

ДЕЛЯЩИЕСЯ МАТЕРИАЛЫ ВТОРОГО ПОКОЛЕНИЯ В ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКЕ

В. Е. Маршалкин

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

Показано, что использование ^{232}Th вместо ^{238}U в качестве сырьевого изотопа, основного делящегося изотопа ^{233}U вместо ^{239}Pu , тяжелой воды вместо легкой воды в качестве теплоносителя и ее разбавления легкой водой во время кампании реактора типа ВВЭР обуславливает самообеспечение топлива активными изотопами, в том числе и после достижения равновесного изотопного состава актиноидов, повышение безопасности реактора, обеспечение технологического барьера на пути распространения расщепляющихся материалов. Имеет место эффективная утилизация высокообогащенного урана на стадии выхода на замкнутый торий-уран-плутониевый топливный цикл с глубокой трансмутацией актиноидов реакцией деления и их удалением из радиоактивных отходов.

Ключевые слова: ^{232}Th и ^{233}U – изотопы второго поколения; утилизация высокообогащенного урана; самообеспечение топлива активными изотопами; замкнутый торий-уран-плутониевый топливный цикл; трансмутация актиноидов реакцией деления.

THE SECOND-GENERATION FISSILE MATERIALS IN NUCLEAR POWER INDUSTRY / V. E. MARSHALKIN // The paper shows that the use of ^{232}Th for a raw isotope instead of ^{238}U and the main fissile isotope ^{233}U instead of ^{239}Pu , the use of heavy water instead of light water as a coolant and its dilution with light water during the VVER-type reactor campaign provide the self-reproduction of active isotopes in fuel, particularly upon the achieved equilibrium ratio of actinide isotopes, improves safety of a reactor, and provides a technological barrier against the distribution of fissile materials. The effective utilization of highly-enriched uranium (HEU) takes place in stage of reaching the closed thorium-uranium-plutonium fuel cycle with deep transmutation of actinides by fission reaction and their removal from radioactive waste.

Key words: ^{232}Th and ^{233}U isotopes of the second generation; HEU utilization; self-production of active isotopes in fuel; closed thorium-uranium-plutonium fuel cycle; transmutation of actinides by fission reaction.

Введение

В природе есть только один химический элемент – уран, – который содержит в своем составе изотоп ^{235}U (~0,7 %), делящийся нейтронами любой энергии. Поэтому естественно, что в процессе реализации атомных проектов в США и СССР для получения оружейных материалов были разработаны технологии:

– обогащения урана изотопом ^{235}U ;

– наработки изотопа ^{239}Pu на естественном уране в созданных реакторах.

Наработаны большие количества высокообогащенного урана и плутония оружейного качества.

Адаптация реакторов – наработчиков плутония для использования выделяющегося тепла при делении ядер – стала основой современной ядерной энергетики. В производстве современного ядерного оружия и современной

ядерной энергетике до сих пор используют изотопы ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , таким образом, работая на первом поколении ядерных материалов.

Наряду с несомненными успехами современной ядерной энергетике выявлены проблемы, от решения которых зависит ее дальнейшее развитие и место в обеспечении человечества энергией. В современных тепловых реакторах реакцией деления, определяющей энерговыделение, сжигается $\leq 0,5\%$ добываемого урана, что ограничивает топливный ресурс ядерной энергетике. При этом $\sim 10\%$ добываемого урана переводится в облученное ядерное топливо (высокоактивный материал), которое накапливается и осложняет экологическую обстановку. Высокий запас реактивности современных тепловых реакторов делает их ядерно-опасными системами. Высокая ($\sim 1\%$ выгружаемого топлива) наработка плутония создает предпосылку распространения расщепляющегося материала для несанкционированного изготовления ядерных взрывных устройств. Таким образом, прошедшие полвека убедительно показали тупиковый путь развития ядерной энергетике на основе используемого открытого уран-плутониевого топливного цикла.

С 50-х годов прошлого века принято считать, что решение этих проблем заключается в переводе ядерной энергетике на замкнутый уран-плутониевый топливный цикл с использованием реакторов на быстрых нейтронах. Однако техническая реализация этой физически правильной идеи оказалась чрезвычайно трудной. Несмотря на усилия специалистов нескольких поколений и многомиллиардные долларовые затраты в странах с развитой ядерной энергетикой, достичь замыкания топливного цикла по плутонию до сих пор не удалось. По нашему убеждению [1], все эти и другие проблемы современной ядерной энергетике являются проблемами уран-плутониевого топливного цикла.

Они могут быть решены путем использования изотопов ^{232}Th и ^{233}U в качестве реакторных материалов второго поколения и перевода ядерной энергетике на альтернативный замкнутый по всем актиноидам торий-уран-

плутониевый топливный цикл. Использование ^{232}Th в качестве сырьевого изотопа вместо ^{238}U , основного делящегося изотопа ^{233}U вместо ^{239}Pu , тяжелой воды вместо легкой воды и ее разбавления легкой водой во время кампании в реакторе типа ВВЭР обуславливает самообеспечение топлива активными изотопами [2], в том числе и после достижения равновесного изотопного состава актиноидов. На этой основе могут быть решены все перечисленные выше проблемы современной ядерной энергетике.

Недостатки уран-плутониевого топливного цикла и преимущества замкнутого торий-уран-плутониевого топливного цикла

В настоящее время водо-водяные реакторы с легкой водой (ВВЭР, PWR, BWR) и тяжелой водой (PHWR) являются наиболее совершенными, безопасными и распространенными в мире. Представляется естественным дальнейшее развитие ядерной энергетике, при решении выявившихся в ней проблем, осуществлять с использованием этих реакторов, связанных с ними технологий и опыта эксплуатации.

Принципиальными условиями становления большой ядерной энергетике являются обеспечение расширенного воспроизводства активных изотопов и замыкание топливного цикла, что переведет ядерную энерготехнологию из разряда технологий с исчерпаемым топливным ресурсом в разряд с возобновляемым топливным ресурсом. Обеспечение расширенного воспроизводства активных изотопов требует рождения двух и более вторичных нейтронов на поглощенный нейтрон. Только при этом условии и строжайшей экономии нейтронов возможно одновременное удовлетворение поддержания цепной реакции деления в системе и воспроизводства активных изотопов.

В табл. 1 для ряда долгоживущих ядер приведены значения сечений (барн) деления σ_f , радиационного захвата ими нейтронов σ_γ и среднего числа вторичных нейтронов на по-

глощенный нейтрон $\eta = \frac{\bar{\gamma}\sigma_f}{\sigma_f + \sigma_\gamma}$ при некото-

рых значениях энергии нейтронов, а также значения среднего числа нейтронов деления $\bar{\gamma}$ (0,025 эВ) при тепловой энергии нейтрона ($\varepsilon = 0,025$ эВ), вызывающего деление.

К сожалению, следует отметить, что основные энерговыделяющие (делящиеся) в современной ядерной энергетике изотопы ^{235}U и ^{239}Pu в интенсивно работающей резонансной области энергий нейтронов могут поддерживать протекание цепной реакции деления, но не могут обеспечить самовоспроизводства. Поэтому в уран-плутониевом топливном цикле только в реакторах с большой долей быстрых нейтронов (реакторы БН) появляется возможность самовоспроизводства изотопов ^{239}Pu и ^{241}Pu , что и пытались реализовать в течение полувека.

Из данных табл. 1 видно, что только два изотопа, ^{233}U и ^{241}Pu , характеризуются значением $\eta > 2$ при всех значениях энергии первичного нейтрона. Поэтому только при использовании этих изотопов образуется достаточное количество вторичных нейтронов для поддержания цепной реакции (деление следующего ядра) и наработки делящегося изотопа в процессе радиационного захвата нейтрона сырьевыми изотопами (^{232}Th , ^{240}Pu), ха-

рактеризующимися пороговой зависимостью сечения деления.

Использование природного ^{232}Th в качестве сырьевого изотопа, а нарабатываемого ^{233}U – в качестве основного делящегося изотопа, обуславливает основной вклад в обеспечение самовоспроизводства ^{233}U . Параллельно с делением ^{233}U нарабатывается изотоп ^{234}U , который является сырьевым изотопом для наработки ^{235}U , деление которого улучшает нейтронный баланс в реакторе. Этой же цели служит деление пороговых изотопов, в том числе ^{232}Th , быстрыми нейтронами, доля которых увеличивается при использовании тяжелой воды в качестве теплоносителя и понижении водотопливного отношения. При этом уменьшается поглощение нейтронов D относительно H в стандартном теплоносителе. Особо следует подчеркнуть, что из-за деления изотопа ^{233}U , предшествующего изотопу ^{235}U , понижается относительно стандартного топлива на порядок заселение пороговделяющихся изотопов ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , являющихся поглотителями нейтронов. Вместе с этим регулировка реактора разбавлением тяжелой воды легкой водой без использования поглотителей нейтронов для компенсации обычно используемого запаса реактивности является эффективной экономией нейтронов. Это позволяет замкнуть топливный цикл не только по изотопам урана, но и по изотопам плутония.

Таблица 1

Значения сечений (барн) деления σ_f изотопов ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , радиационного захвата нейтронов σ_γ ими, значений резонансных интегралов и чисел вторичных нейтронов на один поглощенный нейтрон η

Изотоп	$\bar{\gamma}$ (0,025 эВ)	$\varepsilon = 0,025$ эВ			$\varepsilon \geq 0,5$ эВ			$\varepsilon = 100$ кэВ		
		σ_γ	σ_f	η	I_γ	I_f	η	σ_γ	σ_f	η
^{232}Th		7,37			85			0,23		
^{233}U	2,492	45,5	529,1	2,29	137	760	2,11	0,24	2,28	2,25
^{235}U	2,418	98,3	582,6	2,07	144	275	1,59	0,37	1,57	1,96
^{239}Pu	2,872	269,3	748,1	2,11	220	301	1,66	0,24	1,51	2,48
^{240}Pu	2,9	289,5	0,056		8100	8,8		0,32	0,05	0,39
^{241}Pu	2,93	358,2	1011,1	2,16	162	570	2,28	0,32	2,13	2,55
^{242}Pu	2,93	18,5	< 0,2		1115	5	0,013	0,25	0,015	0,17

В статье [2] предложен способ обеспечения оптимальной нейтронной кинетики и эффективного изотопного преобразования в торий-уран-плутониевом оксидном топливе водо-водяного реактора с изменяющимся составом (D_2O ; H_2O) воды, соответственно меняющимся спектром нейтронов. Этот способ обеспечивает расширенное воспроизводство изотопов ^{233}U , ^{235}U , характеризуется повышенной безопасностью и сравнительно простой реализацией. Отсутствие запаса реактивности качественно понижает ядерную опасность реактора. Сравнительно большой период полураспада ^{233}Pa ($T_{1/2} = 27$ сут.), нарабатываемого на тории в процессе радиационного захвата нейтронов, и его β^- распада с образованием изотопа ^{233}U стабилизирует работу реактора на мощности. Технологии использования воды (обычной и тяжелой) в качестве теплоносителя являются наиболее отработанными, а способность изменения ее состава в процессе кампании, и соответствующего изменения спектра нейтронов, является уникальной.

В природе тория в 3-4 раза больше, чем урана. Наличие физической возможности расширенного воспроизводства ^{233}U на тории и отсутствие аналогичной возможности воспроизводства ^{239}Pu на ^{238}U в современных реакторах типа ВВЭР обуславливают целесообразность перевода современной ядерной энергетики на замкнутый торий-уран-плутониевый топливный цикл. Практическая возможность этого перевода в настоящее время обеспечена наличием больших количеств высокообогащенного урана и реакторного плутония, необходимых на стадии наработки изотопа ^{233}U и становления ториевой энергетики.

Таким образом, следующим этапом развития ядерной энергетики является утилизация (глубокое выжигание активных изотопов ^{235}U , ^{239}Pu и ^{241}Pu) высокообогащенного урана и энергетического плутония с наработкой изотопа ^{233}U и запуска замкнутого торий-уран-плутониевого топливного цикла с использованием реакторов типа ВВЭР с тяжелой водой,

ее разбавлением легкой водой и устранением возможности перехода реактора в надкритическое состояние. При этом на профилактическом уровне будут решены вышеперечисленные основные проблемы современной ядерной энергетики.

Ниже рассмотрены стартовые сценарии развития ториевой энергетики на основе использования высокообогащенного урана и ее эксплуатация в равновесном режиме [3].

Расчетная модель – ториевая ячейка реактора ВВЭР

Проведение нейтронно-физических расчетов в полном объеме для всего реактора является сложным. Задача качественно упрощается с использованием ячеечного приближения. Ниже все численные оценки выполнены для ячейки водо-водяного энергетического реактора ВВЭР. Как и в предыдущих статьях [2, 3], за основу была принята ячейка реактора PWR, предложенная МАГАТЭ, нейтронно-физические расчеты для которой выполнены в ведущих лабораториях мира, а результаты представлены в отчете [4]. 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. Значения парциальной плотности изотопов и элементов в ячейке (в единицах атом/см³) для топлива, оболочки и замедлителя приведены в табл. 2. Средняя температура топлива $T_T = 1023$ К, средняя температура воды $T_B = 583$ К. Удельная мощность в ячейке $P = 211$ Вт/см.

Исходная концентрация изотопов (атом/см³)

Изотоп	Средняя по ячейке	Топливо	Оболочка	Замедлитель
²³² Th	6,45 + 21	2,11 + 22		
²³⁸ Pu	2,97 + 18	9,72 + 18		
²³⁹ Pu	1,83 + 20	5,99 + 20		
²⁴⁰ Pu	7,10 + 19	2,32 + 20		
²⁴¹ Pu	2,35 + 19	7,69 + 19		
²⁴² Pu	1,46 + 19	4,78 + 19		
Cr	1,99 + 20		8,14 + 19	3,20 + 20
Mn	1,26 + 19			2,11 + 19
Fe	5,20 + 20		1,60 + 20	8,46 + 20
Ni	2,24 + 20			3,76 + 20
Zr	4,27 + 21		4,37 + 22	
C	1,60 + 18			2,68 + 18
H	2,86 + 22			4,80 + 22
O	2,78 + 22	4,41 + 22		2,40 + 22

В статье [5] описана методика расчетов и сравнение результатов наших расчетов с результатами других авторов [4] по широкому кругу функционалов. Сравнение показало, что значения, полученные нами, находятся в пределах разброса результатов других авторов. Это позволяет надеяться на высокую точность и надежность получаемых результатов. Естественно ожидать, что замена легкой воды на тяжелую воду не повлияет на точность расчетов.

Следует отметить, что в реальном реакторе с целью экономии нейтронов для повышения воспроизводства ²³³U, по-видимому, целесообразно использование ториевого бланкета.

В статье [2] путем расчетно-теоретических исследований показана возможность расширенного воспроизводства изотопов урана ²³³U и ²³⁵U в торий-урановом (²³²Th – ²³³U) оксидном топливе в реакторах типа PWR (ВВЭР). Эта возможность в наиболее отработанном и распространенном реакторе обеспечивается нейтронно-ядерными свойствами ²³³U, ²³²Th, нарабатываемых на них более тяжелых актиноидов, а также наличием уникальной способности воды, используемой в качестве теплоносителя, менять энергетическое распределение нейтронов путем изменения своего состава в процессе работы реактора, а, соот-

ветственно, менять его реактивность. В табл. 3 приведено удельное содержание ²³³U в кг на тонну тяжелого металла в ²³³U-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_w , а разбавление тяжелой воды легкой водой осуществляется изменением параметра α в водяной смеси $c = \alpha D_2O + (1 - \alpha) H_2O$ теплоносителя.

Из табл. 3 видно, что понижение водотопливного отношения (понижение радиуса воды R_w) сопровождается повышением удельного содержания ²³³U (кг/т) в топливе, необходимого для удержания ячейки в критическом состоянии. Разбавление тяжелой воды легкой водой сопровождается понижением удельного содержания ²³³U (кг/т) в топливе, необходимого для ее удержания в критическом состоянии при выгорании активных изотопов и наработке поглотителей нейтронов в процессе работы реактора. Таким образом, видна возможность значительного влияния водотопливного отношения и состава воды на топливную загрузку ячейки (реактора).

Рассчитанные значения удельного содержания ^{233}U (кг/т) в ячейке с ^{233}U - ^{232}Th оксидным топливом в критическом состоянии в зависимости от радиуса воды R_g (см), водотопливного отношения V_v/V_m и параметра α -разбавления тяжелой воды легкой водой

R_g	V_v/V_m	α						
		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

Наиболее высокое удельное содержание изотопа ^{233}U в ^{233}U - ^{232}Th топливе при использовании в качестве теплоносителя тяжелой воды D_2O в стартовом состоянии реактора может рассматриваться как запас реактивности системы без необходимости его компенсации поглотителями нейтронов. Подмешивание легкой воды в теплоноситель является способом реализации этого запаса реактивности для поддержания ячейки (реактора) в критическом состоянии по мере выгорания реакцией деления стартового ^{233}U и наработки поглотителей нейтронов при соблюдении эффективной экономии нейтронов. Таким образом, найден способ обеспечения оптимальной нейтронной кинетики и эффективного изотопного преобразования в ^{233}U - ^{232}Th топливе водо-водяного реактора с высоким воспроизводством изотопов ^{233}U и ^{235}U и сравнительно простой реализацией [6].

В порядке оценки скорости разбавления $\Delta\alpha/\Delta t$ отметим, что понижение $\Delta\alpha = 0,05$ соответствует понижению количества урана на ~ 13 кг/т, а это соответствует выгоранию урана в реакторе электрической мощностью $P \cong 1$ ГВт за время $t \sim 1$ год. С учетом воспроизводства активных изотопов получаем оценку скорости разбавления сверху в виде

$$\Delta\alpha/\Delta t \cong 5\%/365 \cdot 24 \text{ ч} \approx 6 \cdot 10^{-4} \%/ \text{ч},$$

что представляется вполне решаемой задачей.

Утилизация высокообогащенного урана при переводе ядерной энергетики на замкнутый торий-уран-плутониевый топливный цикл

К настоящему времени известно одно масштабное использование оружейного урана, высокообогащенного изотопом ^{235}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 [7] в реакторах типа ВВЭР (PWR) в смеси с торием и использование в качестве теплоносителя тяжелой воды с разбавлением легкой водой в процессе кампании. 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, обеспечивает экономию нейтронов и их эффективное использование для поддержания цепной реакции деления ядер и производства изотопа ^{233}U .

В связи с разницей в значениях критической массы шаров из ^{235}U (~47 кг) и ^{233}U (~15,6 кг) для поддержания критического состояния реактора достаточно производства в ~3 раза меньшего числа ядер ^{233}U относительно числа сгоревших ядер ^{235}U . Это означает, что количество вторичных нейтронов, образующихся при делении ядер ^{235}U , может быть достаточным для деления следующих ядер и поддержания критического состояния реактора при использовании тория в качестве сырьевого изотопа и наработки изотопа ^{233}U . Деление ядер ^{233}U нейтронами любой энергии сопровождается образованием более двух вторичных нейтронов на поглощенный нейтрон, соответственно, может обеспечить расширенное воспроизводство $[2, 6]^{233}\text{U}$. Дополнительным источником нейтронов является деление пороговых изотопов ^{232}Th , ^{234}U , ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{240}Pu быстрыми нейтронами.

Представляется, что к настоящему времени это наиболее простая и наиболее подготовленная 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}U и ^{238}U и нарабатываемых на них ядер,
- замыкания по всем актиноидам торий-уран-плутониевого топливного цикла.

Изучению этих возможностей посвящены статьи [2, 3]. Расчеты в них выполнены для одновзвальной ячейки, предложенной МАГАТЭ [4], 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 лет рассмотрено рециклирование четы-

рехлетних кампаний с замыканием по всем долгоживущим актиноидам.

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 четырехлетних кампаний с замыканием по всем долгоживущим актиноидам. Нейтронная кинетика и изотопное преобразование первой кампании оказались такими, что падение реактивности топлива при выгорании ^{235}U и наработке поглотителей нейтронов с избытком компенсировалось ее повышением (без осколков деления) при наработке изотопа ^{233}U . Оказалось, что для стартовой загрузки второй кампании в критическом состоянии ($K_{\infty} = 1$) 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 ($K_{\infty} = 1$) в стартовом состоянии последующей кампании оказалось необходимым добавление 7~5 кг/т обогащенного урана к актиноидам, извлекаемым из отработавшего топлива предыдущей кампании.

Как показано на рис. 1–3 картину изотопного преобразования можно условно разделить на три части.

Первая, наиболее интенсивно меняющаяся группа представлена на рис. 1 и связана с нейтронами деления стартового изотопа ^{235}U и нарабатываемого ^{233}U , их превалирующим поглощением ^{232}Th (из-за его большого содержания), наработкой изотопа ^{233}U , делением ^{233}U и радиационным захватом им нейтронов с наработкой ^{234}U , последующим захватом нейтронов ^{234}U и наработкой исходного изотопа ^{235}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.

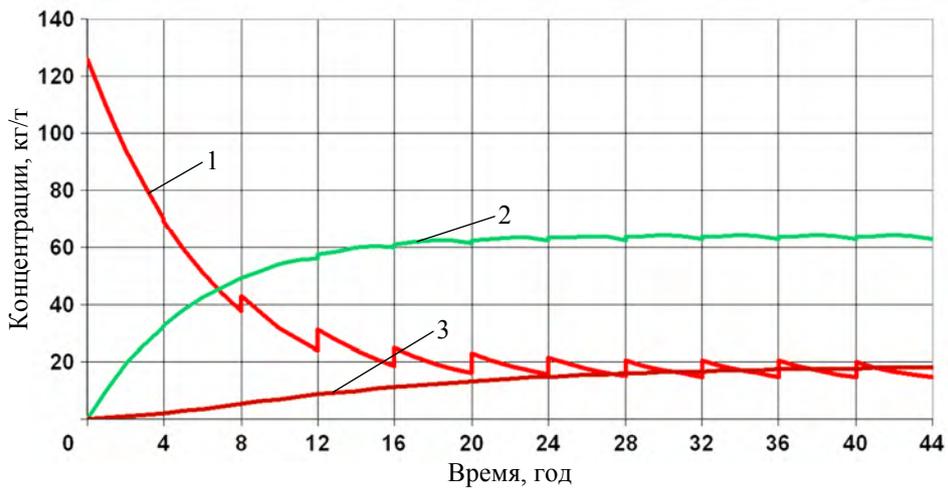


Рис. 1. Временная зависимость изменения удельного содержания ^{235}U (1), ^{233}U (2), ^{234}U (3) в топливе

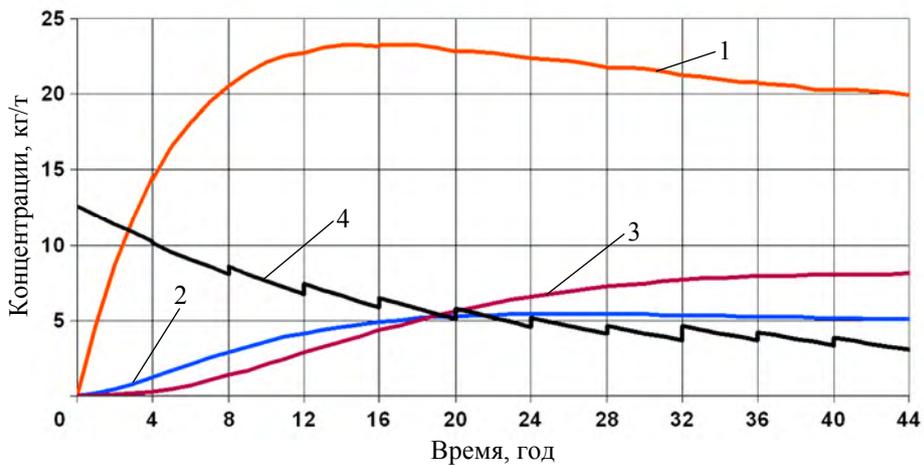


Рис. 2. Временная зависимость изменения удельного содержания ^{236}U (1), ^{237}Np (2), ^{238}Pu (3) и ^{238}U (4) в топливе

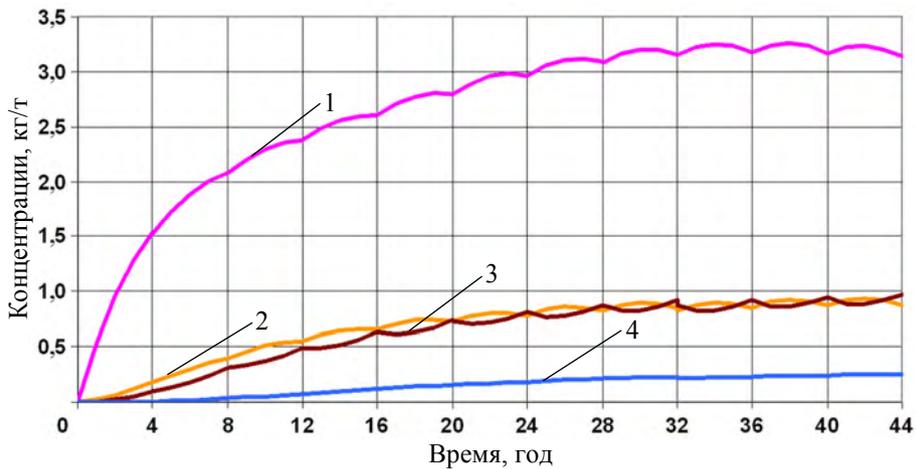


Рис. 3. Временная зависимость изменения удельного содержания ^{239}Pu (1), ^{240}Pu (2), ^{241}Pu (3) и ^{242}Pu (4) в топливе

Вторая группа представлена на рис. 2 и связана с радиационным захватом нейтронов изотопом ^{235}U с наработкой ^{236}U и последующей наработкой изотопов ^{237}Np , ^{238}Pu в последовательных захватах нейтронов. Нарботка этих изотопов идет наиболее интенсивно в процессе первых кампаний в связи со значимым содержанием ^{235}U в первоначальной загрузке, выходит на насыщение и затем понижается по мере выгорания ^{235}U . Отсутствие активных изотопов в этой группе определяет ее в качестве основной поглощающей нейтроны группы. Она является переходной областью между парами активных изотопов ^{233}U , ^{235}U и ^{239}Pu , ^{241}Pu . Интенсивность поглощения нейтронов в ней на порядок ниже при использовании ^{233}U вместо ^{235}U в топливе, что и является одним из главных преимуществ использования ^{232}Th относительно ^{238}U в качестве сырьевого изотопа.

Третья группа представлена на рис. 3 и связана с изотопами плутония. Конечно, в первых кампаниях наработка ^{239}Pu происходит на ^{238}U исходной стартовой загрузки. По мере наработки ^{238}Pu на ^{237}Np дополнительно возрастает на нем наработка ^{239}Pu . Деление ^{239}Pu нейтронами любой энергии понижает его содержание и наработку ^{240}Pu . Аналогичная ситуация имеет место с парой ^{241}Pu и ^{242}Pu . Нетрудно заметить 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.

Итак, на рис. 1–3 представлена подробная картина преобразования изотопного состава при рециклировании топлива в одиннадцати последовательных кампаниях со стартовой загрузкой высокообогащенного урана и тория и подпиткой топлива высокообогащенным ураном по мере необходимости. 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}U . Просматривается возможность самообеспечения топлива активными изотопами и самоограничения актиноидного состава изотопами плутония.

В табл. 4 приведен материальный баланс (кг/т), реализованный в одиннадцати последовательных кампаниях, на тонну тяжелого металла в оксидном торий-уран-плутониевом топливе.

Видно следующее. Израсходовано на стартах одиннадцати кампаний 178,2 кг/т изотопа ^{235}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}U осталось в отработавшем топливе 3,06 кг/т, разделилось 0,321 кг/т и 14,36 кг/т испытало радиационный захват нейтронов. Израсходовано 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.

Таблица 4

Изотопный материальный баланс в топливе (кг/т) после одиннадцати последовательных кампаний

Этап	^{235}U	^{238}U	^{232}Th	^{233}U	Остальные
Старт	126	12,6	861,4	0	
Финиш	14,6	3,06	808	62,6	56,74
Добавлено	52,2	5,14	483,7		
Разделилось	145,7	0,321	11,01	403,2	35,8
Всего разделилось	596				

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}U , что составляет ~68 % от полного числа разделившихся ядер. При этом в отработавшем топливе еще осталось 62,6 кг/т этого изотопа, что сохраняет его высокие делительные свойства. В одиннадцати последовательных кампаниях разделилось 145,7 кг/т изотопа ^{235}U , что составляет только ~24 % от полного числа разделившихся ядер. В отработавшем топливе осталось 56,74 кг/т других актиноидных изотопов, суммарный вклад которых в деление равен 35,8 кг/т, что составляет ~6 % от полного числа разделившихся ядер. Вклад в деление непосредственно стартового изотопа ^{232}Th находится на уровне ~2 %. При дальнейшем рециклировании будут возрастать доли делений стартового изотопа ^{232}Th и нарабатываемого изотопа ^{233}U .

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

В табл. 5 приведено удельное содержание ^{233}U в кг на тонну тяжелого металла в ^{233}U -Th оксидном топливе в критическом состоянии рассмотренной выше ячейки в зависимости от α -разбавления тяжелой воды легкой водой и значение K_{∞} при потере в ней 90 % тепло-

носителя. Видно, что в ячейке с внешним радиусом воды 0,8 см для достижения критичности достаточно 56 кг/т изотопа ^{233}U , а потеря 90 % теплоносителя переводит такую ячейку в подкритическое состояние с $K_{\infty} = 0,78$. Это означает, что рассмотренная выше утилизация высокообогащенного урана с торием при наработке изотопа ^{233}U 62,6 кг/т позволяет выйти на самообеспечивающийся топливом замкнутый по актиноидам торий-уран-плутониевый топливный цикл. При этом на всех стадиях этого перехода ячейка характеризуется отрицательным значением пустотного коэффициента реактивности.

Укороченный замкнутый торий-уран-плутониевый топливный цикл

Наряду с отмеченными выше возможностями экономии нейтронов представляется эффективным улучшение нейтронного баланса путем извлечения нептуния при переработке отработавшего топлива, а также сокращение времени кампании (например, 3 года). При этом понижается поглощение нейтронов в следующей кампании не только нептунием, но и нарабатываемым на нем изотопом ^{238}Pu , соответственно улучшается нейтронный баланс. Выделенный нептуний может использоваться в качестве исходного сырьевого материала для наработки изотопа ^{238}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.

Таблица 5

Удельное содержание ^{233}U в кг на тонну тяжелого металла в ^{233}U -Th оксидном топливе в критическом состоянии рассмотренной выше ячейки в зависимости от α -разбавления тяжелой воды легкой водой и значение K_{∞} при потере в ней 90 % теплоносителя

α	1	0,95	0,9	0,8	0,75	0,5	0
N	56	40	30,6	22,4	20,6	16,6	15,1
K_{∞} ($C \cdot 10\%$)	0,780	0,636	0,546	0,489	0,474	0,503	0,610

Выполнен расчетно-теоретический анализ рассмотренного выше рециклирования с удалением изотопа ^{237}Np после каждой кампании. При этом сохранены условия предыдущих расчетов [2, 3, 7] при единственном изменении. После второй и каждой из последующих кампаний наряду с удалением осколков деления тяжелых ядер, америция и кюрия отдельно извлекается и нептуний, а к оставшемуся актиноидному составу (торий, изотопы урана и плутония) добавляется оружейный уран и торий в количестве, необходимом для достижения критического состояния ячейки в расчете на тонну тяжелого металла. При этом необходимое добавление ^{235}U до достижения критического состояния на старте третьей и последующих кампаний понизилось с $\sim 7\text{-}5$ кг/т до $\sim 2\text{-}2,5$ кг/т, что обусловлено понижением содержания ^{237}Np и нарабатываемого на нем ^{238}Pu , поглощающих нейтроны. Видно, что изъятие нептуния из топлива при его переработке после каждой кампании обуславливает:

- экономию используемого высокообогащенного урана;
- наработку ^{237}Np в качестве сырьевого материала для наработки ^{238}Pu ;
- понижение наработки изотопов плутония, америция, кюрия в топливе.

С целью дальнейшего повышения воспроизводства активных изотопов ^{233}U и ^{235}U проведены расчеты с дополнительно пониженным водотопливным отношением ($R_b = 0,75$ см) и изъятием нептуния и плутония из топлива при его переработке после каждой кампании и замыканием торий-уранового топливного цикла. При этом существенно упрощается технология изготовления свежего топлива, что может оказаться важным на начальном этапе ториевой ядерной энергетики, но при этом нарабатываются и извлекаются нептуний и плутоний. Этот «укороченный торий-уран-плутониевый» топливный цикл может иметь самостоятельный интерес на этапе наработки изотопа ^{233}U для полномасштабного запуска замкнутого торий-уран-плутониевого топливного цикла.

На рис. 4 приведено изменение удельного содержания изотопов тория и урана в топливе

в течение 80 лет облучения (20 кампаний) при удельной мощности ячейки 211 Вт/см и использования тяжелой воды на старте каждой кампании и ее разбавления легкой водой в процессе каждой кампании. Видно, что основное изменение как в процессе каждой кампании ($\sim 50\text{-}60$ кг/т), так и между первой и двадцатой кампаниями (~ 30 кг/т), происходит в содержании тория. Стартовые изотопы ^{235}U и ^{238}U выгорают со ~ 130 кг/т до $\sim 8,5$ кг/т и с ~ 13 кг/т до $\sim 0,07$ кг/т соответственно. Идет наработка (с нуля) ^{233}Pa и изотопов урана: ^{233}U , ^{234}U , и ^{236}U . Нарбатываемый ^{233}Pa в соответствии с его распадом в ^{233}U прибавляется к ^{233}U в топливе для последующей кампании. При этом в каждой кампании нарабатываются изотопы более тяжелых элементов, которые извлекаются при переработках топлива между кампаниями и не участвуют в последующих кампаниях. Происходит особенно большое понижение содержания ^{235}U с соответствующим накоплением ^{236}U . Содержание ^{236}U выходит на максимум после 3-й кампании, а затем понижается в соответствии выгоранием ^{235}U . Растет доля изотопов ^{233}U и ^{234}U в топливе с ростом номера кампании. При этом после ~ 5 -й кампании содержание ^{233}U стремится к насыщению, а содержание ^{234}U продолжает увеличиваться.

Наряду с рециклированием топлива между кампаниями приходилось дополнительно менять удельное содержание активных изотопов для обеспечения критического состояния ячейки на старте последующей кампании. Эти изменения приведены в табл. 6, где указано изъятие урана (в %) из топлива предыдущей кампании или добавление оружейного урана (в кг/т) на старте указанной кампании. Изъятие урана после 1-й и 2-й кампаний обусловлено эффективной наработкой ^{233}U , обладающего высокими делительными свойствами. Добавление оружейного урана на старте 5; 6; 7 кампаний компенсирует падение реактивности топлива в связи с относительно быстрым ростом содержания ^{234}U , поглощающего нейтроны, на фоне спада содержания ^{235}U и замедлившегося роста содержания ^{233}U . Сравнительно малое

изъятие урана после 9-й и последующих кампаний обусловлено понижением содержания изотопов ^{236}U и ^{238}U , поглощающих нейтроны, на фоне практического постоянства содержа-

ния активных изотопов ^{233}U и ^{235}U . Важно отметить, что это изъятие указывает на расширенное воспроизводство активных изотопов ^{233}U и ^{235}U при дальнейшем рециклировании.

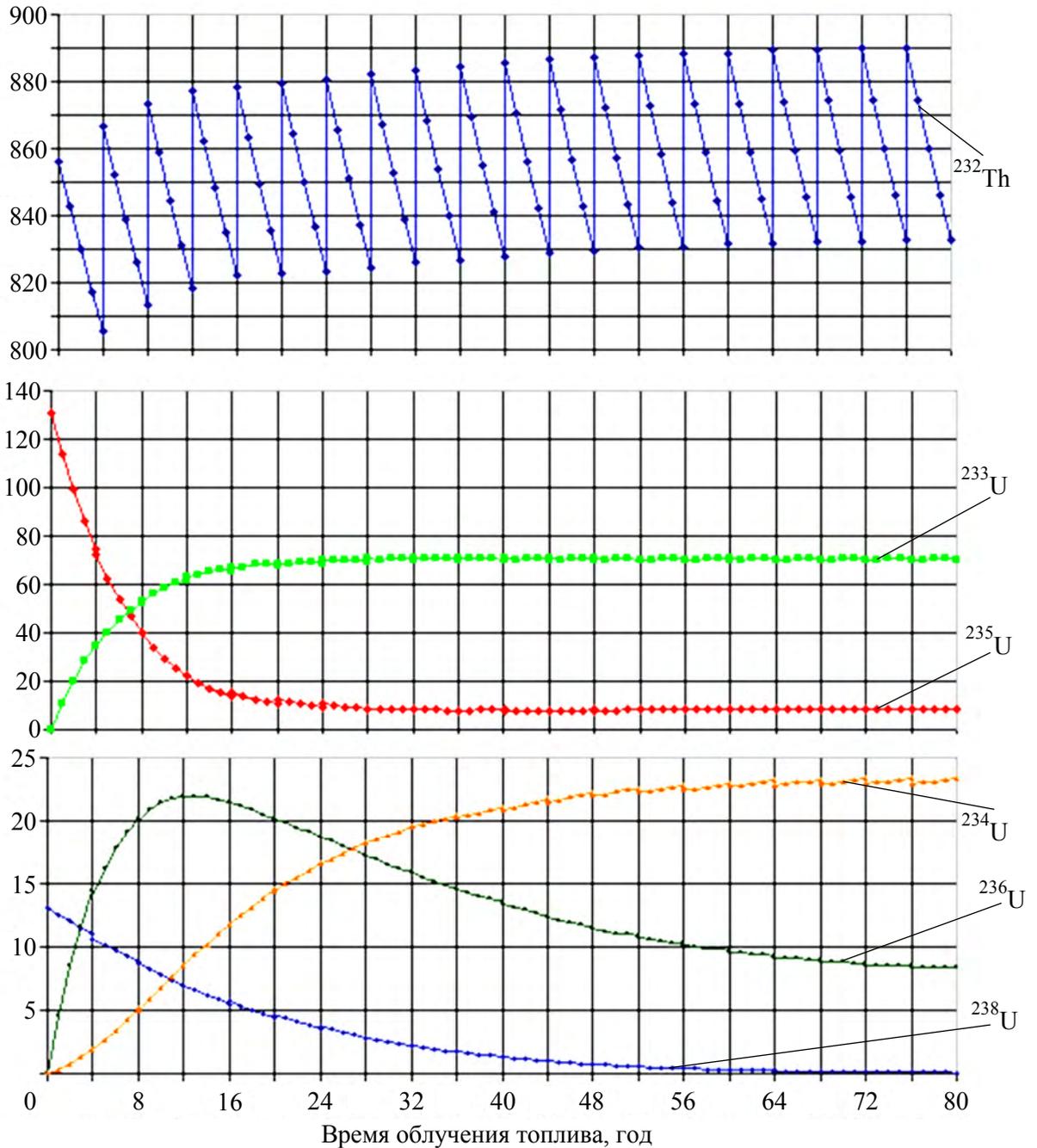


Рис. 4. Временная зависимость изменения удельного (кг/т) изотопного состава при рециклировании торий-уранового топлива

*Изъятие урана из топлива предыдущей кампании
или добавление оружейного урана на старте указанной кампании*

№ кампании	Изъято урана из предыдущей, %	Добавлено ^{235}U , кг/т	Добавлено ^{238}U , кг/т
1			
2	-2,9		
3	-1		
4	0		
5		2,2	0,22
6		2	0,2
7		1	0,1
8	0		
9	0		
10	-0,5		
11	-1		
12	-1		
13	-1		
14	-1,2		
15	-1,5		
16	-1,5		
17	-1,5		
18	-1,5		
19	-1,5		
20	-1,5		

Удельные значения изотопов, извлекаемых из топлива при его переработке, приведены на рис. 5. Сравнительно большое количество извлекаемого ^{237}Np обусловлено большим содержанием ^{235}U в стартовом топливе первой кампании, его выгоранием в последующих кампаниях. Изменение его содержания с ростом номера кампании подобно поведению содержания изотопа ^{236}U (рис. 4). Это подобие сохраняется и для ^{238}Pu . Изменение в поведении ^{239}Pu обусловлено его наработкой на ^{238}U исходного высокообогащенного урана. Влияние ^{238}U распространяется и на содержание ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am . Важно отметить, что с понижением влияния стартового высокообогащенного урана с ростом номера кампании понижается количество каждого из извлекаемых актиноидов до их выхода на равновесные (наименьшие) значения. Причем содержание америция носит «следовый» характер.

Еще раз отметим, что извлечение нептуния, плутония и америция при переработках топлива после каждой кампании и переход на «укороченный торий-уран-плутониевый» топливный цикл может оказаться полезным в связи со следующим:

- упрощением изготовления свежего топлива (торий-уранового) на первом этапе ториевой энергетики;
- экономией стартового высокообогащенного урана;
- эффективной наработкой нептуния.

Эти же элементы можно использовать в топливе при рециклировании с улучшенным нейтронным балансом после выхода на равновесные (пониженные) значения содержания изотопа ^{236}U . Другими словами, на первой стадии ториевой энергетики возможно использование отложенного замкнутого торий-уран-плутониевого топливного цикла.

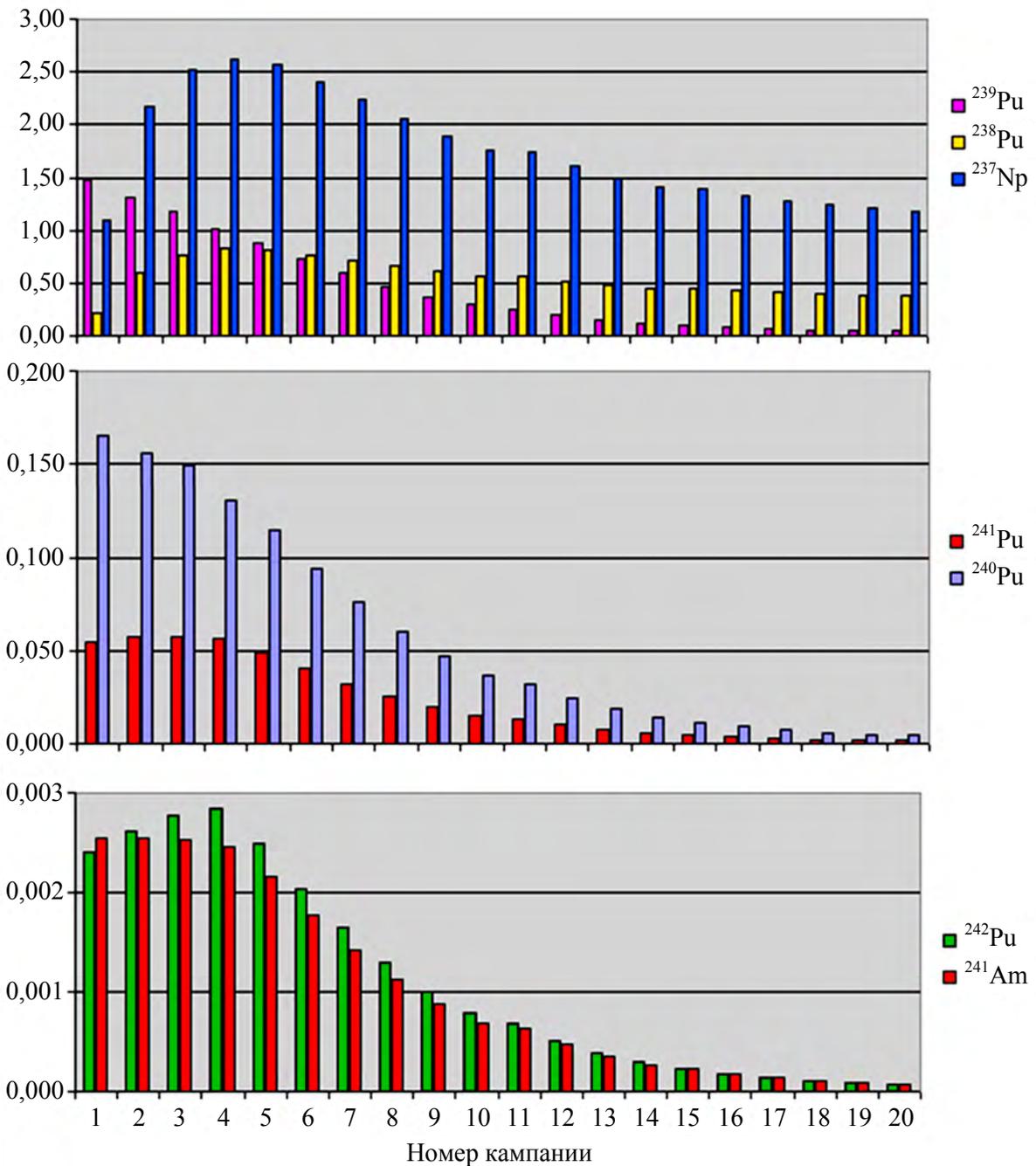


Рис. 5. Удельные (кг/т) значения изотопов нептуния, плутония и америция, извлекаемых из топлива после каждой кампании

Равновесный изотопный состав торий-уран-плутониевого топливного цикла

Проиллюстрированный выше выход на расширенное воспроизводство активных изотопов при водотопливном отношении $V_B/V_T = 1,23$ ($R_B = 0,75$ см) естественно будет сопровождаться выходом на равновесный изотопный состав топлива. По-видимому, наиболее

представительным будет устанавливаться равновесие при стартовой загрузке реактора оксидным $^{233}\text{U-Th}$ топливом.

На рис. 6 приведено изменение удельного содержания наиболее важных актиноидов при их рециклировании оксидного $^{233}\text{U-Th}$ топлива в десяти последовательных кампаниях для ячейки с радиусом воды $R_B = 0,75$ см (водотопливным 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}Th в первой кампании равно 937 кг/т, в десятой кампании – 897 кг/т) подвергается торий. Его выгорание в качестве сырьевого материала обеспечивает наработку и воспроизводство ос-

новного делящегося изотопа ^{233}U и последующих изотопов в процессе каждой кампании. К остающемуся после каждой кампании торью и нарабатываемым актиноидам на старте последующей кампании добавляется необходимое для дальнейшего рециклирования количество сырьевого тория.

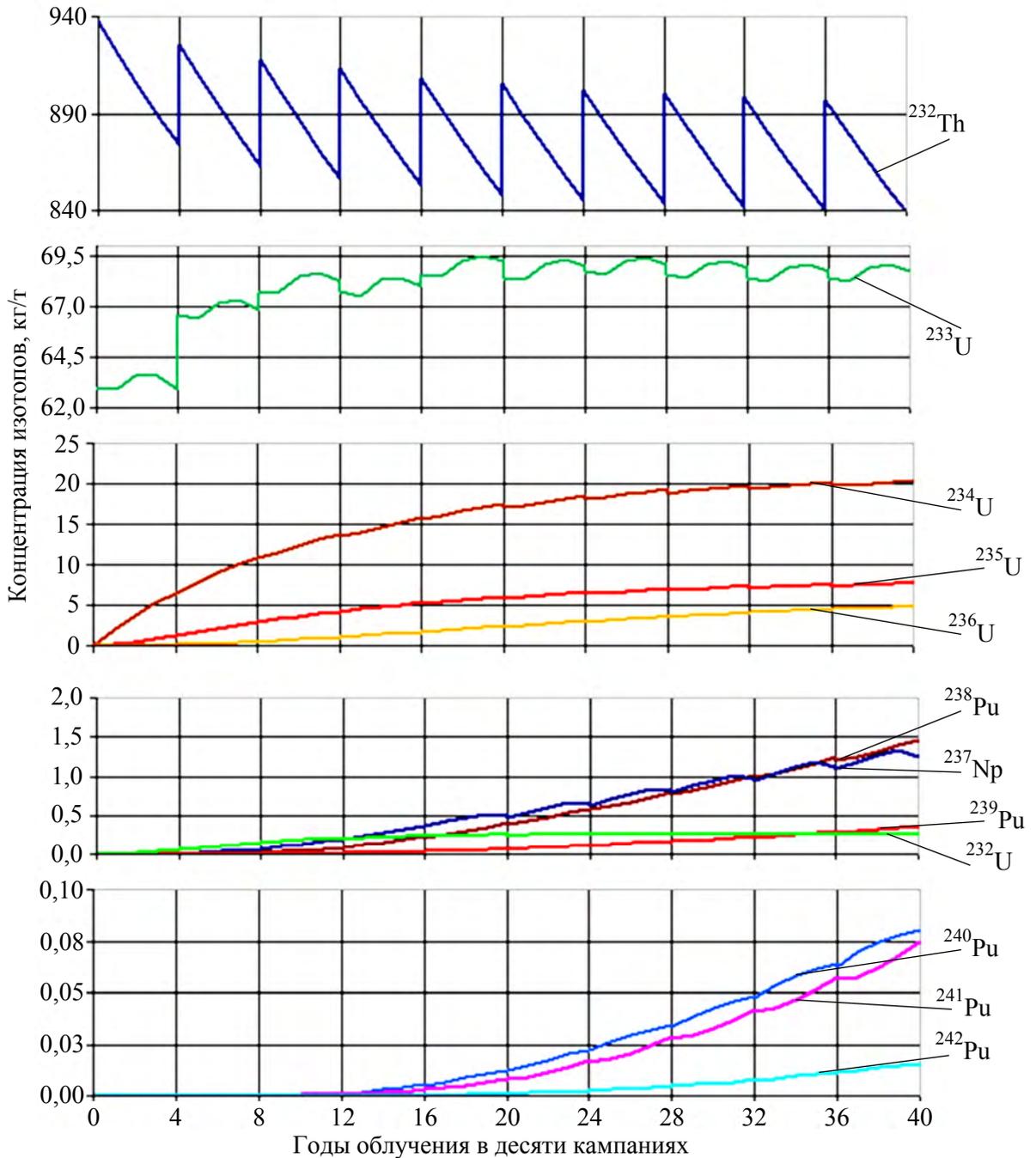


Рис. 6. Изотопное преобразование в десяти последовательных кампаниях

Обеспечение критического состояния на старте первой кампании потребовало 63 кг/т изотопа ^{233}U , что на 9 кг/т меньше, чем для ячейки с радиусом воды $R_b = 0,70$ см. Как и в предыдущих [2] расчетах (с $R_b = 0,70$ см), в начале каждой кампании наблюдается понижение содержания ^{233}U , обусловленное выгоранием и задержкой его наработки из-за сравнительно большого периода полураспада ^{233}Pa , равного ~ 27 суткам. Затем наработка ^{233}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 воспроизводства ^{233}U относительно предыдущих расчетов [2]. Следует отметить, что после окончания каждой кампании в облученном топливе содержится $\sim 1,5$ кг/т изотопа ^{233}Pa , который распадается в ^{233}U , и в расчетах он добавляется к ^{233}U при загрузке последующей кампании. При этом к извлеченному актиноидному составу топлива после первой кампании для обеспечения критического состояния на старте второй кампании потребовалось добавить $\sim 2,2$ кг/т изотопа ^{233}U . Начиная с 5-й кампании нарабатываемое количество и состав актиноидов (с учетом распада ^{233}Pa в ^{233}U) превышает на 1-2,5 % их необходимое количество для достижения критического состояния при загрузке для последующей кампании. После 4-й кампании изменение удельного содержания ^{233}U практически повторяется в последующих кампаниях. Таким образом, на старте первой кампании загружается 63 кг/т ^{233}U , на старте второй кампании расходуется $64,4 + 2,2 = 66,6$ кг/т ^{233}U . На финише 10-й кампании его содержание в топливе составляет $68,7 + 1,4 = 70,1$ кг/т. При этом извлекается при переработках топлива после пятой и последующих кампаний дополнительное количество ^{233}U в смеси с другими актиноидами.

Удельное содержание ^{234}U и более тяжелых долгоживущих изотопов и элементов увеличивается 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.

Результаты расчетов, начиная с 5-й кампании (см. рис. 6), показывают практически постоянное содержание изотопа ^{233}U (~ 68 кг/т) в топливе стартовых композиций при увеличении содержания нарабатываемых более тяжелых изотопов и элементов за счет выгорания ^{232}Th . Это позволяет оценить равновесное содержание нарабатываемых изотопов (более тяжелых, чем ^{233}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}U ;
- фиксированном начальном содержании ^{233}U , равном 68 кг/т;
- принятии скоростей реакций деления ядер и радиационного захвата нейтронов ими равными 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}U , заселяемых в соответствии с непрерывным облучением нейтронами.

Во втором столбце табл. 7 приведены равновесные значения (кг/т) долгоживущих изотопов, полученные с использованием значений скоростей реакций, соответствующих старту десятой кампании. Чтобы оценить влияние разбавления тяжелой воды легкой водой на полученные значения расчет повторен с использованием значений скоростей реакций, соответствующих концу десятой кампании. Результаты этого расчета приведены в третьем столбце табл. 7. В соответствии с изменением скоростей реакций деления ядер и радиационного захвата нейтронов ими в процессе кампаний в качестве равновесных зна-

чений для каждого изотопа следует принимать промежуточные значения между значениями второго и третьего столбцов. Полученные значения равновесных значений долгоживущих изотопов являются оценкой сверху, потому что при ее проведении содержание всех изотопов, кроме ^{233}U , непрерывно росло 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 других столбцах и получены следующим способом. Решалась система дифференциальных уравнений относительно скоростей изменения изотопного состава с использованием значений скорос-

тей реакций, соответствующих старту десятой кампании, с начальным (при $t = 0$) условием содержания ^{233}U , принятого равным 68 кг на тонну тяжелого металла. Для каждого изотопа определялось время, при котором его содержание на 5; 1; 0,1 % ниже равновесного.

Следует отметить, что выявленные ранее [2] закономерности и особенности равновесных значений и времени подхода к ним сохраняются и при увеличении водотопливного отношения.

Несмотря на относительную малость вероятности радиационного захвата нейтронов изотопом ^{233}U , наибольшую вероятность его деления и высокую вероятность радиационного захвата нейтронов нарабатываемым ^{234}U , со временем накапливается значительное количество ^{234}U , которое и определяет накопление более тяжелых изотопов и элементов.

Таблица 7

Оценка равновесных значений и продолжительности облучения для достижения содержания на 5; 1; 0,1 % ниже равновесных значений долгоживущих изотопов с использованием скоростей реакций из десятой кампании при содержании ^{233}U 68 кг на тонну тяжелого металла

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

Равновесное значение ^{235}U на порядок меньше содержания основного делящегося изотопа ^{233}U , что определяется его наработкой при поглощении нейтронов ^{234}U и выгоранием в процессах деления и радиационного захвата нейтронов ^{235}U . Время выхода ^{235}U на равновесное значение значительно дольше аналогичного выхода для ^{234}U . Следует отметить, что деление ^{235}U понижает вероятность радиационного захвата нейтронов ^{235}U и последующими изотопами и сопровождается значимым улучшением нейтронного баланса в активной зоне.

Относительно большое количество ^{236}U обуславливается сравнительно высокой вероятностью радиационного захвата нейтронов ^{235}U относительно вероятности радиационного захвата нейтронов самим ^{236}U . Это же обуславливает значительное повышение времени выхода на равновесное значение для ^{236}U .

Сравнительно низкое содержание ^{237}Np и высокое содержание ^{238}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}Pu , сравнительно высокая относительная вероятность деления ^{239}Pu сопровождаются уменьшением его равновесного значения и дальнейшим увеличением времени выхода на его равновесное значение.

Деление изотопов ^{239}Pu , ^{241}Pu нейтронами всех энергий дополнительно повышает глубину трансмутации выгоревшего тория, понижает их содержание и содержание последующих изотопов плутония, америция, кюрия. При этом увеличивается время 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}U , ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}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 (второй и третий столбцы табл. 7) актиноидов в качестве стартовых топливных загрузок. При этом использовалось разбавление тяжелой воды легкой водой (набор значений α и скоростей реакций), как в десятой кампании.

Оказалось, что при использовании равновесных значений второго столбца табл. 6 для обеспечения критического состояния достаточно 99,5 % актиноидов равновесного состава, а при использовании значений третьего столбца – 99 %. Это иллюстрирует возможность замыкания по всем актиноидам и в равновесном изотопном составе.

В табл. 8 приведено изменение изотопного состава в процессе четырехлетней кампании. Видно, что для подавляющего числа изотопов наблюдаются практически постоянные значения их содержания. Только для изотопов ^{238}Pu и ^{240}Pu , характеризующихся аномально низким и высоким значениями резонансного интеграла радиационного захвата нейтронов соответственно, наблюдаются значительные изменения, причем в сторону их сближения.

В равновесном состоянии удельное значение содержания тория составляет ~88 % в начале кампании и ~83 % в конце кампании, эта разница соответствует накоплению продуктов деления и восстанавливается на старте следующей кампании. Удельное значение содержания изотопов урана практически не меняется в процессе кампании и находится на уровне ~10 %. Удельное содержание изотопа ^{237}Np находится на уровне ~0,2 %. Удельное содержание изотопов плутония практически не меняется в процессе кампании и находится на уровне ~0,5 %, причем основная доля (~0,35 %) приходится на изотоп ^{238}Pu . Удельное содержание изотопов америция и кюрия находится на уровне сотых долей процента. Таким образом, основное содержание топлива составляют торий и уран.

Таблица 8

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

Изотопы	Время облучения топлива, год				
	0	1	2	3	4
	α				
	1	0,965	0,95	0,932	0,91
²⁴⁴ Cm	7.00E-02	6.99E-02	7.00E-02	7.04E-02	7.12E-02
²⁴³ Am	7.98E-02	8.11E-02	8.28E-02	8.48E-02	8.69E-02
²⁴² Pu	1.17E-01	1.16E-01	1.15E-01	1.14E-01	1.13E-01
²⁴² Cm	8.86E-03	8.85E-03	8.96E-03	9.18E-03	9.53E-03
²⁴¹ Pu	3.01E-01	3.16E-01	3.31E-01	3.43E-01	3.54E-01
²⁴¹ Am	7.44E-02	7.43E-02	7.47E-02	7.54E-02	7.60E-02
²⁴⁰ Pu	4.23E-01	4.04E-01	3.81E-01	3.56E-01	3.28E-01
²³⁹ Pu	1.07E+00	1.06E+00	1.04E+00	1.03E+00	1.01E+00
²³⁸ U	1.40E-02	1.40E-02	1.40E-02	1.39E-02	1.39E-02
²³⁸ Pu	3.29E+00	3.26E+00	3.26E+00	3.26E+00	3.27E+00
²³⁷ Np	2.08E+00	2.12E+00	2.13E+00	2.13E+00	2.13E+00
²³⁶ U	6.70E+00	6.69E+00	6.69E+00	6.69E+00	6.69E+00
²³⁵ U	7.60E+00	7.64E+00	7.69E+00	7.75E+00	7.83E+00
²³⁴ U	2.06E+01	2.08E+01	2.10E+01	2.12E+01	2.14E+01
²³³ Pa	0.00E+00	1.51E+00	1.46E+00	1.40E+00	1.35E+00
²³³ U	6.90E+01	6.88E+01	6.93E+01	6.94E+01	6.89E+01
²³² Th	8.89E+02	8.74E+02	8.59E+02	8.45E+02	8.32E+02

Трансмутационные возможности торий-уран-плутониевого топливного цикла

Изменение удельного содержания каждого изотопа, подвергающегося облучению нейтронами, обуславливается тремя реакциями: делением ядра, радиационным захватом нейтрона ядром и реакцией ($n, 2n$) на ядре. Только процесс деления ядер переводит актиноиды в продукты деления и качественно трансмутирует тяжелые ядра, а два других процесса сопровождаются изотопным преобразованием актиноидов. В связи с превышением вероятности радиационного захвата нейтрона ядром над реакцией ($n, 2n$) на ядре изотопное преобразование в реакторах идет в сторону утяжеления ядер. Следует отметить, что реакция деления ядер является основной целевой реакцией, определяющей энерговыделение и размножение нейтронов, что в связи со сравнительно жестким спектром нейтронов из-за использования тяжелой воды в качестве теплоносителя

значимый вклад в число разделившихся ядер вносит деление пороговеделящихся изотопов.

Большое (~ 900 кг/т) удельное содержание тория и сравнительно жесткий спектр нейтронов обуславливают непосредственное деление пороговеделящихся ядер тория на уровне $\sim 1,2$ кг/т в каждой кампании. Изотоп ²³³U, нарабатываемый на тории, является основным делящимся изотопом. Его вклад в число разделяющихся ядер за кампанию находится на высоком уровне, ~ 47 кг/т, даже в равновесном состоянии. Пороговеделящийся изотоп ²³⁴U, нарабатываемый на ²³³U, делится только быстрыми нейтронами, и его вклад в число разделяющихся ядер за кампанию в равновесном состоянии находится на уровне $\sim 0,7$ кг/т. Следующим по величине вклада в число разделяющихся ядер за кампанию (после ²³³U) является активный изотоп ²³⁵U, нарабатываемый на ²³⁴U. Его вклад составляет ~ 4 кг/т. Далее в последовательном радиационном захвате нейтронов

заселяются три долгоживущие пороговеделяющиеся ядра ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , вклад которых в число разделяющихся ядер находится на уровне $\sim 0,1$ кг/т, $\sim 0,07$ кг/т, $\sim 0,5$ кг/т, соответственно. Затем заселяются и делятся изотопы плутония ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , вклад которых в число разделяющихся ядер находится на уровне $\sim 0,55$ кг/т, $\sim 0,01$ кг/т, $\sim 0,25$ 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}U , ^{234}U , ^{235}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}U , ^{237}Np . Именно на стадии прохождения изотопов ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U трансмутируется реакцией деления подавляющая доля, $(47 + 0,7 + 4)/55 \approx 0,94$, сырьевых ядер ^{232}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 характеризуется $\sim 0,1\%$ для каждого элемента. Таким образом, при переработке одной тонны облученного топлива после каждой четырехлетней кампании радиоактивные отходы будут содержать ~ 54 кг продуктов деления, $\sim 0,8$ 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.

На всех этапах топливного цикла имеет место технологический барьер на пути несанкционированного распространения расщепляющихся материалов в виде содержания

радиологически опасного изотопа ^{232}U в уране и высокого нейтронного фона от четно-четных изотопов плутония в плутонии.

Заключение

В заключение подчеркнем основные результаты. Решение проблем современной ядерной энергетики позволит повысить на ~ 2 порядка топливный ресурс; качественно упростить обращение с радиоактивными отходами; понизить ядерную опасность реактора; создать технологический барьер на пути распространения расщепляющихся материалов и ядерных технологий. Можно ожидать, что реализация этих резервов и приведет к преодолению наметившейся стагнации и бурному наращиванию мощностей ядерной энергетики.

Основной результат состоит в том, что в расчетно-теоретических исследованиях показана возможность самовоспроизводства изотопов урана $^{233}\text{U} + ^{235}\text{U}$ в торий-урановом ($^{232}\text{Th}-^{233}\text{U}$) топливе в реакторах типа PWR (ВВЭР). Эта возможность обеспечивается нейтронно-ядерными свойствами ^{233}U , ^{232}Th и наличием уникальной способности воды, используемой в качестве замедлителя и теплоносителя, менять свой состав в процессе работы реактора. Использование D_2O в начале работы реактора в критическом состоянии обеспечивает повышенное содержание ^{233}U в топливе, пониженный захват нейтронов водой и ядрами тяжелых элементов, в том числе и самим ^{233}U , особенно при пониженном водотопливном отношении. При непрерывном выгорании ^{233}U и задержке его воспроизводства из-за распада ^{233}Pa критическое состояние реактора может быть обеспечено непрерывным разбавлением тяжелой воды легкой водой и смягчением спектра нейтронов.

Предложен эффективный и безопасный способ утилизации высокообогащенного урана с торием в наиболее отработанных реакторах типа ВВЭР с наработкой изотопа ^{233}U при использовании Th-U-Pu оксидного топлива, тяжелой воды и ее разбавления легкой водой. Поглощение нейтронов изотопами ^{232}Th с нара-

боткой ^{233}U является наиболее эффективным их использованием, повышающим качество ядерного топлива. В три раза меньшее количество нарабатываемого ^{233}U относительно выгорающего ^{235}U при удержании ячейки в критическом состоянии экономит нейтроны и повышает вероятность выгорания пороговделяющихся изотопов. Рассмотрено 11-кратное рециклирование четырехлетних кампаний с замыканием топлива по всем долгоживущим актиноидам. 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}U . Просматривается возможность самоограничения актиноидного состава изотопами плутония.

Показано, что извлечение нептуния, плутония и америция при переработках топлива после каждой кампании и переход на «укороченный торий-уран-плутониевый» топливный цикл может оказаться полезным в связи со следующим:

- упрощением изготовления свежего топлива (торий-уранового) на первом этапе ториевой энергетики;
- экономией стартового высокообогащенного урана;
- эффективной наработкой нептуния.

Выполнены оценки равновесных значений изотопного состава и времени выхода изотопов в равновесие при рециклировании торий-уран-плутониевого оксидного топлива в реакторах типа ВВЭР с водотопливным отношением $V_{\text{в}}/V_{\text{т}} = 1,23$, с использованием тяжелой воды и ее разбавления легкой водой. 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}U , ^{234}U , ^{235}U и самого тория. Именно на стадии прохождения изотопов ^{233}U , ^{234}U , ^{235}U трансмутируется реакцией деления подавляющая доля, $(47 + 0,7 + 4)/55 \approx 0,94$, сырьевых ядер

^{232}Th , испытавших радиационный захват нейтронов. Их деление обуславливает возможность обеспечения положительного нейтронного баланса вследствие не только рождения нейтронов, но и понижения доли далее заселяемых ядер-поглотителей нейтронов ^{236}U , ^{237}Np . При этом вклад изотопов плутония в деление ядер находится на уровне $\sim 2\%$ и играет второстепенную роль.

В замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле актиноиды рециклируются, а их потери и попадание в радиоактивные отходы определяются возможностями переработки облученного топлива, уровень которой характеризуется $\sim 0,1\%$ для каждого элемента. Таким образом, при переработке одной тонны облученного топлива после каждой четырехлетней кампании радиоактивные отходы будут содержать ~ 54 кг продуктов деления, $\sim 0,8$ кг тория, $\sim 0,1$ 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.

На всех этапах топливного цикла имеет место технологический барьер на пути несанкционированного распространения расщепляющихся материалов в виде содержания радиологически опасного изотопа ^{232}U в уране, обогащенном изотопом ^{233}U , и высокого нейтронного фона от четно-четных изотопов плутония в плутонии.

Полученные результаты позволяют считать, что нейтронная кинетика и изотопное преобразование в замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле представляются наиболее оптимальными и эффективными. Требуется конструкторская проработка возможностей адаптации активной зоны реакторов типа ВВЭР, а может, и канальных реакторов, для обеспечения использованных выше условий. Необходимы разработки технологий по переработке облученного и изготовления свежего топлива с широким изотопным составом актиноидов.

Автор настоящей статьи выражает благодарность В. Ф. Колесову за полезные обсуждения результатов и В. М. Повышеву за многолетнее сотрудничество.

Список литературы

1. Маршалкин В. Е., Повышев В. М., Трутнев Ю. А. Целесообразность использования избыточных количеств оружейного урана и плутония и энергетического плутония для перевода тепловых реакторов на замкнутый торий-урановый топливный цикл // Труды семинара «Новые подходы к ядерным топливным циклам и схемам захоронения отходов с учетом существующих избыточных количеств оружейных урана и плутония и энергетического плутония» / Под ред. В. Е. Маршалкина. – Саров: РФЯЦ-ВНИИЭФ, 1998, с. 179–187.
2. Marshalkin V. E., Povyshhev V. M. Physics of Atomic Nuclei, 2015, vol. 78, N 11, p. 1274–1286.
3. 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.
4. Calculation of the isotopic composition, crossections and fluxes for a typical PWR-cell loaded mith (PU-Th) O₂-fuel, as a function of the fuel burnup // Report of IAEA, 1996.
5. 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.
6. Пат. РФ № 2541516, МПК G21C1/00. Способ эксплуатации ядерного реактора в ториевом топливном цикле с расширенным воспроизводством изотопа ²³³U / В. Е. Маршалкин, В. М. Повышев // Изобретения. Полезные модели. 2015. № 5.
7. Маршалкин В. Е., Повышев В. М. Эффективное использование оружейного урана в ядерной энергетике // Атом, 2015, № 65, с. 35–39.

Контактная информация –

Маршалкин Василий Ермолаевич,
ведущий научный сотрудник ИТМФ,
РФЯЦ-ВНИИЭФ
e-mail: VEMarshalkin@vniief.ru

Статья поступила в редакцию 26.05.2017.

Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2017, вып. 4, с. 54–75.