

## ЕСТЕСТВЕННАЯ ТРАНСМУТАЦИЯ АКТИНОИДОВ РЕАКЦИЕЙ ДЕЛЕНИЯ В ЗАМКНУТОМ ТОРИЙ-УРАН-ПЛУТОНИЕВОМ ТОПЛИВНОМ ЦИКЛЕ

**В. Е. Маршалкин, В. М. Повышев**

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров Нижегородской обл.

Показано, что в замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле при переработке одной тонны облученного топлива после каждой четырехлетней кампании радиоактивные отходы будут содержать ~54 кг продуктов деления, ~0,8 кг тория, ~0,10 кг изотопов урана, ~0,005 кг изотопов плутония, ~0,002 кг нептуния и «следовые» значения изотопов америция и кюрия, что качественно упрощает обращение с высокоактивными отходами ядерной энергетики.

**Ключевые слова:** реактор типа ВВЭР, теплоноситель D<sub>2</sub>O и его разбавление H<sub>2</sub>O, замкнутый торий-уран-плутониевый топливный цикл, равновесный изотопный состав, трансмутация актиноидов реакцией деления.

### NATURAL TRANSMUTATION OF ACTINIDES BY THE FISSION REACTION IN THE CLOSED THORIUM-URANIUM-PLUTONIUM FUEL CYCLE / V. Ye. MARSHALKIN,

**V. M. POVYSHEV** // It is shown that in the closed thorium-uranium-plutonium fuel cycle when processing one ton of irradiated fuel after each of four-year campaigns radioactive wastes will contain ~54 kg of fission products, ~0.8 kg thorium, ~0.10 kg if uranium isotopes, ~0.005 kg of plutonium isotopes, ~0.002 kg of neptunium and <trace> amounts of isotopes of americium and curium, that qualitatively simplifies the treatment of high-level wastes of nuclear power engineering.

**Key words:** PWR- or VVER-type reactor, D<sub>2</sub>O coolant and its dilution with H<sub>2</sub>O, thorium-uranium-plutonium fuel cycle, balanced isotopic composition, transmutation of actinides by fission reaction.

### Введение

Изменение удельного содержания каждого изотопа, подвергающегося облучению нейтронами в реакторе, обуславливается тремя реакциями: делением ядра, радиационным захватом нейтрона ядром и реакцией ( $n, 2n$ ) на ядре. В связи с превышением вероятности радиационного захвата нейтрона ядром над реакцией ( $n, 2n$ ) на ядре изотопное преобразование на этих реакциях в реакторах идет в сторону утяжеления ядер. Реакция деления ядер является основной целевой реакцией, определяющей энерговыделение и размножение нейтронов. При этом только процесс деления ядер переводит актиноиды в продукты деления и

качественно трансмутирует тяжелые ядра, а два других процесса сопровождаются изотопным преобразованием актиноидов. Представляется очевидным, чем больше активных ядер ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ) в изотопной цепочке стартового изотопа ( $^{232}\text{Th}$ ), тем выше вероятность его трансмутации в продукты деления. В соответствии с этим естественно ожидать, что использование  $^{232}\text{Th}$  в качестве сырьевого изотопа, его перевод в последовательном радиационном захвате нейтронов в более тяжелые ядра  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ , делящиеся нейтронами всего спектра, и в промежуточные пороговые изотопы, делящиеся быстрыми нейтронами, будет сопровождаться наиболее глубоким его переводом в продукты деления в

замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле.

В статье [1] путем расчетно-теоретических исследований показана возможность самовоспроизводства изотопов урана  $^{233}\text{U} + ^{235}\text{U}$  в торий-урановом ( $^{232}\text{Th}$ - $^{233}\text{U}$ ) оксидном топливе в реакторах типа PWR (ВВЭР) с использованием тяжелой воды в качестве теплоносителя и ее разбавления легкой водой. Эта возможность в основном обеспечивается нейтронно-ядерными свойствами изотопов  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{232}\text{Th}$ , наличием уникальной способности воды, используемой в качестве теплоносителя и замедлителя, менять свой состав в процессе работы реактора. Использование  $\text{D}_2\text{O}$  в начале кампании и ее разбавление легкой водой  $\text{H}_2\text{O}$  в процессе кампании смягчает энергетическое распределение нейтронов, значительно повышает реактивность выгорающего топлива, устраняет необходимость использования выгорающих поглотителей и обеспечивает эффективное использование нейтронов на деление последующих ядер и воспроизводство беспорогово делящихся изотопов. Обеспечение самовоспроизводства топлива в замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле позволяет выйти на равновесный [2] изотопный состав топлива, характеризующийся низким удельным содержанием изотопов тяжелых элементов, и, соответственно, их низким содержанием в радиоактивных отходах, получаемых при переработках облученного топлива.

## 1. Расчетная модель

Проведение нейтронно-физических расчетов в полном объеме для всего реактора является сложным. Задача качественно упрощается использованием ячеечного (бесконечная среда) приближения. Ниже все численные оценки выполнены для ячейки водо-водяного энергетического реактора ВВЭР. Как и в предыдущих статьях [1, 2], за основу была принята ячейка реактора PWR, предложенная МАГАТЭ, нейтронно-физические расчеты для которой выполнены в ведущих лабораториях мира, а результаты представлены в работе [3]. Работа проводилась в рамках программы по изучению возможности ториевого топливного

цикла для сдерживания наработки энергетического плутония и уменьшения токсичности долгоживущих радиоактивных отходов ядерной энергетики.

Геометрия ячейки характеризуется следующими параметрами: внешний радиус топлива  $R_T = 0,47$  см; внешний радиус оболочки топлива  $R_{об} = 0,54$  см; внешний радиус воды  $R_B = 0,85$  см. Топливо представляет смесь двуокиси тория и энергетического плутония. Средняя температура топлива  $T_T = 1023$  К, средняя температура воды  $T_B = 583$  К. Удельная мощность в ячейке  $P = 211$  Вт/см. Принято приближение зеркального отражения нейтронов.

В статье [4] описывается методика расчетов и сравниваются результаты наших расчетов и других авторов [3] по широкому кругу функционалов. Сравнение показало, что значения, полученные нами, находятся в пределах разброса результатов других авторов. Естественно ожидать, что замена плутония на уран, а легкой воды на тяжелую воду не повлияет на точность расчетов.

Следует отметить, что в реальном реакторе с целью экономии нейтронов для повышения воспроизводства  $^{233}\text{U}$ , по-видимому, целесообразно использование ториевого бланкета для поглощения нейтронов утечки, что опускается из рассмотрения при дальнейших оценках.

## 2. Содержание $^{233}\text{U}$ в ячейке с $^{233}\text{U}$ - $^{232}\text{Th}$ оксидным топливом в критическом состоянии в зависимости от водотопливного отношения и состава воды

В табл. 1 приведено удельное содержание  $^{233}\text{U}$  в кг на тонну тяжелого металла в  $^{233}\text{U}$ -Th оксидном топливе в критическом состоянии рассмотренной выше ячейки в зависимости от водотопливного отношения и разбавления тяжелой воды легкой водой. Изменение водотопливного отношения осуществляется изменением радиуса воды  $R_B$ , а разбавление тяжелой воды легкой водой осуществляется изменением параметра  $\alpha$  в водяной смеси  $c = \alpha \cdot \text{D}_2\text{O} + (1 - \alpha) \cdot \text{H}_2\text{O}$  теплоносителя.

Рассчитанные значения удельного содержания  $^{233}\text{U}$  (кг/т) в ячейке с  $^{233}\text{U}$ - $^{232}\text{Th}$  оксидным топливом в критическом состоянии в зависимости от радиуса воды  $R_в$  (см), водотопливного отношения  $V_в/V_т$  и параметра  $\alpha$ -разбавления тяжелой воды легкой водой

R	$\frac{V_в}{V_т}$	$\alpha$						
		1	0,95	0,90	0,80	0,75	0,50	0
0,7	0,898	72,0	60,3	50,8	36,7	31,4	20,8	16,3
0,75	1,226	63,0	48,9	38,7	27,3	24,4	18,2	15,5
0,8	1,577	56,0	40,0	30,6	22,4	20,6	16,6	15,3
0,85	1,95	45,0	32,5	25,5	20,0	18,5	16,0	15,1

Из табл. 1 видно, что понижение водотопливного отношения (понижение радиуса воды  $R_в$ ) сопровождается повышением удельного содержания  $^{233}\text{U}$  (кг/т) в топливе, необходимого для удержания ячейки в критическом состоянии. Разбавление тяжелой воды легкой водой сопровождается понижением удельного содержания  $^{233}\text{U}$  (кг/т) в топливе, необходимого для удержания ячейки в критическом состоянии. Таким образом, видна возможность значительного влияния водотопливного отношения и состава воды на топливную загрузку ячейки (реактора).

Наиболее высокое удельное содержание изотопа  $^{233}\text{U}$  в  $^{233}\text{U}$ - $^{232}\text{Th}$  топливе при использовании в качестве замедлителя тяжелой воды  $\text{D}_2\text{O}$  в стартовом состоянии реактора может рассматриваться как запас реактивности системы без необходимости его компенсации поглотителями нейтронов. Подмешивание легкой воды в замедлителе является способом реализации этого запаса реактивности для поддержания ячейки (реактора) в критическом состоянии по мере выгорания реакцией деления стартового  $^{233}\text{U}$  и наработки поглотителей нейтронов при соблюдении эффективной экономии нейтронов. Таким образом, найден способ обеспечения оптимальной нейтронной кинетики и эффективного изотопного преобразования в  $^{233}\text{U}$ - $^{232}\text{Th}$  оксидном топливе водо-водяного реактора с высоким воспроизводством изотопов  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  и сравнительно простой реализацией.

### 3. Рециклирование топлива в замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле

Основное отличие стартового торий-уранового топлива от уран-уранового заключается в появлении  $^{233}\text{U}$  в изотопном составе облученного топлива. Этот изотоп характеризуется наиболее высоким значением сечения деления и наиболее низким значением сечения радиационного захвата нейтронов при всех значениях их энергии. Поэтому подавляющая часть вторичных нейтронов, сопровождающих деление  $^{233}\text{U}$ , поглощается либо снова  $^{233}\text{U}$ , либо  $^{232}\text{Th}$  с наработкой  $^{233}\text{U}$ . При этом относительная доля поглощенных нейтронов с наработкой  $^{234}\text{U}$  получается наиболее низкой относительно аналогичных значений для других активных изотопов. Число вторичных нейтронов на поглощенный  $^{233}\text{U}$  нейтрон любой энергии превышает два нейтрона, что при их экономии позволяет одновременно поддерживать реакцию деления последующих ядер и воспроизводство делящихся ядер. Радиационный захват нейтронов  $^{234}\text{U}$  сопровождается наработкой активного изотопа  $^{235}\text{U}$ , который делится нейтронами всех значений энергии, что обуславливает эффективную трансмутацию сырьевого тория при делении изотопов  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  и относительно низкую наработку  $^{236}\text{U}$  и изотопов последующих более тяжелых элементов.

Дополнительным источником нейтронов является деление нейтронами высокой энергии порогово-делящихся  $^{232}\text{Th}$ , используемого

в качестве сырьевого материала, а также ядер ( $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ), нарабатываемых в процессе облучения. Для требуемого ужесточения спектра нейтронов достаточно использования в качестве теплоносителя тяжелой воды вместо легкой воды и уменьшения водо-топливного отношения в реакторах типа ВВЭР с торий-уран-плутониевым топливом и нет необходимости в быстрых реакторах с металлическим теплоносителем.

Сравнительно низкая наработка  $^{236}\text{U}$  и последующих долгоживущих пороговых изотопов тяжелых элементов ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ) в торий-урановом топливе сопровождается поглощением нейтронов на порядок с меньшей вероятностью, чем в уран-урановом топливе. При этом пониженное заселение активных изотопов  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Pu}$  и их деление нейтронами любой энергии улучшает нейтронный баланс и дополнительно ограничивает наработку изотопов америция и последующих элементов. Таким образом, использование сырьевого тория, тяжелой воды и ее разбавления легкой водой позволяет замкнуть торий-уран-плутониевый топливный цикл с глубокой трансмутацией актиноидов реакцией деления ядер. Относительно малые удельные значения изотопов нептуния, плутония, америция позволяют надеяться на их включение в состав свежего топлива. Сравнительно низкое содержание изотопов плутония в торий-уран-плутониевом топливе соответственно понижает в нем нейтронный фон.

Все это можно увидеть в наших статьях [1, 2], где приведены результаты расчетов изменения изотопного состава и нейтронной кинетики в десяти последовательных кампаниях. Там же проиллюстрированы и само воспроизводство топлива, и выход на равновесный изотопный состав в торий-уран-плутониевом топливе для ячейки МАГАТЭ с уменьшенным радиусом воды, равным  $R_b = 0,70$  см. Повышение водо-топливного отношения обуславливает понижение напряженности с теплоотводом, радиационной нагрузки на корпус реактора и удельного содержания изотопа  $^{233}\text{U}$  в стартовой загрузке первой кампании, что мо-

жет оказаться важным. Ниже приведены результаты аналогичных расчетов для более высокого водо-топливного отношения с радиусом воды, равным  $R_b = 0,75$  см, с целью дополнительного изучения влияния водо-топливного отношения на нейтронную кинетику и изотопное преобразование в работающем реакторе.

### 3.1. Изотопное преобразование топлива

На рис. 1 приведено изменение удельного содержания наиболее важных актиноидов при их рециклировании в десяти четырехлетних последовательных кампаниях для ячейки с радиусом воды, равным  $R_b = 0,75$  см (водо-топливным отношением  $V_b/V_t = 1,23$ ).

Наибольшему изменению удельного содержания как в процессе каждой кампании (62–56,5 кг/т), так и между кампаниями (стартовое удельное содержание изотопа  $^{232}\text{Th}$  в первой кампании равно 937 кг/т, в десятой – 897 кг/т) подвергается торий. Его выгорание в качестве сырьевого материала обеспечивает наработку и воспроизводство основного делящегося изотопа  $^{233}\text{U}$  и последующих изотопов в процессе каждой кампании. К остающемуся после каждой кампании торию и нарабатываемым актиноидам на старте последующей кампании добавляется необходимое для дальнейшего рециклирования количество сырьевого тория.

Обеспечение критического состояния на старте первой кампании потребовало 63 кг/т изотопа  $^{233}\text{U}$ , что на 9 кг/т меньше, чем для ячейки с радиусом воды, равным  $R_b = 0,70$  см. Как и в предыдущих расчетах с  $R_b = 0,70$  см, в начале каждой кампании наблюдается понижение содержания  $^{233}\text{U}$ , обусловленное выгоранием и задержкой его наработки из-за сравнительно большого периода полураспада  $^{233}\text{Pa}$ , равного ~27 суткам. Затем наработка  $^{233}\text{U}$  превышает его выгорание в течение ~3 лет облучения. Однако в течение ~4-го года облучения в первой и последующих кампаниях в отличие от ячейки с  $R_b = 0,70$  см наблюдается превышение выгорания над наработкой для ячейки с  $R_b = 0,75$  см. Таким образом, в настоящих расчетах происходит понижение

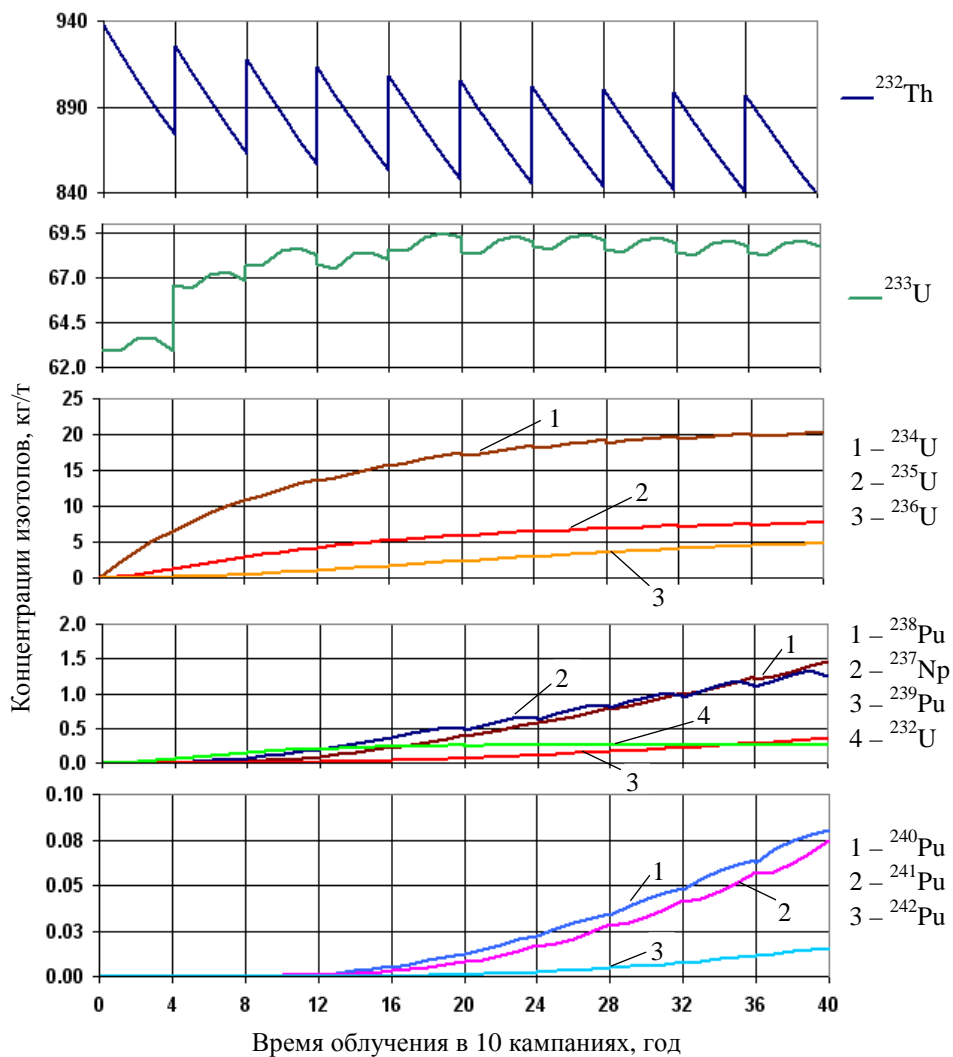


Рис. 1. Изотопное преобразование в десяти последовательных кампаниях

воспроизводства  $^{233}\text{U}$  относительно предыдущих расчетов. Следует отметить, что после окончания каждой кампании в облученном топливе содержится  $\sim 1,5$  кг/т изотопа  $^{233}\text{Pa}$ , который распадается в  $^{233}\text{U}$  и в расчетах добавляется к  $^{233}\text{U}$  при загрузке последующей кампании. При этом к извлеченному актиноидному составу после первой кампании для обеспечения критического состояния на старте второй кампании потребовалось добавить  $\sim 2,2$  кг/т изотопа  $^{233}\text{U}$ . Во всех остальных кампаниях оказалось, что нарабатываемое количество и состав актиноидов (с учетом распада  $^{233}\text{Pa}$  в  $^{233}\text{U}$ ) превышает на 1–2,5 % их необходимое количество для достижения критического состояния при загрузке последующей кампании, то есть имеет место расширенное воспроизводство топлива. После 4-й кам-

пании изменение удельного содержания  $^{233}\text{U}$  практически повторяется в последующих кампаниях. Таким образом при загрузках  $^{233}\text{U}$  на стартах первой кампании загружается 63 кг/т, во второй кампании расходуется  $64,4 + 2,2 = 66,6$  кг/т, а на финише 10-й кампании его содержание в топливе составляет  $68,7 + 1,4 = 70,1$  кг/т. При этом извлекается при переработке топлива после второй и последующих кампаний дополнительное количество  $^{233}\text{U}$  в смеси с другими актиноидами.

Удельное содержание  $^{234}\text{U}$  и более тяжелых долгоживущих изотопов и элементов растет с ростом числа кампаний до достижения соответствующих равновесных значений. Ниже будут приведены результаты оценок равновесных значений этих изотопов и элементов и времен выхода на них.

### 3.2. Удельные значения изотопов, испытывающих деление в каждой из десяти кампаний

На рис. 2 представлены удельные значения изотопов, испытывающих деление в каждой из десяти кампаний. В соответствии с принятой постоянной удельной мощностью в ячейке  $P = 211$  Вт/см в каждой кампании делится одинаковое количество тяжелых ядер, равное  $\sim 54,2$  кг/т.

Видно, что основным делящимся изотопом является  $^{233}\text{U}$  на протяжении всех десяти кампаний. Его вклад в общее число разделившихся ядер меняется от 52,5 кг/т в первой кампании до 47,6 кг/т в десятой. Таким образом, основная доля трансмутации тория реакцией деления осуществляется на стадии прохождения изотопа  $^{233}\text{U}$ . Большая загрузка Th, мало меняющаяся в кампаниях, и сравнительно жесткий спектр нейтронов, формирующийся в системе, обуславливают практически одинаковое количество разделившихся ядер

Th в каждой кампании на уровне  $\sim 1,2$  кг/т. Деление ядер  $^{235}\text{U}$  осуществляется нейтронами любой энергии, растет с ростом порядкового номера кампании по мере его наработки, выходит на уровень  $\sim 4$  кг/т и повышает трансмутацию тория реакцией деления. Его вклад в общее число разделившихся ядер выходит на второе место после  $^{233}\text{U}$ , начиная с 3-й кампании. Последовательное деление изотопов  $^{233}\text{U}$  и  $^{235}\text{U}$  в ториевом топливе сопровождается не только рождением нейтронов, но и ослабляет процесс наработки более тяжелых актиноидов на выгоревшее ядро тория, что качественно улучшает и нейтронную кинетику, и изотопное преобразование в ториевом топливе относительно стандартного уранового топлива. Деление ядер  $^{234}\text{U}$  осуществляется только быстрыми нейтронами, поэтому их вклад в количество делящихся ядер относительно мал и растет по мере их наработки с ростом порядкового номера кампании.

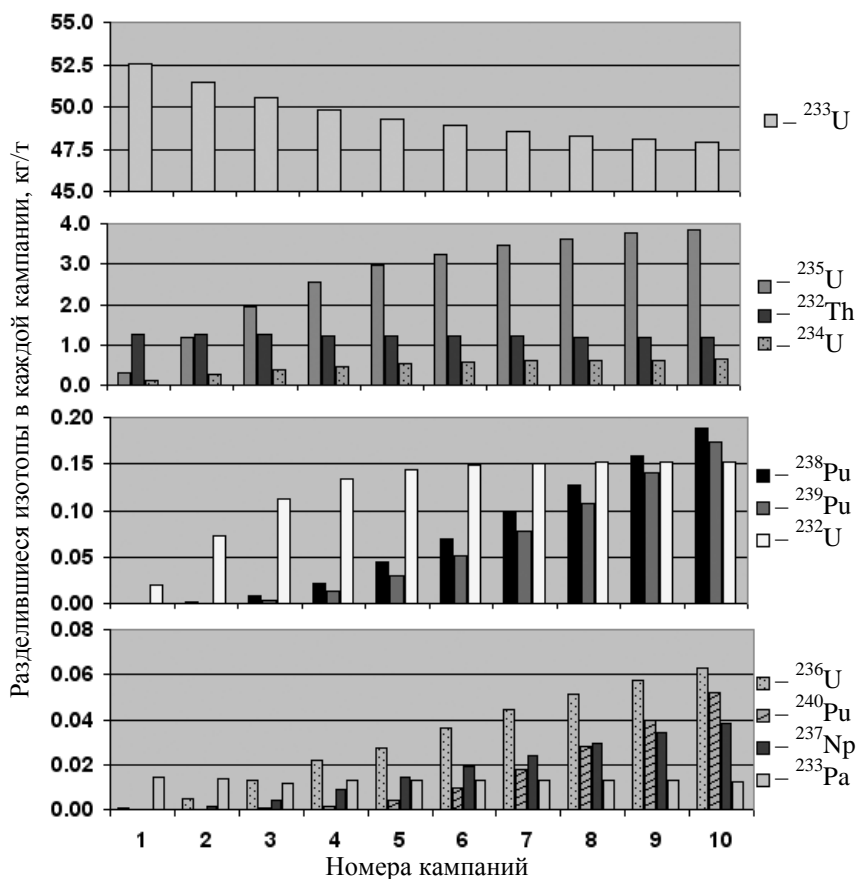


Рис. 2. Количество изотопов, испытывавших деление в каждой из десяти кампаний

Вклад ядер более тяжелых элементов, в том числе изотопов плутония, в общее число разделившихся ядер в первых десяти кампаниях незначителен, но растет с ростом порядкового номера кампании.

### 3.3. Удельные значения изотопов, испытывающих радиационный захват нейтронов в каждой из десяти кампаний

На рис. 3 представлены удельные значения изотопов, испытывающих радиационный захват нейтронов в каждой из десяти кампаний.

Наибольшей интенсивностью радиационного захвата нейтронов характеризуется сырьевой изотоп  $^{232}\text{Th}$ , который отличается максимальной стартовой загрузкой в каждой кампании. В первой кампании испытало радиаци-

онный захват нейтронов  $\sim 62$  кг/т тория. В последующих кампаниях это значение уменьшается в связи с наработкой других ядер-поглотителей нейтронов, оно равно  $\sim 56,5$  кг/т в десятой кампании. Следующим по интенсивности радиационного захвата нейтронов изотопом является  $^{233}\text{U}$ , интенсивность захватов которого на порядок ниже, чем у тория, и характеризуется очень медленным спадом с ростом номера кампании в соответствии с понижением содержания  $^{232}\text{Th}$ . При этом теряется нейтрон и неэффективно выгорает хорошо делящееся ядро  $^{233}\text{U}$ , что отрицательно сказывается на нейтронном балансе и содержании  $^{233}\text{U}$ .

Относительно высокой интенсивностью радиационного захвата нейтронов (она растет с ростом номера кампании) характеризуется нарабатываемый изотоп  $^{234}\text{U}$ . Этот изотоп

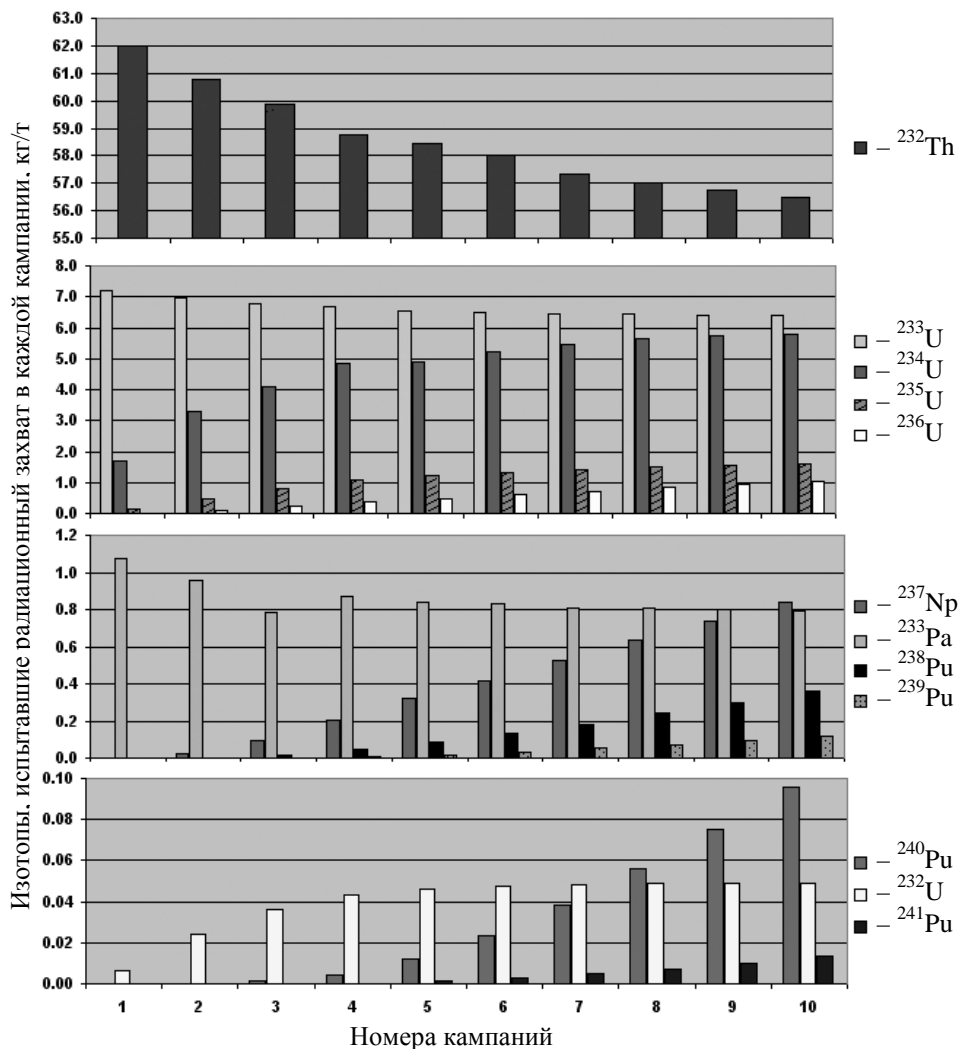


Рис. 3. Количество изотопов, испытывающих радиационный захват нейтронов в каждой из десяти кампаний

является сырьевым изотопом при наработке активного изотопа  $^{235}\text{U}$ , поэтому радиационный захват нейтронов этим изотопом является их эффективным использованием. Радиационный захват нейтронов изотопом  $^{235}\text{U}$  в рассмотренных десяти кампаниях характеризуется пониженной интенсивностью относительно предшественников из-за его меньшего содержания и конкуренции с делением самого  $^{235}\text{U}$ . Важно отметить, что это понижение распространяется и на последовательные захваты нейтронов более тяжелыми порогово-делящимися изотопами  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  и качественно улучшает нейтронный баланс в ториевом топливе относительно стандартного уранового топлива. Вместе с этим наблюдается рост радиационного захвата нейтронов изотопами  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  с ростом номера кампании. Радиационный захват нейтронов изотопами  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  в рассмотренных десяти кампаниях характеризуется пониженной интенсивностью относительно предшественников из-за его конкуренции с делением самих изотопов плутония.

Особого внимания заслуживает радиационный захват нейтронов изотопом  $^{233}\text{Pa}$ , который увеличивает число нейтронов в изотопе и вследствие этого препятствует образованию наиболее активного  $^{233}\text{U}$ . Понижению вероятности этого негативного процесса может способствовать понижение плотности нейтронного потока (удельной мощности) в системе.

#### **4. Равновесный изотопный состав торий-уран-плутониевого топливного цикла и времена выхода изотопов на равновесные значения**

Равновесный изотопный состав торий-уран-плутониевого топлива и времена выхода изотопов на равновесные значения получены с использованием ранее [2] принятых приближений.

Результаты расчетов, начиная с 5-й кампании (см. рис. 1) показывают практически постоянное содержание изотопа  $^{233}\text{U}$  (~68 кг/т) в топливе стартовых композиций при увеличе-

нии содержания нарабатываемых более тяжелых изотопов и элементов за счет выгорания  $^{232}\text{Th}$ . Это позволяет оценить равновесное содержание нарабатываемых изотопов (более тяжелых, чем  $^{233}\text{U}$ ) в рециклируемом топливе для каждого более тяжелого изотопа, используя систему уравнений изотопной кинетики при следующих условиях:

- равенстве нулю скорости изменения содержания изотопов, начиная с  $^{233}\text{U}$ ;
- фиксированном начальном содержании  $^{233}\text{U}$ , равном 68 кг/т;
- скоростях реакций деления ядер и радиационного захвата нейтронов ими, равных значениям на старте (на финише) десятой кампании. При этом система дифференциальных уравнений превратилась в систему алгебраических уравнений относительно равновесных значений изотопов и элементов тяжелее  $^{233}\text{U}$ , заселяемых в соответствии с непрерывным облучением нейтронами.

Во втором столбце табл. 2 приведены равновесные значения (кг/т) долгоживущих изотопов, полученные с использованием значений скоростей реакций, соответствующих старту десятой кампании. В порядке оценки влияния разбавления тяжелой воды легкой водой на полученные значения расчет повторен с использованием значений скоростей реакций, соответствующих концу десятой кампании. Результаты этого расчета приведены в 3-м столбце табл. 2. В соответствии с изменением скоростей реакций деления ядер и радиационного захвата нейтронов ими в процессе кампаний в качестве равновесных значений для каждого изотопа следует принимать промежуточные значения между значениями 2-го и 3-го столбцов. Полученные значения равновесных значений долгоживущих изотопов являются оценкой сверху, потому что при ее проведении содержание всех изотопов, кроме  $^{233}\text{U}$ , непрерывно увеличивалось с увеличением времени облучения. В расчетах изменения изотопного содержания в десяти последовательных кампаниях содержание всех изотопов понижалось на 1–2,5 % после каждой кампании, что соответствует принятому регламенту рециклирования топлива.



Значения времен подхода к этим равновесным значениям приведены в последующих столбцах и получены следующим способом. Решалась система дифференциальных уравнений относительно скоростей изменения изотопного состава с использованием значений скоростей реакций, соответствующих старту десятой кампании, с начальным (при  $t = 0$ ) условием содержания  $^{233}\text{U}$ , принятого равным 68 кг на тонну тяжелого металла. Для каждого изотопа определялись значения времен, при которых его содержание на 5; 1; 0,1 % ниже равновесного. Следует отметить, что выявленные ранее [2] закономерности и особенности в значениях равновесных значений и времен подхода к ним сохраняются и при увеличении водотопливного отношения.

Несмотря на относительно малость вероятности радиационного захвата нейтронов  $^{233}\text{U}$ , наибольшую вероятность его деления и высокую вероятность радиационного захвата нейтронов нарабатываемым  $^{234}\text{U}$ , со временем

накапливается значительное количество  $^{234}\text{U}$ , которое и определяет накопление более тяжелых изотопов и элементов. Равновесное значение  $^{235}\text{U}$  на порядок меньше содержания основного делящегося изотопа  $^{233}\text{U}$ , что определяется его наработкой при поглощении нейтронов  $^{234}\text{U}$  и выгоранием в процессах деления и радиационного захвата нейтронов  $^{235}\text{U}$ . Время выхода  $^{235}\text{U}$  на равновесное значение намного дольше, чем аналогичного выхода для  $^{234}\text{U}$ . Следует отметить, что деление  $^{235}\text{U}$  понижает вероятность радиационного захвата нейтронов  $^{235}\text{U}$  и последующими изотопами и сопровождается значимым улучшением нейтронного баланса в активной зоне. Относительно большое количество  $^{236}\text{U}$  обусловливается сравнительно высокой вероятностью радиационного захвата нейтронов  $^{235}\text{U}$  относительно вероятности радиационного захвата нейтронов самим  $^{236}\text{U}$ . Это же обуславливает значительное повышение времени выхода на равновесное значение для  $^{236}\text{U}$ .

Таблица 2

*Оценка равновесных значений (кг/т) и продолжительности облучения (годы) для достижения содержания на 5, 1, 0,1 % ниже равновесных значений долгоживущих изотопов с использованием скоростей реакций из десятой кампании и содержания  $^{233}\text{U}$ , принятого равным 68 кг на тонну тяжелого металла*

Изотопы	Содержание в равновесном состоянии при скорости реакций		Годы достижения равновесного состояния с отклонением		
	в начале 10-й кампании	в конце 10-й кампании	5,0 %	1,0 %	0,1 %
$^{244}\text{Cm}$	0,07039	0,07408	137,7	171,9	219,0
$^{243}\text{Am}$	0,08024	0,08498	131,9	166,0	213,2
$^{242}\text{Pu}$	0,11733	0,09874	125,5	159,5	206,6
$^{242}\text{Cm}$	0,0089	0,00909	122,5	156,4	203,5
$^{241}\text{Pu}$	0,30267	0,3191	116,1	149,8	196,8
$^{241}\text{Am}$	0,07479	0,06955	121,9	155,7	202,8
$^{240}\text{Pu}$	0,42482	0,26723	112,4	146,1	193,2
$^{239}\text{Pu}$	1,07286	1,05619	105,7	139,0	185,9
$^{238}\text{U}$	0,01405	0,0145	99,6	133,3	180,3
$^{238}\text{Pu}$	3,30856	3,71721	100,4	133,6	180,5
$^{237}\text{Np}$	2,09228	2,27407	86,7	119,1	165,4
$^{236}\text{U}$	6,73265	7,16813	80,3	112,6	159,0
$^{235}\text{U}$	7,64164	8,30371	50,0	78,2	124,2
$^{234}\text{U}$	20,70219	21,32126	43,2	71,6	117,8

Сравнительно низкое содержание  $^{237}\text{Np}$  и высокое содержание  $^{238}\text{Pu}$  обусловлены соответственно высоким и низким значениями сечений радиационного захвата нейтронов ими. Имеет место дальнейшее увеличение времени выхода на их равновесные значения. Низкое значение сечения радиационного захвата нейтронов  $^{238}\text{Pu}$ , сравнительно высокая относительная вероятность деления  $^{239}\text{Pu}$  сопровождаются уменьшением его равновесного значения и дальнейшим увеличением времени выхода на его равновесное значение.

Деление изотопов  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  нейтронами всех энергий дополнительно повышает глубину трансмутации выгоревшего тория, понижает их содержание и содержание последующих изотопов плутония, америция, кюрия. При этом увеличиваются времена их выхода на равновесные значения. Следует отметить низкий уровень наработки изотопов америция, кюрия и более тяжелых элементов, обусловленный заселением в последовательном захвате

нейтронов и выгоранием реакцией деления изотопов урана, нептуния, плутония, особенно беспорогово-делящихся  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ .

В порядке проверки устойчивости изотопного преобразования и нейтронной кинетики равновесного торий-уран-плутониевого топливного цикла выполнен расчет топливной кампании с использованием выше полученных равновесных значений (2-й столбец табл. 2) актиноидов в качестве стартовой топливной загрузки. При этом использовалось разбавление тяжелой воды легкой водой (набор значений  $\alpha$  и скоростей реакций), как в десятой кампании. Оказалось, что при использовании равновесных значений 2-го столбца табл. 2 для обеспечения критического состояния при последующей кампании достаточно 99,5 % актиноидов равновесного состава. Это иллюстрирует возможность замыкания топливного цикла по всем актиноидам и в равновесном изотопном составе. В табл. 3 приведено изменение изотопного состава в процессе

Таблица 3

*Удельное содержание (кг/т) актиноидов в зависимости от времени облучения, полученных со скоростями реакций начала 10-й кампании*

Изотопы	Концентрации изотопов (кг/т) в зависимости от времени облучения топлива и параметра $\alpha$ (год/ $\alpha$ )				
	0/1	1/0,965	2/0,95	3/0,932	4/0,91
$^{244}\text{Cm}$	7,00E-02	6,99E-02	7,00E-02	7,04E-02	7,12E-02
$^{243}\text{Am}$	7,98E-02	8,11E-02	8,28E-02	8,48E-02	8,69E-02
$^{242}\text{Pu}$	1,17E-01	1,16E-01	1,15E-01	1,14E-01	1,13E-01
$^{242}\text{Cm}$	8,86E-03	8,85E-03	8,96E-03	9,18E-03	9,53E-03
$^{241}\text{Pu}$	3,01E-01	3,16E-01	3,31E-01	3,43E-01	3,54E-01
$^{241}\text{Am}$	7,44E-02	7,43E-02	7,47E-02	7,54E-02	7,60E-02
$^{240}\text{Pu}$	4,23E-01	4,04E-01	3,81E-01	3,56E-01	3,28E-01
$^{239}\text{Pu}$	1,07E+00	1,06E+00	1,04E+00	1,03E+00	1,01E+00
$^{238}\text{U}$	1,40E-02	1,40E-02	1,40E-02	1,39E-02	1,39E-02
$^{238}\text{Pu}$	3,29E+00	3,26E+00	3,26E+00	3,26E+00	3,27E+00
$^{237}\text{Np}$	2,08E+00	2,12E+00	2,13E+00	2,13E+00	2,13E+00
$^{236}\text{U}$	6,70E+00	6,69E+00	6,69E+00	6,69E+00	6,69E+00
$^{235}\text{U}$	7,60E+00	7,64E+00	7,69E+00	7,75E+00	7,83E+00
$^{234}\text{U}$	2,06E+01	2,08E+01	2,10E+01	2,12E+01	2,14E+01
$^{233}\text{Pa}$	0,00E+00	1,51E+00	1,46E+00	1,40E+00	1,35E+00
$^{233}\text{U}$	6,90E+01	6,88E+01	6,93E+01	6,94E+01	6,89E+01
$^{232}\text{Th}$	8,89E+02	8,74E+02	8,59E+02	8,45E+02	8,32E+02

четырёхлетней кампании. Видно, что для подавляющего числа изотопов наблюдаются практически постоянные значения их содержания в процессе кампании.

В равновесном состоянии удельное значение содержания тория составляет ~89 % в начале кампании и ~83 % в конце кампании, и эта разница восстанавливается на старте следующей кампании. Удельное значение содержания изотопов урана практически не меняется в процессе кампании и находится на уровне ~10 %. Удельное значение содержания изотопа  $^{237}\text{Np}$  находится на уровне ~0,2%. Удельное значение содержания изотопов плутония практически не меняется в процессе кампании и находится на уровне ~0,5%, причем основная доля (~0,33%) приходится на изотоп  $^{238}\text{Pu}$ . Удельное значение содержания изотопов америция и кюрия находится на уровне сотых долей процента. Таким образом, основное содержание топлива составляют торий и уран.

## 5. Трансмутационные возможности торий-уран-плутониевого топливного цикла

Большое (~900 кг/т) удельное содержание тория и сравнительно жесткий спектр нейтронов обуславливают непосредственное деление порогово делящихся ядер тория на уровне ~1,2 кг/т в каждой кампании. Изотоп  $^{233}\text{U}$ , нарабатываемый на тории, является основным делящимся изотопом, и его вклад в число разделяющихся ядер за кампанию даже в равновесном состоянии находится на высоком уровне, ~47 кг/т. Порогово делящийся изотоп  $^{234}\text{U}$ , нарабатываемый на  $^{233}\text{U}$ , делится только быстрыми нейтронами, и его вклад в число разделяющихся ядер за кампанию в равновесном состоянии находится на уровне ~0,7 кг/т. Следующим по величине вклада в число разделяющихся ядер за кампанию (после  $^{233}\text{U}$ ) является активный изотоп  $^{235}\text{U}$ , нарабатываемый на  $^{234}\text{U}$ , и его вклад составляет ~4 кг/т. Далее в последовательном радиационном захвате нейтронов заселяются три долгоживущих порогово делящихся ядра  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , вклад которых в число разделяющихся

ядер находится на уровне ~0,1 кг/т, ~0,07 кг/т, ~0,5 кг/т, соответственно. Затем заселяются и делятся изотопы плутония  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ , вклад которых в число разделяющихся ядер находится на уровне ~0,55 кг/т, ~0,01 кг/т, ~0,25 кг/т, соответственно. Конечно, подвергаются делению быстрыми нейтронами и другие сравнительно долгоживущие изотопы элементов от урана до кюрия и далее, но вклад их незначителен.

Нам представляется важным еще раз отметить определяющий вклад в число разделяющихся ядер за кампанию в равновесном состоянии трех последовательно заселяемых изотопов урана,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , и самого тория. Их деление обуславливает возможность обеспечения нейтронного баланса вследствие не только рождения нейтронов, но и понижения доли далее заселяемых ядер-поглотителей нейтронов  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ . Именно на стадии прохождения изотопов  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  трансмутируется реакцией деления подавляющая доля  $(47 + 0,7 + 4)/55 \approx 0,94$  сырьевых ядер  $^{232}\text{Th}$ , испытывающих радиационный захват нейтронов. При этом вклад изотопов плутония находится на уровне ~2 %.

В замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле актиноиды рециклируются, а их попадание в радиоактивные отходы определяется возможностями переработки облученного топлива, уровень которой характеризуется величиной ~0,1% для каждого элемента. Таким образом при переработке одной тонны облученного топлива после каждой четырехлетней кампании радиоактивные отходы будут содержать ~54 кг продуктов деления, ~0,8 кг тория, ~0,10 кг изотопов урана, ~0,005 кг изотопов плутония, ~0,002 кг нептуния и «следовые» значения изотопов америция и кюрия, что качественно упрощает обращение с высокоактивными отходами ядерной энергетики.

На всех этапах топливного цикла имеет место технологический барьер на пути несанкционированного распространения расщепляющихся материалов в виде содержания радиологически опасного изотопа  $^{232}\text{U}$  в уране и высокого нейтронного фона от четно-четных изотопов плутония в плутонии.

## Заключение

Подчеркнем основные результаты выполненной работы.

Приведены результаты расчетов изменения изотопного состава и нейтронной кинетики в десяти последовательных кампаниях в торий-уран-плутониевом оксидном топливе в реакторах типа ВВЭР с водотопливным отношением  $V_B/V_T = 1,23$ , с использованием тяжелой воды и ее разбавления легкой водой. Показаны самовоспроизводство топлива и выход на равновесный изотопный состав. Выполнены оценки равновесных значений изотопного состава и времен выхода изотопов в равновесие при рециклировании торий-уран-плутониевого оксидного топлива. Показано, что и в равновесном режиме реактор может работать с самовоспроизводством активных изотопов.

Показан определяющий вклад в число разделяющихся ядер за кампанию трех последовательно заселяемых изотопов урана  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и самого тория. Их деление обуславливает возможность обеспечения положительного нейтронного баланса вследствие не только рождения нейтронов, но и понижения доли далее заселяемых ядер-поглотителей нейтронов  $^{236}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ . Именно на стадии прохождения изотопов  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  трансмутируется реакцией деления подавляющая доля  $(47 + 0,7 + 4)/55 \approx 0,94$  сырьевых ядер  $^{232}\text{Th}$ , испытывающих радиационный захват нейтронов. При этом вклад изотопов плутония находится на уровне  $\sim 2\%$ .

В замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле актиноиды рециклируются, а их потери и попадание в радиоактивные отходы определяются возможностями переработки облученного топлива, уровень которой для актиноидов характеризуется величиной  $\sim 0,1\%$  для каждого элемента. Таким образом, при переработке одной тонны облученного топлива после каждой четырехлетней кампании радиоактивные отходы будут содержать  $\sim 54$  кг продуктов деления,  $\sim 0,8$  кг тория,  $\sim 0,10$  кг изотопов урана,  $\sim 0,005$  кг изотопов плутония,  $\sim 0,002$  кг нептуния и «следовые» значения изотопов америция и кюрия, что качественно упрощает обращение с высокоактивными отходами ядерной энергетики.

Полученные результаты позволяют считать, что нейтронная кинетика и изотопное преобразование в замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле представляются наиболее оптимальными и эффективными. При этом решаются основные проблемы ядерной энергетики: качественно улучшается использование топлива, понижается ядерная опасность реактора, упрощается обращение с радиоактивными отходами, создается технологический барьер на пути распространения расщепляющихся материалов.

## Список литературы

1. Маршалкин В. Е., Повышев В. М. Расширенное воспроизводство  $^{233}\text{U}$  в торий-урановом топливном цикле в реакторах типа ВВЭР с использованием тяжелой воды // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. 2013, вып. 3. С. 12–29.
2. Маршалкин В. Е., Повышев В. М. О равновесном изотопном составе торий-уран-плутониевого топливного цикла // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. 2015, вып. 4. С. 3–11.
3. Calculation of the isotopic composition, crosssections and fluxes for a typical PWR-cell loaded with (PU-Th)  $\text{O}_2$ -fuel, as a function of the fuel burnup. Report of IAEA, 1996.
4. Маршалкин В. Е., Повышев В. М., Житник А. К., Ронжин А. Б. Методика расчета нейтронно-физических параметров и изотопной кинетики ячейки тепловых реакторов и ее тестирование // ВАНТ. Сер. Теоретическая и прикладная физика. 2001, вып. 1. С. 11–21.

Контактная информация –

Маршалкин Василий Еромолаевич,  
ведущий научный сотрудник ИТМФ,  
РФЯЦ-ВНИИЭФ  
e-mail: [marshalkin@expd.vniief.ru](mailto:marshalkin@expd.vniief.ru)

Статья поступила в редакцию 25.05.2016.

Вопросы атомной науки и техники Сер. Физика ядерных реакторов, 2016, вып. 4. с. 64–75.