9$   $^{238}\text{U}0,1$ ), в ядерной энергетике. Это проект ВОУ-НОУ, в рамках которого российский высокообогащенный уран был разбавлен обедненным ураном и сожжен обычным образом в американских реакторах PWR. При этом было потеряно его главное качество, обусловленное высоким обогащением.

Нам представляется эффективным его сжигание в реакторах типа ВВЭР (PWR) в смеси с торием и использованием в качестве теплоносителя тяжелой воды с разбавлением легкой водой в процессе кампании. (Кампания – время нахождения топлива в реакторе до его перезагрузки). При этом поддержание критического состояния реактора в процессе кампании осуществляется смягчением энергетического распределения нейтронов и соответствующим повышением реактивности выгорающего топлива. Отсутствие обычно используемого запаса реактивности и его нейтрализации выгорающими поглотителями нейтронов, а также использование тяжелой воды, обеспечивают экономию нейтронов и их эффективное использование на поддержание цепной реакции деления ядер и производство изотопа  $^{233}\text{U}$ .

В связи с разницей в значениях критической массы шаров из  $^{235}\text{U}$  (~47 кг) и  $^{233}\text{U}$  (~15,6 кг) для поддержания критического состояния реактора достаточно производства в ~3 раза меньшего числа ядер  $^{233}\text{U}$  относительно числа сгоревших ядер  $^{235}\text{U}$ . Это означает, что количество вторичных нейтронов, образующихся при делении ядер  $^{235}\text{U}$ , может быть достаточным и для деления следующих ядер, и для поддержания критического состояния реактора при использовании тория в качестве сырьевого изотопа. Деление ядер  $^{233}\text{U}$  нейтронами любой энергии сопровождается образованием более двух вторичных нейтронов на поглощенный нейтрон и соответственно может обеспечить расширенное воспроизводство  $^{233}\text{U}$ . Дополнительным источником нейтронов является деление пороговых изотопов  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  быстрыми нейтронами.



В. Е. Маршалкин



В. М. Пovyшев

Мы рассмотрели возможность совместной утилизации энергетического плутония и высокообогащенного урана, где показано, что использование высокообогащенного урана повышает безопасность утилизации плутония, обеспечивает глубокое выгорание актиноидов реакцией деления и переход на замкнутый торий-уран-плутониевый топливный цикл.

Рассмотрим простую, но более подготовленную к настоящему времени возможность реальной утилизации высокообогащенного урана в реакторах типа ВВЭР (PWR) в смеси с торием и использованием в качестве теплоносителя тяжелой воды с разбавлением легкой водой в процессе кампании. При этом возможно достижение следующих результатов: значимого увеличения длительности кампании, глубокого выгорания реакцией деления стартовых изотопов  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  и нарабатываемых на них ядер, замыкания по всем актиноидам торий-уран-плутониевого топливного цикла.

Расчеты выполнены для однотвальной ячейки, предложенной МАГАТЭ, с заменой энергетического плутония высокообогащенным ураном, легкой воды тяжелой водой, внешнего радиуса ячейки 0,85 см на 0,80 см, для заявленной мощности 211 Вт/см. В соответствии с тенденцией увеличения времени кампании реакторов ВВЭР до 4-х лет рассмотрено рециклирование четырехлетних кампаний с замыканием по всем долгоживущим актиноидам.

В начале первой кампании критическое состояние ячейки обеспечивается топливом, ко-

торое состоит из двуокиси высокообогащенного урана  $^{235}\text{U}0,9$   $^{238}\text{U}0,1$ , и двуокиси тория с удельным содержанием 139 и 861 кг на тонну тяжелого металла соответственно, а в качестве замедлителя используется тяжелая вода  $\text{D}_2\text{O}$ . В течение облучения критическое состояние ячейки поддерживается разбавлением тяжелой воды легкой водой  $\text{H}_2\text{O}$  в соответствии с выражением

$$C = ((1-\alpha)\text{H}_2\text{O} + \alpha\text{D}_2\text{O})$$

и понижением  $\alpha$  от единицы, что обеспечивает возможность непрерывной работы реактора.

При этом выгорают  $\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ , накапливаются изотопы  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ , а также осколки деления и реализуется  $\text{Th-U-Pu}$  топливный цикл. Ядра сырьевого изотопа  $\text{Th}$  испытывают деление на стадиях последовательного прохождения изотопов  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ , делящихся нейтронами любой энергии, что обуславливает их глубокую трансмутацию реакцией деления. Ядра  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  аналогично испытывают дополнительное деление на стадиях последовательного прохождения изотопов  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ . Последовательный радиационный захват нейтронов изотопами  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  ухудшает нейтронный баланс в системе, но является неизбежной потерей нейтронов для обеспечения выгорания этих изотопов делением на стадиях прохождения  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Pu}$ . Поглощение нейтронов нарабатываемыми осколками деления и конструктивными элементами оболочки твэла является основной паразитной причиной понижения реактивности топлива и ухудшения нейтронного баланса.

На рис. 1–3 приведено изменение удельного содержания изотопов топлива в течение 44 лет облучения при удельной мощности ячейки 211 Вт/см и использования тяжелой воды на старте каждой кампании в режиме 4-х летних кампаний с замыканием по всем долгоживущим актиноидам. Нейтронная кинетика и изотопное преобразование первой кампании оказались такими, что падение реактивности топлива при выгорании  $^{235}\text{U}$  и наработке поглотителей нейтронов с избытком компенсировалось ее повышением (без осколков деления) при наработке изотопа  $^{233}\text{U}$ . Оказалось, что для стартовой загрузки второй кампании в критическом состоянии при использовании тяжелой воды на старте достаточно использования 99 % актиноидов отработавшего топлива первой кампании и добавления тория до тонны тяжелого металла. Однако, начиная с третьей кампании, для обеспечения критического состояния в стартовом состоянии последующей кампании оказалось

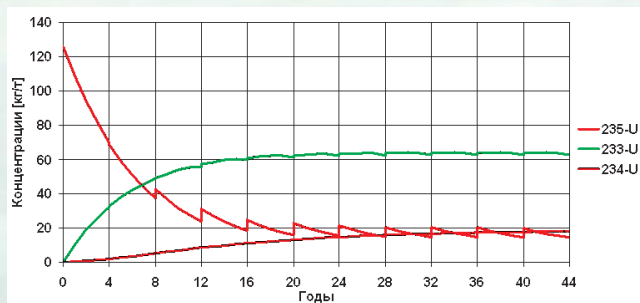


Рис. 1. Временная зависимость изменения удельного содержания  $^{235}\text{U}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$  в топливе

необходимым добавление ~7–5 кг обогащенного урана.

Картину изотопного преобразования можно условно разделить на три группы. Первая, наиболее интенсивно меняющаяся группа, представлена на рис. 1 и связана с нейтронами деления стартового изотопа  $^{235}\text{U}$  и нарабатываемого  $^{233}\text{U}$ , при их преобладающем поглощении  $^{232}\text{Th}$  (из-за его большого содержания), наработки изотопа  $^{233}\text{U}$ , деления  $^{233}\text{U}$  и радиационного захвата нейтронов им с наработкой  $^{234}\text{U}$ , последующего захвата нейтронов  $^{234}\text{U}$  и наработкой исходного изотопа  $^{235}\text{U}$ . Этот «укороченный замкнутый цикл» интенсивно работает на протяжении всех кампаний и в каждой кампании, в основном, определяет энерговыделение, нейтронную кинетику и изотопное преобразование в топливе.

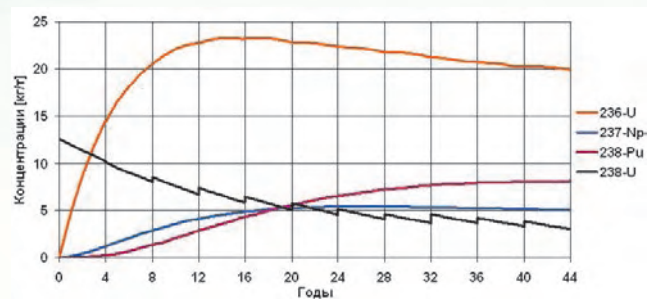


Рис. 2. Временная зависимость изменения удельного содержания  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{238}\text{U}$  в топливе

Вторая группа представлена на рис. 2 и связана с радиационным захватом нейтронов изотопом  $^{235}\text{U}$  с наработкой  $^{236}\text{U}$  и с последующей наработкой изотопов  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  в последовательных захватах нейтронов. Нарботка этих изотопов идет наиболее интенсивно в процессе первых кампаний, выходит на насыщение и затем понижается по мере выгорания  $^{235}\text{U}$ . Отсутствие активных изотопов в этой группе определяет ее в качестве основной поглощающей нейтроны группы. Она является переходной областью между парами активных изотопов  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и

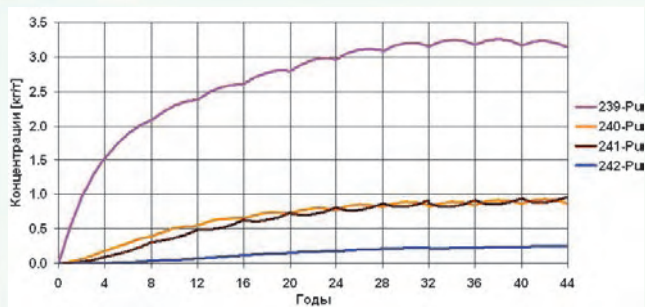


Рис. 3. Временная зависимость изменения удельного содержания  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  и  $^{242}\text{Pu}$  в топливе

$^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ . Интенсивность поглощения нейтронов в ней на порядок ниже при использовании  $^{233}\text{U}$  вместо  $^{235}\text{U}$  в топливе, что и является одним из главных преимуществ использования  $^{232}\text{Th}$  относительно  $^{238}\text{U}$  в качестве сырьевого изотопа.

Третья группа представлена на рис. 3 и связана с изотопами плутония. Конечно, в первых кампаниях наработка  $^{239}\text{Pu}$  происходит на  $^{238}\text{U}$  исходной стартовой загрузки. По мере наработки  $^{238}\text{Pu}$  на  $^{237}\text{Np}$  дополнительно возрастает на нем наработка  $^{239}\text{Pu}$ . Деление  $^{239}\text{Pu}$  нейтронами любой энергии понижает его содержание и наработку  $^{240}\text{Pu}$ . Аналогичная ситуация имеет место с парой  $^{241}\text{Pu}$  и  $^{242}\text{Pu}$ . Нетрудно увидеть сравнительно низкую интенсивность изотопного преобразования и соответствующую роль плутония в энерговыделении в таком топливе. При этом процесс деления ядер плутония ограничивает наработку ядер америция, кюрия и изотопов более тяжелых элементов.

На рис. 4–6 приведены удельные значения изотопов топлива, выгорающих реакцией деления во время каждой из 11 последовательных кампаний. Кривые для каждого изотопа характеризуют изменение его вклада в общее число делений в течение 11 последовательных кампаний облучения при удельной мощности ячейки 211 Вт/см и использования тяжелой воды на старте каждой кам-

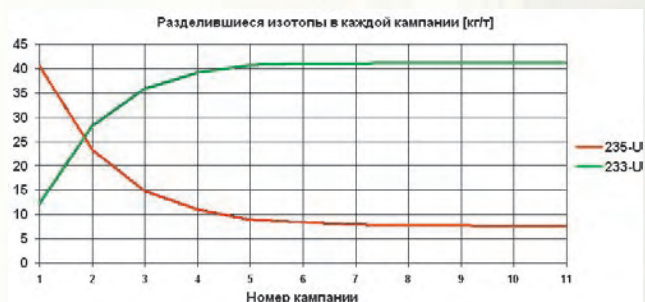


Рис. 4. Удельные значения изотопов  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  в топливе, выгорающих реакцией деления во время каждой кампании

пании в режиме четырехлетних кампаний с замыканием по всем долгоживущим актиноидам.

Рис. 4 показывает резкое изменение удельных значений разделившихся изотопов  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  в течение первых 4-х кампаний и их практическое постоянство при дальнейшем облучении. Обращает на себя внимание, что в первой кампании в основном (~74 %) делится стартовый изотоп  $^{235}\text{U}$ , во второй кампании вклад в деление изотопа  $^{233}\text{U}$  уже превышает аналогичное значение для  $^{235}\text{U}$ , а после 4-х кампаний основным делящимся изотопом (~70 %) становится нарабатываемый изотоп  $^{233}\text{U}$ . В последующих кампаниях вклад в деление изотопа  $^{235}\text{U}$  поддерживается на уровне ~15 %.

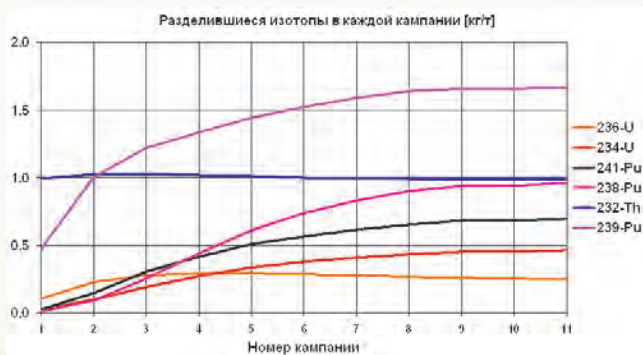


Рис. 5. Удельные значения изотопов тория, плутония и урана в топливе, выгорающих реакцией деления во время каждой кампании

Рис. 5 показывает удельные значения изотопов тория, плутония и урана в топливе, которые выгорают реакцией деления во время каждой кампании. Видно, что торий делится равномерно (~1 кг/т) во всех кампаниях. Деление изотопов других элементов нарастает по мере их наработки. Порогово делящиеся изотопы  $^{236}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{232}\text{Th}$  делятся только быстрыми нейтронами. Обращает на себя внимание малость (<1,7 кг/т) вклада в деление изотопа  $^{239}\text{Pu}$  относительно его вклада при использовании стандартного урануранового топлива.

На рис. 6 приведены удельные значения изотопов нептуния, плутония и урана в топливе, выгорающих реакцией деления во время каждой кампании. Временная зависимость и абсолютные значения делений определяются их наработкой. Из-за порогового характера деления они делятся только быстрыми нейтронами.

Еще раз отметим изменение вкладов делений разных изотопов в общее число делений (энерговыделение) в зависимости от порядкового номера кампании. Вклад делений ядер  $^{235}\text{U}$  составляет 74 % в первой кампании и 14 % в де-

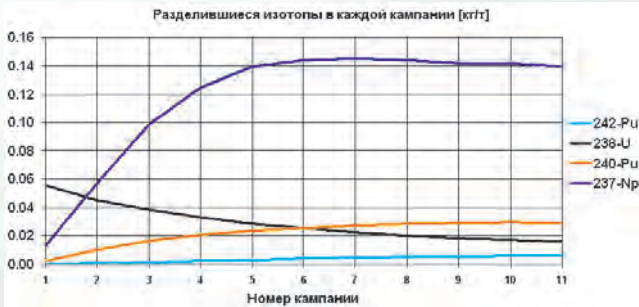


Рис. 6. Удельные значения изотопов нептуния, плутония и урана в топливе, выгорающих реакцией деления во время каждой кампании

сятой кампании. При этом вклад делений ядер  $^{233}\text{U}$  составляет 22 % в первой кампании и 76 % в десятой кампании. С ростом номера кампании повышается доля делений изотопов более тяжелых элементов, в том числе изотопов плутония.

На рис. 7–8 приведены удельные значения изотопов топлива, испытывающих радиационный захват нейтронов во время каждой из 11 последовательных кампаний. Видно, что наиболее интенсивный захват нейтронов осуществляется стартовым сырьевым изотопом  $^{232}\text{Th}$  с наработкой основного делящегося изотопа  $^{233}\text{U}$  в течение всех одиннадцати кампаний. К сожалению, деление стартового активного изотопа  $^{235}\text{U}$  нейтронами сопровождается сравнительно интенсивным радиационным захватом нейтронов (особенно в первых ~5 кампаниях), что происходит при одновременной потере нейтрона, активного ядра  $^{235}\text{U}$  и наработке поглощающего нейтроны изотопа  $^{236}\text{U}$  с последующей неизбежной наработкой поглотителей нейтронов изотопов  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ .

Понижение поглощения нейтронов этой цепочкой поглотителей происходит после значительного выгорания изотопа  $^{235}\text{U}$ . Деление нарабатываемого активного изотопа  $^{233}\text{U}$  нейтронами сопровождается радиационным захватом нейтронов, что происходит при одновременной потере нейтрона, активного ядра  $^{233}\text{U}$  и наработке изотопа  $^{234}\text{U}$ , являющегося сырьевым изотопом при наработке активного изотопа  $^{235}\text{U}$ . Это выгодно отличает его от  $^{236}\text{U}$ , на котором нарабатывается цепочка поглотителей нейтронов. Рост радиационного захвата нейтронов  $^{234}\text{U}$  до выхода на равновесное значение будет продолжаться в последующих кампаниях. Стартовый изотоп  $^{238}\text{U}$  выгорает, поглощая нейтроны, с наработкой активного изотопа  $^{239}\text{Pu}$  и изотопов более тяжелых элементов.

В течение первых одиннадцати кампаний продолжается рост количества изотопов плуто-

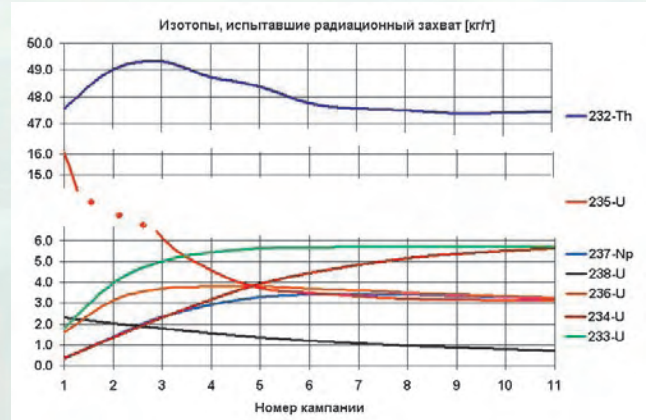


Рис. 7. Удельные значения изотопов тория, урана и нептуния в топливе, испытывающих радиационный захват нейтронов во время каждой кампании

ния, испытывающих радиационный захват нейтронов, по мере увеличения времени облучения. Сравнительно низкие абсолютные значения этих изотопов обусловлены делением предшествующих изотопов. Понижение ядер  $^{233}\text{Pa}$  по мере увеличения времени облучения определяется понижением количества изотопов тория, испытывающих радиационный захват нейтронов. При этом радиационный захват нейтронов  $^{233}\text{Pa}$  сопровождается одновременной потерей нейтрона и активного изотопа  $^{233}\text{U}$ .

Итак, на рис. 1–8 представлена подробная картина преобразования изотопного состава и нейтронной кинетики при рециклировании актиноидного состава топлива в одиннадцати последовательных кампаниях со стартовой загрузкой высокообогащенного урана и тория. Видно, что в рассмотренном сценарии обеспечивается глубокая утилизация обогащенного урана с тенденцией выхода на замкнутый торий-уран-плутониевый топливный цикл, в котором основным энерговыделяющим изотопом является  $^{233}\text{U}$ . Просматривается возможность самообеспечения топлива активными изотопами и самоограничения актиноидного состава изотопами плутония.

Рассмотрим материальный баланс [кг/т], реализованный в одиннадцати последовательных кампаниях на тонну тяжелого металла в оксидном торий-уран-плутониевом топливе. Израсходовано на стартах одиннадцати кампаний 178,2 [кг/т] изотопа  $^{235}\text{U}$ , из них разделилось 145,7 [кг/т], осталось в отработавшем топливе 14,6 [кг/т] и 17,9 [кг/т] испытало радиационный захват нейтронов. Из израсходованных 17,7 [кг/т] изотопа  $^{238}\text{U}$  осталось в отработавшем топливе 3,06 [кг/т], разделилось 0,321 [кг/т] и 14,36 [кг/т] испытало радиационный захват нейтронов. Израсходовано

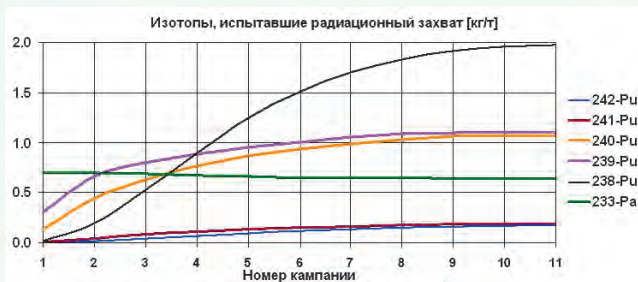


Рис. 8. Удельные значения изотопов плутония и протактиния в топливе, испытывающих радиационный захват нейтронов во время каждой кампании

на стартах кампаний 1345,1 [кг/т] тория, из них непосредственно разделилось 11,01 [кг/т], осталось в отработавшем топливе 808 [кг/т] и 526,1 [кг/т] испытало радиационный захват нейтронов.

В одиннадцати последовательных кампаниях нарабатывались и выгорали изотопы протактиния, урана, нептуния и плутония. В том числе нарабаталось и разделилось 403,2 [кг/т] изотопа  $^{233}\text{U}$ , что составляет ~68 % от полного числа разделившихся ядер. При этом в отработавшем топливе еще осталось 62,6 [кг/т] этого изотопа, что обеспечивает высокие делительные свойства отработавшего топлива. В одиннадцати последовательных кампаниях разделилось 145,7 [кг/т] изотопа  $^{235}\text{U}$ , что составляет ~82 % от их загруженного числа и только ~24 % от полного числа разделившихся ядер. В отработавшем топливе осталось 56,74 [кг/т] остальных актиноидных изотопов, суммарный вклад которых в деление составил 35,8 [кг/т], что составляет ~6 % от полного числа разделившихся ядер. Вклад в деление непосредственно стартового изотопа  $^{232}\text{Th}$  находится на уровне ~2 %. При дальнейшем рециклировании будут возрастать доли делений стартового изотопа  $^{232}\text{Th}$  и нарабатываемого изотопа  $^{233}\text{U}$ .

Всего разделилось 596 [кг/т] тяжелых ядер. В отработавшем топливе содержится 62,6 [кг/т] изотопа  $^{233}\text{U}$ ; 14,6 [кг/т] изотопа  $^{235}\text{U}$ ; 3,2 [кг/т] изотопа  $^{239}\text{Pu}$  и 0,95 [кг/т] изотопа  $^{241}\text{Pu}$ . Отработавшее после одиннадцати последовательных кампаний топливо кардинально поменяло изотопный состав, по своим делительным характеристикам практически не уступает стартовому топливу. При дальнейшем рециклировании топлива в нем продолжится понижение удельного содержания поглотителей нейтронов  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{238}\text{U}$ , а делительные свойства будут улучшаться.

Наряду с отмеченными выше возможностями экономии нейтронов представляется эффек-

тивным улучшение нейтронного баланса путем извлечения нептуния при переработке отработавшего топлива, а также сокращения времени кампании (например, 3 года). При этом понижается поглощение нейтронов в следующей кампании не только нептунием, но и нарабатываемом на нем изотопом  $^{238}\text{Pu}$ , соответственно улучшается нейтронный баланс. Выделенный нептуний может использоваться в качестве исходного сырьевого материала для наработки изотопа  $^{238}\text{Pu}$ , используемого в качестве теплового источника, а также может быть сожжен в реакторном топливе с более подходящим нейтронным балансом. Сокращение времени кампании сопровождается уменьшением поглощения нейтронов осколками деления и другими нарабатываемыми поглотителями нейтронов.

В заключение подчеркнем основные результаты выполненной работы. Предложен эффективный и безопасный способ утилизации высокообогащенного урана с торием в наиболее отработанных реакторах типа ВВЭР с наработкой изотопа  $^{233}\text{U}$  при использовании Th-U-Pu оксидного топлива, тяжелой воды и ее разбавления легкой водой. Поглощение нейтронов изотопами  $^{232}\text{Th}$  с наработкой  $^{233}\text{U}$  является наиболее эффективным их использованием, повышающим качество ядерного топлива. В два раза меньшее количество нарабатываемого  $^{233}\text{U}$  относительно выгорающего  $^{235}\text{U}$  при удержании ячейки в критическом состоянии экономит нейтроны и повышает вероятность выгорания порогово делящихся изотопов. Отработавшее после одиннадцати последовательных кампаний топливо по своим делительным характеристикам практически не уступает стартовому топливу. При дальнейшем рециклировании топлива в нем продолжится понижение удельного содержания поглотителей нейтронов  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{238}\text{U}$ , а делительные свойства будут улучшаться.

Разумеется, требуется инженерная проработка обеспечения предложенного сценария работы реактора и технологий замкнутого торий-уран-плутониевого топливного цикла.

Благодарим Ю. В. Фролову за помощь при проведении расчетов.

**МАРШАЛКИН Василий Ермолаевич** –  
ведущий научный сотрудник ИТМФ РФЯЦ-  
ВНИИЭФ, кандидат физ.-мат. наук  
**ПОВЫШЕВ Валерий Михайлович** –  
старший научный сотрудник  
ИТМФ РФЯЦ-ВНИИЭФ