

ПРЕИМУЩЕСТВА ЗАМКНУТОГО ТОРИЙ-УРАН-ПЛУТОНИЕВОГО ТОПЛИВНОГО ЦИКЛА ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ БУДУЩЕГО НАД СЕГОДНЯШНИМ УРАН-ПЛУТОНИЕВЫМ ЦИКЛОМ

В. Е. Маршалкин

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

Статья поступила в редакцию 06.06.2019, после доработки – 09.08.2019, принята к публикации – 04.10.2019

Делящиеся материалы первого поколения уран и плутоний исчерпали свои возможности в открытом уран-плутониевом топливном цикле и не позволяют решить выявившиеся при этом проблемы современной ядерной энергетики. Предлагается заменить при переходе от открытого топливного цикла к закрытому не тип реактора (тепловой на быстрый), а делящиеся материалы ^{238}U - ^{239}Pu на более подходящие для ядерной энергетики ^{232}Th - ^{233}U , то есть перейти на материалы второго поколения. Это позволяет повысить на ~2 порядка топливный ресурс; качественно упростить обращение с радиоактивными отходами; понизить ядерную опасность реактора типа ВВЭР; создать технологический барьер на пути распространения расщепляющихся материалов и ядерных технологий.

Ключевые слова: реактор типа ВВЭР; ^{232}Th и ^{233}U -изотопы второго поколения; тяжелая вода-теплоноситель и ее разбавление легкой водой; самообеспечение топлива активными изотопами; замкнутый торий-уран-плутониевый топливный цикл; утилизация высокообогащенного урана; естественная трансмутация актиноидов реакцией деления, упрощение обращения с радиоактивными отходами.

ADVANTAGES OF THORIUM-URANIUM-PLUTONIUM FUEL CYCLE IN THE FUTURE NUCLEAR POWER INDUSTRY OVER THE CURRENT URANIUM-PLUTONIUM FUEL CYCLE / V. E. MARSHALKIN // Fissile materials of the first generation – uranium and plutonium – exhausted their potential in the open uranium-plutonium fuel cycle and don't allow resolving the problems of the modern nuclear power industry. In the changeover from the open fuel cycle to the closed one, it is suggested to replace ^{238}U - ^{239}Pu fissile materials by ^{232}Th - ^{233}U materials, which are more appropriate for nuclear industry, i.e. it is suggested to use materials of the second generation, rather than reactors of the other type (fast reactors instead of thermal reactors). This would allow extending the fuel lifetime by ~ 2 orders of magnitude, simplifying the radioactive waste management, reducing the nuclear risks of the VVER-type reactors, and creating a technological barrier against the propagation of fissile materials and nuclear technologies.

Key-words: VVER-type reactor; ^{232}Th and ^{233}U isotopes of the second generation; heavy water as a coolant and its dilution with light water; self-production of active isotopes in fuel; closed thorium-uranium-plutonium fuel cycle; natural transmutation of actinides by fission reaction; simplifying the radioactive waste management.

Введение

Потребительские характеристики любых изделий во многом определяются свойствами материалов, из которых они изготовлены.

В связи с этим одним из наиболее эффективных путей технического прогресса и совершенствования изделий является выбор материала с наиболее подходящими для этого изделия свойствами. Как правило, эволюция ма-

териалов проходит путь от существующих в природе до искусственно получаемых. Например, смена топливных материалов от дров, каменного угля, нефти, нефтепродуктов, газа до ядерных материалов сопровождалась расширением возможностей их использования от индивидуального обогрева и приготовления пищи до сооружения крупных тепловых станций для обеспечения энергией всей инфраструктуры больших городов, создания удобных видов индивидуального транспорта, возможностей перевозок на большие расстояния железнодорожным, морским, авиационным транспортом и так далее. Если проанализировать историю технического прогресса, то можно обнаружить, что наиболее значимые этапы этого развития связаны именно со сменой материалов.

Применительно к ядерной энергетике (ЯЭ) имеет место следующая ситуация. В природе есть только один химический элемент – уран, – который содержит ~ 0,7 % делящегося нейтронами любой энергии изотопа ^{235}U . 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 для этого реакторах.

Наработаны большие количества высокообогащенного урана и плутония оружейного качества. Адаптация реакторов-наработчиков плутония для производства энергии породила ЯЭ в так называемом открытом уран-плутониевом топливном цикле, которая и эксплуатируется в настоящее время. Современная ЯЭ до сих пор использует изотопы ^{235}U , ^{238}U , продолжая в течение полувека безуспешные попытки освоить изотоп ^{239}Pu , таким образом, работает на первом поколении ядерных материалов.

Наряду с несомненными успехами и возможностями современной ЯЭ в ней выявлены тяжелые проблемы, от решения которых зависит ее дальнейшее развитие и место в обеспечении человечества энергией. В современных тепловых реакторах реакцией деления, определяющей энерговыделение, сжигается ~0,5 %

добываемого урана, что ограничивает топливный ресурс ЯЭ. При этом ~10 % добываемого урана переводится в облученное ядерное топливо, являющееся высокоактивным материалом, которое накапливается и осложняет на многие века экологическую обстановку. Высокий запас реактивности современных тепловых реакторов делает их ядерно опасными системами. Высокая (~1 % выгружаемого топлива) наработка плутония создает предпосылку распространения расщепляющегося материала для несанкционированного изготовления ядерных взрывных устройств. Таким образом, прошедшие полвека убедительно показали тупиковый путь дальнейшего развития ЯЭ на основе открытого уран-плутониевого топливного цикла и использования делящихся материалов первого поколения.

Со середины 50-х гг. прошлого века принято считать, что решение этих проблем заключается в переводе ЯЭ на замкнутый уран-плутониевый топливный цикл с использованием реакторов на быстрых нейтронах. Предполагается, что на этом пути удастся обеспечить экономическую эффективность, высокую безопасность, экологическую приемлемость, нераспространение расщепляющихся материалов и ядерных технологий. Однако, как показал исторический эксперимент, техническая реализация этой физически правильной идеи оказалась чрезвычайно трудной. Несмотря на усилия специалистов нескольких поколений и многомиллиардные долларовые затраты (~100 миллиардов долларов), в странах с развитой ЯЭ достичь замыкания топливного цикла по плутонию до сих пор не удалось. Из-за трудностей обеспечения безопасной работы закрыт «Суперфеникс», остановлены быстрые реакторы в Японии. Российские реакторы БН-600 и БН-800 работают на высокообогащенном уране, а не на МОХ-топливе и, таким образом, не полностью оправдывают свое предназначение. Проект «Прорыв» из-за трудностей решения технических проблем быстрых реакторов делает шаг назад и преобразуется в двухкомпонентную ЯЭ с разорительным бюджетом и отсутствием надежды на успех. По нашему мнению, жесткий спектр нейтро-

нов и малопригодные для ЯЭ нейтронно-ядерные и физико-химические свойства ^{239}Pu , используемого в качестве основного делящегося изотопа, не позволяют удовлетворить требования, предъявляемые ЯЭ. Другими словами, делящиеся материалы первого поколения исчерпали свои возможности в открытом уран-плутониевом топливном цикле и не позволяют решить выявившиеся при этом проблемы современной ЯЭ.

Все перечисленные выше и другие проблемы современной ЯЭ являются проблемами уран-плутониевого топливного цикла. Они могут быть кардинально решены путем использования изотопов ^{232}Th и ^{233}U в качестве основных реакторных материалов второго поколения и перевода ядерной энергетики на альтернативный замкнутый по всем актиноидам торий-уран-плутониевый топливный цикл [1]. Использование ^{232}Th вместо ^{238}U в качестве сырьевого изотопа, основного делящегося изотопа ^{233}U вместо ^{235}U и ^{239}Pu , тяжелой воды вместо легкой воды в качестве теплоносителя и ее разбавления легкой водой во время кампании реактора типа ВВЭР для поддержания его в критическом состоянии делают возможным само обеспечение топлива активными изотопами. На этой основе возможно замыкание торий-уран-плутониевого топливного цикла по всем актиноидам, в том числе и после достижения их равновесного изотопного состава. Это позволяет повысить на ~ 2 порядка топливный ресурс; качественно упростить обращение с радиоактивными отходами; понизить ядерную опасность реактора типа ВВЭР; создать технологический барьер на пути распространения расщепляющихся материалов и ядерных технологий.

1. Визуальное сравнение преобразования ядер в топливных циклах

На рис. 1 приведена схема наиболее вероятного актиноидного преобразования сырьевого изотопа ^{232}Th в процессе работы реактора, которая описывается системой зацепляющихся дифференциальных уравнений и характе-

ризуется выгоранием и наработкой изотопов и элементов при их взаимодействии с нейтронами в реакциях деления ядер, радиационного захвата нейтронов (n, γ) ими, ($n, 2n$) реакции, а также учитывает распады нарабатываемых короткоживущих изотопов. В каждой строке находятся изотопы одного и того же химического элемента, преобразование между которыми осуществляется нейтронными реакциями (n, γ) или ($n, 2n$). При этом на каждом изотопе идут обе реакции, на сравнительно быстрых (выше порога) нейтронах идет реакция ($n, 2n$) и на нейтронах любой энергии реализуется реакция (n, γ). Имеет место чередование столбцов с четными и нечетными числами нейтронов, переходы между которыми осуществляются α - или β -распадами. Все актиноиды испытывают α -распад, однако, как правило, его период полураспада для актиноидов много больше, чем у β -распада, характеризуется пониженной вероятностью и, соответственно, опускается на рисунке, но учитывается при решении системы уравнений. Актиниды столбцов с нечетным числом нейтронов делятся надпороговым способом, что помечено в нижней строке символом реакции деления (n, f).

Для каждого изотопа имеет место конкуренция его деления нейтронами, радиационного захвата нейтронов им, ($n, 2n$) реакции на нем и его распада, характеризующаяся соответствующими скоростями $\lambda_f, \lambda_\gamma, \lambda_{n,2n}, \lambda_p$, которые соответственно определяются сечениями $\sigma_f, \sigma_\gamma, \sigma_{n,2n}$, плотностью нейтронного потока ϕ и периодом полураспада $T_{1/2}$ в виде

$$\lambda_f = \sigma_f \phi, \quad \lambda_\gamma = \sigma_\gamma \phi, \quad \lambda_{n,2n} = \sigma_{n,2n} \phi, \\ \lambda_p = 0,693/T_{1/2}.$$

На рис. 1 стрелочками показан один наиболее вероятный процесс преобразования каждого актиноида. В ядерном реакторе скорости R_{ri} процессов r на конкретных ядрах i пропорциональны плотности ядер C_i и имеют вид

$$R_{ri} = \lambda_{ri} C_i.$$

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 I_f и I_γ и чисел вторичных нейтронов на один поглощенный нейтрон η

Изотоп	ν (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

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 облучении этих изотопов образуется достаточное количество вторичных нейтронов и для поддержания цепной реакции (деление следующего ядра) и для наработки делящегося изотопа в процессе радиационного захвата нейтрона сырьевыми изотопами (^{232}Th , ^{240}Pu), характеризующимися пороговой зависимостью сечения деления. В связи с этим усилия по реализации замены замкнутого уран-плутониевого топливного цикла на разработку замкнутого торий-уран-плутониевого топливного цикла путем замены сырьевого материала ^{238}U на ^{232}Th являются естественно бесплодными. По сути дела, при переходе от открытого топливного цикла к замкнутому следует заменить не тип реактора (тепловой на быстрый), а делящиеся материалы (^{238}U - ^{239}Pu на более подходящие для ЯЭ ^{232}Th - ^{233}U), то есть перейти на материалы второго поколения. При этом открывается возможность одновременного последовательного преобразования и выгорания всех актиноидов, начиная с тория, в одной цепочке.

Из рис. 1 видно, что в открытом уран-плутониевом топливном цикле реализуются две независимые «укороченные» цепочки преобразования актиноидов. Одна начинается с изотопа ^{235}U и заканчивается наработкой ^{236}U , ^{237}Np и следовым количеством ^{238}Pu . Другая начинается с ^{238}U и заканчивается наработкой изотопов америция и кюрия. От-

сюда возникает проблема наработки младших актиноидов и изотопов плутония в открытом топливном цикле. В замкнутом уран-плутониевом топливном цикле на быстрых реакторах работает одна «укороченная» цепочка, которая начинается с сырьевого изотопа ^{238}U , с наработкой тех же младших актиноидов. В замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле работает одна цепочка преобразования актиноидов, которая включает все актиноиды, начиная с тория. При этом в цепочке после тория заселяется изотоп ^{233}U , характеризующийся наибольшим сечением деления и наименьшим сечением радиационного захвата нейтронов любой энергии. Это создает предпосылку наименьшей вероятности наработки на нем более тяжелых актиноидов и естественного замыкания топливного цикла [3]. Эта предпосылка усиливается заселением и делением изотопа ^{235}U , нарабатываемого в последовательном радиационном захвате нейтронов изотопами ^{233}U и ^{234}U . При этом практически на порядок понижается вероятность заселения изотопов ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu относительно их заселения в открытом уран-плутониевом топливном цикле и открывается возможность обеспечения заселения и деления изотопов ^{239}Pu , ^{241}Pu . Их деление дает относительно малый вклад в энерговыделение, но значительно понижает наработку изотопов америция и кюрия. Таким образом, создается предпосылка замыкания по всем актиноидам торий-уран-плутониевого топливного цикла.

2. Зависимость энергетического распределения нейтронов в топливе от используемого теплоносителя в замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле

В наших предыдущих статьях [3, 4] описана методика расчета и получены результаты расчетов энергетического распределения плотности нейтронного потока, изменения удельного содержания изотопов, скоростей реакций, энерговыделения в топливе работающего реактора типа ВВЭР с использованием тяжелой воды в качестве теплоносителя и ее разбавления легкой водой в процессе кампании в замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле. Расчеты проводились в поисковом режиме в ячеечном приближении. В частности, выполнены расчеты зависимости плотности нейтронного потока от энергии нейтронов для ряда используемых теплоносителей, результаты которых приведены на рис. 2.

На рис. 2 видно, что в резонансной области энергии нейтронов $1 < \epsilon < 1000$ эВ плотность их потока при использовании воды любого состава в качестве теплоносителя на несколько (до 5) порядков выше, чем при использовании в качестве теплоносителя натрия или

свинца. Поэтому использование в качестве теплоносителя натрия или свинца практически лишает реактор отрицательного температурного (доплеровского) коэффициента реактивности, что представляется трудноосуществимой потерей в обеспечении безопасности работы реактора на быстрых нейтронах. В энергетической области от ~ 20 до ~ 100 эВ при использовании воды любого состава в качестве теплоносителя значения плотности потока практически совпадают. При более высоких значениях энергии нейтронов их спектр является более жестким при использовании тяжелой воды до энергии ~ 3 МэВ, выше которой плотность потока нейтронов в основном определяется взаимодействием нейтронов с тяжелыми ядрами топлива. В связи с тем, что резонансная область сечения радиационного захвата нейтронов в ^{232}Th находится в энергетическом интервале $\sim 20 < \epsilon < 500$ эВ, температурный (доплеровский) коэффициент реактивности является максимальным (по абсолютной величине) при использовании тяжелой воды. Вместе с этим при $\epsilon < 20$ эВ плотность нейтронного потока при использовании тяжелой воды понижается относительно использования легкой воды, и при $\epsilon = 0,025$ эВ это понижение достигает ~ 1000 раз.

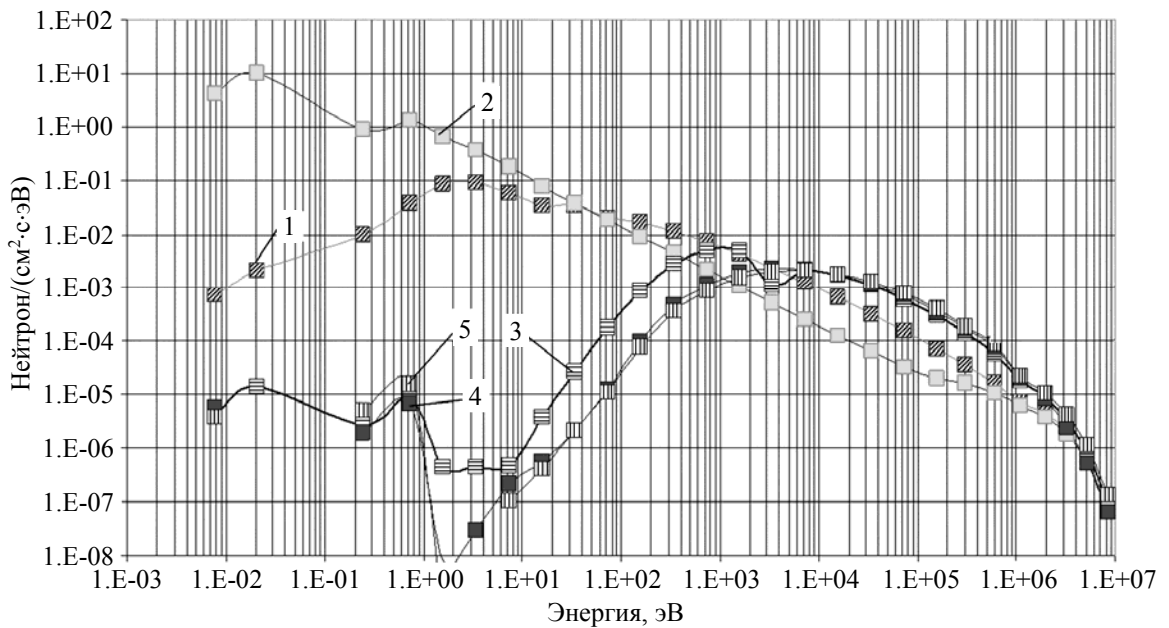


Рис. 2. Энергетическое распределение плотности потока [нейтронов/см²·с·эВ] в топливе в зависимости от теплоносителя: D₂O (1), H₂O (2), Na (3), Pb (4), вакуум (5)

В табл. 2 приведено удельное содержание ^{233}U в кг на тонну тяжелого металла в ^{233}U -Th оксидном топливе в критическом состоянии той же 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 – изменением параметра α в водяной смеси теплоносителя, описываемой выражением

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

Изменение этих параметров обуславливает изменение энергетического распределения нейтронов в топливе и соответствующее изменение нейтронной кинетики. Из табл. 2 видно, что понижение водотопливного отношения (понижение радиуса воды R_B) сопровождается повышением удельного содержания ^{233}U (кг/т) в топливе, необходимого для удержания ячейки в критическом состоянии. Разбавление тяжелой воды легкой водой сопровождается понижением удельного содержания ^{233}U (кг/т) в топливе, необходимого для ее удержания в критическом состоянии при выгорании активных изотопов и наработке поглотителей нейтронов в процессе работы реактора. Именно замена D на H сопровождается увеличением вероятности перевода нейтронов в тепловую область и соответствующим повышением вероятности деления активных ядер нейтронами относительно поглощения нейтронов в их радиационном захвате ядрами сырьевых материалов. Таким образом, видна возможность значимого влияния водотоплив-

ного отношения и состава воды на топливную загрузку ячейки (реактора).

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 [4, 5] обеспечения оптимальной нейтронной кинетики и эффективного изотопного преобразования в ^{233}U - ^{232}Th топливе водо-водяного реактора с расширенным воспроизводством изотопа ^{233}U и сравнительно простой реализацией. Отсутствие обычно используемого запаса реактивности качественно понижает ядерную опасность реактора. Сравнительно большой период полураспада ^{233}Pa ($T_{1/2} = 27$ суток), нарабатываемого на то-
рии 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 со значимым изменением спектра нейтронов является уникальной.

Таблица 2

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_B , водотопливного отношения V_B/V_T и параметра α -разбавления тяжелой воды легкой водой

R_B , см	V_B/V_T	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

В порядке оценки скорости разбавления $\Delta\alpha/\Delta t$ отметим, что понижение $\Delta\alpha = 0,05$ соответствует понижению количества урана на ~ 13 кг/т при сохранении ячейки в критическом состоянии, 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.

3. 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 ЯЭ. Это проект ВОУ-НОУ, в рамках которого 500 тонн российского высокообогащенного урана было разбавлено обедненным ураном, продано американцам и сожжено ими обычным образом в реакторах PWR. При этом было потеряно главное качество исходного материала, обусловленное его высоким обогащением.

Нам представляется наиболее эффективным сжигание [6] 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. Как выше отмечено, 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 на поддержание цепной реакции деления ядер и производства изотопа ^{233}U .

В связи с разницей в значениях критической массы шаров из ^{235}U (~ 47 кг) и из ^{233}U ($\sim 15,6$ 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 и для деления следующих ядер, и для поддержания критического состояния реактора при использовании тория в качестве сырьевого изотопа и наработки изотопа ^{233}U . Как выше показано, деление нарабатываемых ядер ^{233}U нейтронами любой энергии сопровождается образованием более двух вторичных нейтронов на поглощенный нейтрон и соответственно может обеспечить расширенное воспроизводство $[3-6]^{233}\text{U}$. Дополнительным источником нейтронов является деление пороговых изотопов ^{232}Th , ^{234}U , ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{240}Pu быстрыми нейтронами, а также деление короткоживущих беспороговых ядер, в конкуренции с их распадом и радиационным захватом ими нейтронов.

На рис. 3–5 приведено изменение удельного содержания изотопов топлива в течение 44 лет облучения при удельной мощности ячейки 211 Вт/см, радиусе воды $R_B = 0,8$ см (водотопливное отношение $V_B/V_T = 1,58$) и использовании 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 по-

следующей кампании оказалось необходимым добавление 7~5 кг/т обогащенного урана к актиноидам, извлекаемым из отработавшего топлива предыдущей кампании.

Как показано на рис. 3–5 картину изотопного преобразования можно условно представить в виде трех групп. Первая, наиболее интенсивно меняющаяся группа представлена на рис. 3 и связана с нейтронами деления стартового изотопа ^{235}U , их преобладающим поглощением ^{232}Th (из-за его большого содержания), наработкой изотопа ^{233}U , делением ^{233}U и радиационным захватом нейтронов им с наработкой ^{234}U , последующим захватом нейтронов ^{234}U и наработкой исходного изотопа ^{235}U . Этот «укороченный» замкнутый торий-урановый цикл интенсивно работает на протяжении всех кампаний и в каждой кампании в основном определяет энерговыделение, нейтронную кинетику и изотопное преобразование в топливе.

Вторая группа представлена на рис. 4 и связана с радиационным захватом нейтронов изотопом ^{235}U с наработкой ^{236}U и с 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. Нетрудно догадаться, что необходимость добавления в топливо стартовых загрузок высокообогащенного урана после второй кампании обуславливается интенсивной наработкой изотопов ^{234}U и ^{236}U , которые являются поглотителями нейтронов.

Третья группа представлена на рис. 5 и связана с изотопами плутония.

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 и последующих изотопов и элементов. Аналогичная ситуация имеет место с парой ^{241}Pu и ^{242}Pu . Нетрудно увидеть сравнительно низкую интенсивность наработки, изотопного преобразования и, соответственно, второстепенную роль плутония в энерговыделении в таком топливе. При этом процесс деления ядер плутония ограничивает наработку ядер америция, кюрия и изотопов более тяжелых элементов. Из рис. 5 видно, что использование в стартовой топливной композиции урана с более высоким обогащением изотопом ^{235}U будет сопровождаться соответствующим понижением наработки изотопов плутония и более тяжелых элементов.

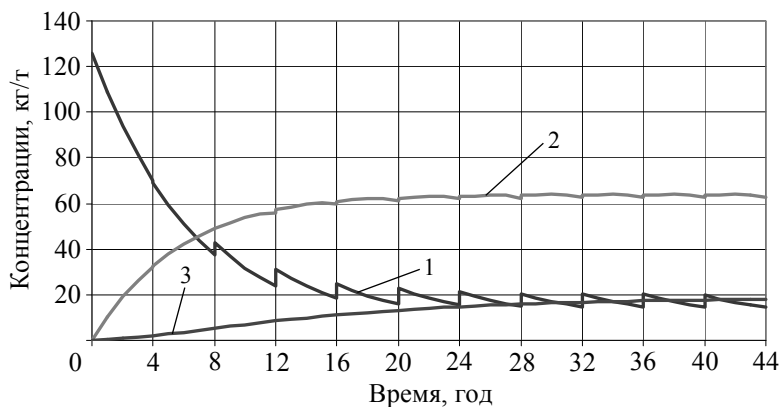


Рис. 3. Временная зависимость изменения удельного содержания ^{235}U (1), ^{233}U (2), ^{234}U (3) в топливе

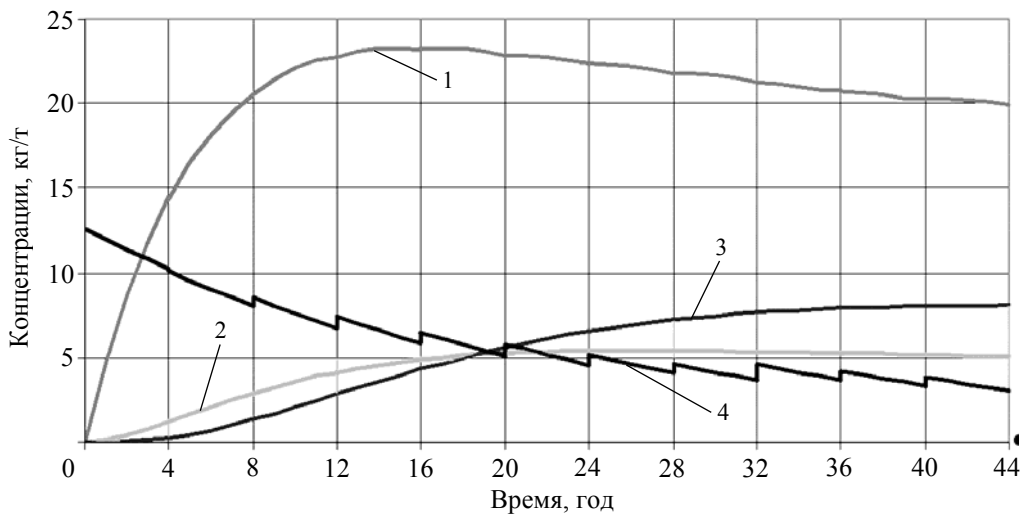


Рис. 4. Временная зависимость изменения удельного содержания ^{236}U (1), ^{237}Np (2), ^{238}Pu (3) и ^{238}U (4) в топливе

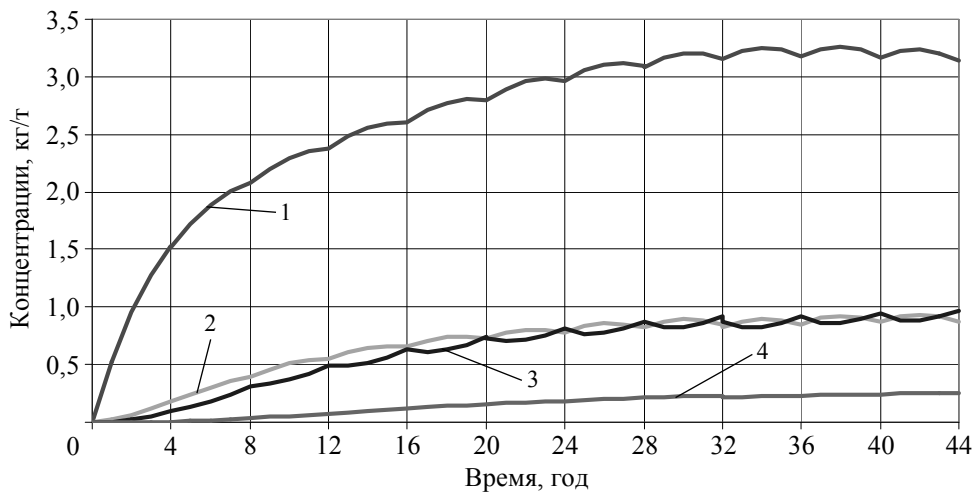


Рис. 5. Временная зависимость изменения удельного содержания ^{239}Pu (1), ^{240}Pu (2), ^{241}Pu (3) и ^{242}Pu (4) в топливе

Итак, на рис. 3–5 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 состава актиноидов изотопами плутония.

В табл. 3 приведен материальный баланс [кг/т], реализованный в одиннадцати последовательных кампаниях, на тонну тяжелого металла в оксидном торий-уран-плутониевом топливе.

Изотопный материальный баланс в топливе [кг/т] после одиннадцати последовательных кампаний

	Изотопы				
	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				

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 с наработкой изотопа ^{239}Pu . 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. 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 обеспечивает высокие делительные свойства облученного топлива. 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 остальных актиноидных изотопов, суммарный вклад которых в деление составил 35,8 кг/т, что составляет ~6 % от полного числа разделившихся ядер. Вклад в деление непосредственно стартового изотопа ^{232}Th находится на уровне ~2 %. При дальнейшем рециклировании топлива в нем будут возрастать доли делений стартового изотопа ^{232}Th и нарабаты-

ваемого изотопа ^{233}U , продолжится понижение удельного содержания поглотителей нейтронов ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{238}U и других более тяжелых ядер, а делительные свойства топлива будут улучшаться.

В нарабатываемом уране наряду с ^{233}U на ^{232}Th нарабатывается и ^{232}U , радиоактивный ряд которого представляет серьезную [7] радиологическую опасность. Нароботка ^{232}U осуществляется, в основном, (*n, 2n*)-реакцией на ^{232}Th и последующим радиационным захватом нейтронов ^{231}Pa . В реакторах с тесной решеткой содержание ^{232}U в ^{233}U может достигать ~0,2 % и более. Это представляется серьезным технологическим барьером на пути хищений таким образом наработанного ^{233}U . Однако в заводских условиях эти трудности могут быть преодолены. В рециклируемом тории, как следствие распада ^{232}U , появляется изотоп ^{228}Th , что осложняет обращение с торием. Удельное содержание ($\leq 10^{-6}$) ^{228}Th в тории ^{232}Th , хотя и осложняет работы по его использованию при изготовлении топлива, но представляется преодолимым препятствием. После первой кампании высокообогащенный уран теряет свое оружейное качество из-за нарабатываемых четных изотопов урана, в том числе ^{232}U . Повышение доли четных изотопов плутония понижает привлекательность плутония для изготовления взрывных устройств. При наличии возможности совместного выделения урана, нептуния и плутония и использования этой смеси для изготовления свежего топлива, нарабатываемый ^{232}U будет ее основной технологической защитой.

4. Равновесный актиноидный состав торий-уран-плутониевого топливного цикла

Расширенное воспроизводство активных изотопов естественно может сопровождаться выходом на равновесный актиноидный состав при рециклировании топлива. По-видимому, наиболее представительным будет рассмотрение выхода в равновесие при стартовой загрузке реактора оксидным ^{233}U -Th топливом. В ста-

тье [8] это выполнено для ячейки с водотопливным отношением $V_{\text{В}}/V_{\text{Т}} = 0,9$ ($R_{\text{В}} = 0,70$ см), а в статьях [9, 10] – с водотопливным отношением $V_{\text{В}}/V_{\text{Т}} = 1,23$ ($R_{\text{В}} = 0,75$ см).

На рис. 6 приведено изменение удельного содержания [10] наиболее важных актиноидов при рециклировании оксидного ^{233}U -Th топлива в десяти последовательных кампаниях для ячейки с радиусом воды, равным $R_{\text{В}} = 0,75$ см (водотопливным отношением $V_{\text{В}}/V_{\text{Т}} = 1,23$).

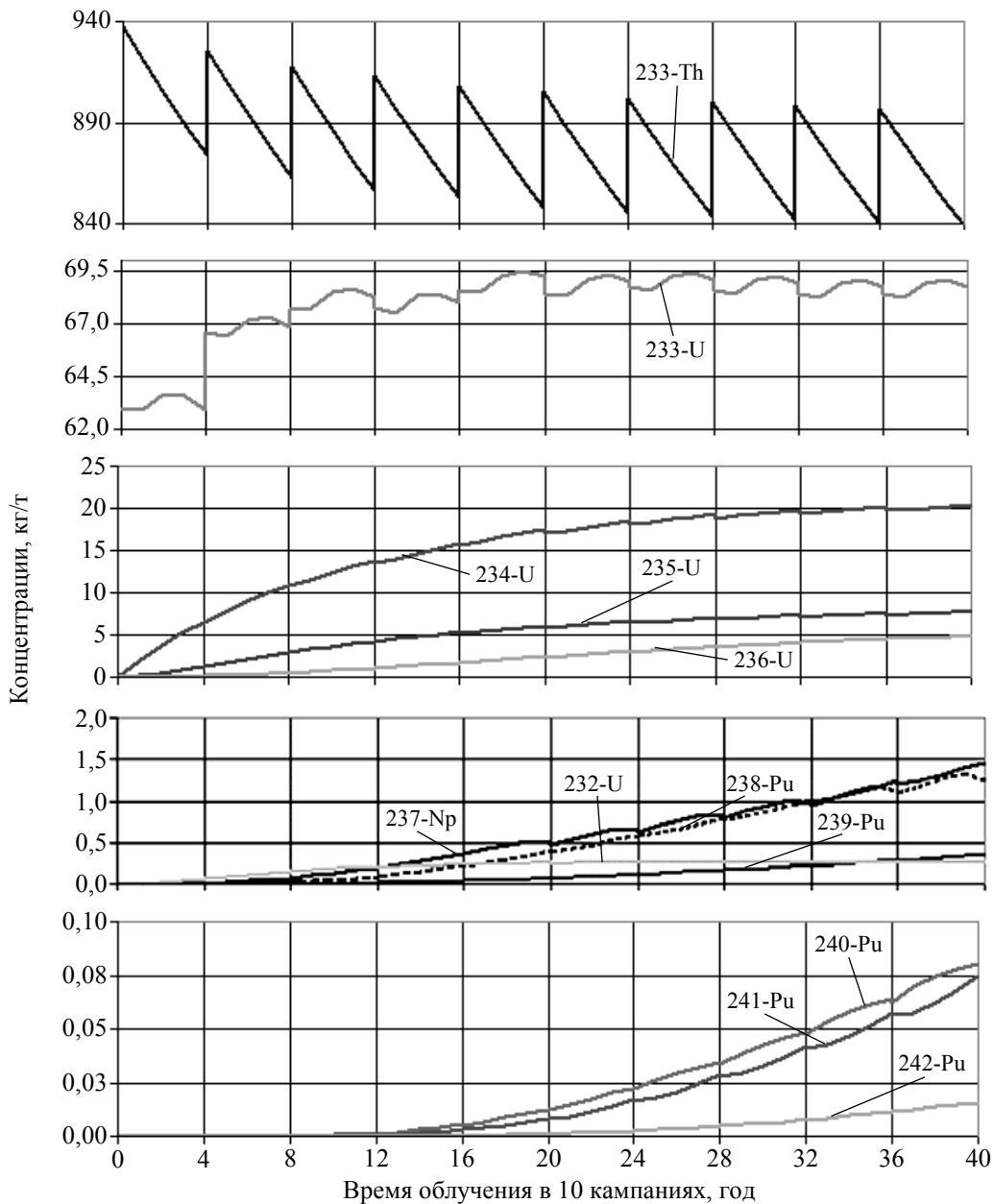


Рис. 6. Изотопное преобразование в десяти последовательных кампаниях

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 – 897 кг/т) подвергается торий. Его выгорание в качестве сырьевого материала обеспечивает наработку и воспроизводство основного делящегося изотопа ^{233}U и последующих изотопов и элементов 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}U , что на 9 кг/т меньше, чем для ячейки с радиусом воды, равным $R_B = 0,70$ см [8]. Как и в предыдущих [8] 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 [8]. 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 составу актиноидов 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 актиноидов (с учетом распада ^{233}Pa в ^{233}U) превышает на 1–2,5 % их необходимое количество для до-

стижения 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 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.

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;
- равенстве скорости реакций деления ядер и радиационного захвата нейтронов ими 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. 4 приведены равновесные значения (кг/т) долгоживущих актиноидов, 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 третьем столбце табл. 4. 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 второго и третьего столбцов.

Значения времен подхода к этим равновесным значениям получены следующим способом. Решалась система дифференциальных уравнений относительно скоростей изменения изотопного состава с использованием значений скоростей реакций, соответствующих началу десятой кампании, с начальным (при $t = 0$) условием содержания ^{233}U , принятого равным 68 кг на тонну тяжелого металла. Для каждого изотопа определялись значения вре-

мен, при которых его содержание на 5; 1; 0,1 % ниже равновесного.

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.

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 гораздо продолжительнее, чем время 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.

Таблица 4

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 и содержания ^{233}U , принятого равным 68 кг на тонну тяжелого металла

Изотопы	Содержание в равновесном состоянии (кг/т) при скоростях реакций, взятых		Время (годы) достижения равновесного состояния с отклонением		
	в начале 10-й кампании	в конце 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

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 процессом деления, 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 беспороговодействующих ^{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 полученных выше равновесных значений (второй и третий столбцы табл. 4) 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. 4 для обеспечения критического состояния достаточно 99,5 % актиноидов равновесного состава, а при использовании третьего столбца – 99 %. Это иллюстрирует возможность замыкания по всем актиноидам и в равновесном актиноидном составе.

В табл. 5 приведено изменение актиноидного 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 содержание тория составляет ~88 % в начале кампании и ~83 % в конце, эта разница соответствует накоплению продуктов деления и восстанавливается на старте следующей кампании. Удельное содержание 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, а изотопы плутония, нептуния и других элементов содержатся на уровне примесей и играют второстепенную роль.

Удельное содержание актиноидов в зависимости от времени облучения, полученных со скоростями реакций начала 10-й кампании

Изотопы	Концентрации изотопов (кг/т)				
	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

5. Трансмутационные возможности торий-уран-плутониевого топливного цикла

Еще раз отметим, что изменение удельного содержания каждого изотопа, подвергающегося облучению нейтронами, обусловливается тремя реакциями: делением ядра, радиационным захватом нейтрона ядром и реакцией ($n, 2n$) на ядре. Также имеют место β - и α -распады. Только процесс деления ядер переводит актиноиды в продукты деления и качественно трансмутирует тяжелые ядра, а две другие реакции сопровождаются изотопным преобразованием актиноидов. Распады сопровождаются преобразованием химических элементов. Следует отметить, что реакция деления ядер является основной целевой реакцией, определяющей энерговыделение и размножение нейтронов. В связи со сравнительно жестким спектром нейтронов, из-за использования

тяжелой воды в качестве теплоносителя, значимый вклад в число разделившихся ядер вносит деление пороговогоделящихся актиноидов.

Большое (~ 900 кг/т) удельное содержание тория и сравнительно жесткий спектр нейтронов обуславливают непосредственное деление пороговогоделящихся ядер тория на уровне $\sim 1,2$ кг/т в каждой кампании. Изотоп ^{233}U , 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. Пороговоделющийся изотоп ^{234}U , нарабатываемый на ^{233}U , 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 ^{233}U) является активный изотоп ^{235}U , нарабатываемый на ^{234}U . Его вклад составляет

~4 кг/т. Далее в последовательном радиационном захвате нейтронов заселяются три долгоживущих порогоделящихся ядра, ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , вклад которых в число разделяющихся ядер находится на уровне ~0,1; ~0,07 и ~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 ~0,55; ~0,01 и ~0,25 кг/т, соответственно. Конечно, подвергаются делению быстрыми нейтронами и другие сравнительно долгоживущие изотопы элементов от урана до кюрия и далее, но их вклад 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 ~2 %.

В замкнутом торий-уран-плутониевом топливном цикле актиноиды рециклируются, а их потери и попадание в радиоактивные отходы [10] определяются возможностями переработки облученного топлива, уровень которой характеризуется ~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.

Подчеркнем основные результаты.

1. В природе есть только один химический элемент – уран, – который содержит ~0,7 % в своем составе делящийся нейтронами любой энергии изотоп ^{235}U . Поэтому вынужденно в процессе реализации атомных проектов в США и СССР, а позднее и в ядерной энергетике, в качестве делящегося материала первого поколения был выбран уран. Современная ЯЭ до сих пор использует изотопы ^{235}U , ^{238}U , продолжая в течение полувека безуспешные попытки освоить изотоп ^{239}Pu . Делящиеся материалы первого поколения исчерпали свои возможности уже в открытом уран-плутониевом топливном цикле и не позволяют решить выявившиеся проблемы ЯЭ, в том числе и в замкнутом уран-плутониевом топливном цикле. Они могут быть кардинально решены путем использования изотопов ^{232}Th и ^{233}U в качестве основных реакторных материалов второго поколения и перевода ядерной энергетики на альтернативный замкнутый по всем актиноидам торий-уран-плутониевый топливный цикл.

2. При рециклировании топлива в торий-уран-плутониевом топливном цикле имеет место только одна актиноидная цепочка, начинающаяся с сырьевого изотопа ^{232}Th и естественным образом заканчивающаяся сверху из-за выгорания актиноидов в процессе их деления и снизу – из-за малой вероятности реакции $(n, 2n)$. В соответствии со спектром нейтронного потока в реакторах (смягченный спектр деления) и соотношением сечений (n, γ) и $(n, 2n)$ реакций вероятность преобразования вверх на ~3 порядка превалирует над преобразованием вниз. При этом в цепочке после тория заселяется изотоп ^{233}U , характеризующийся наибольшим сечением деления, наименьшим сечением радиационного захвата нейтронов и числом вторичных нейтронов на поглощенный нейтрон больше 2 при любой энергии первичного нейтрона. Это создает предпосылку наименьшей вероятности наработки на нем более тяжелых актиноидов. Эта предпосылка усиливается заселением и деле-

нием изотопа ^{235}U , нарабатываемого в последовательном радиационном захвате нейтронов изотопами ^{233}U и ^{234}U и естественного замыкания топливного цикла по урану. При этом практически на порядок понижается вероятность заселения изотопов ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu относительно их заселения в открытом уран-плутониевом топливном цикле и открывается возможность обеспечения заселения и деления изотопов ^{239}Pu , ^{241}Pu . Их деление дает относительно малый вклад в энерговыделение, но значительно понижает наработку изотопов америция и кюрия. В связи с этим усилия по реализации замены замкнутого уран-плутониевого топливного цикла на разработку замкнутого торий-уран-плутониевого топливного цикла путем замены сырьевого материала ^{238}U на ^{232}Th являются естественно бесплодными. По сути дела, при переходе от открытого топливного цикла к закрытому следует заменить не тип реактора (тепловой на быстрый), а делящиеся материалы: ^{238}U - ^{239}Pu на более подходящие для ЯЭ ^{232}Th - ^{233}U , то есть перейти на материалы второго поколения. При этом открывается возможность одновременного последовательного преобразования и выгорания всех актиноидов, начиная с тория, в одной цепочке.

3. 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 расширенным воспроизводством изотопа

^{233}U и сравнительно простой реализацией. Отсутствие обычно используемого запаса реактивности качественно понижает ядерную опасность реактора. Сравнительно большой период полураспада ^{233}Pa ($T_{1/2} = 27$ суток), 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 со значимым изменением спектра нейтронов является уникальной.

4. В связи с разницей в значениях критической массы шаров из ^{235}U (~47 кг) и из ^{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 и для деления следующих ядер, и для поддержания критического состояния реактора при использовании тория в качестве сырьевого изотопа и наработки изотопа ^{233}U . Как выше отмечено, деление нарабатываемых ядер ^{233}U нейтронами любой энергии сопровождается образованием более двух вторичных нейтронов на поглощенный нейтрон и, соответственно, может обеспечить расширенное воспроизводство ^{233}U . 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 ~2%. Дополнительным источником нейтронов является деление пороговых изотопов ^{232}Th , ^{236}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{240}Pu быстрыми нейтронами, а также деление короткоживущих беспороговоделющихся ядер, в конкуренции с их распадом и радиационным захватом ими нейтронов.

5. В нарабатываемом уране, наряду с ^{233}U на ^{232}Th , нарабатывается и ^{232}U , радиоактив-

ный ряд которого представляет серьезную радиологическую опасность. Нароботка ^{232}U осуществляется, в основном, ($n, 2n$)-реакцией на ^{232}Th и последующим радиационным захватом нейтронов ^{231}Pa . В реакторах с тесной решеткой содержание ^{232}U в ^{233}U может достигать $\sim 0,2\%$ и более. Это представляется серьезным технологическим барьером на пути хищений таким образом наработанного ^{233}U . Однако в заводских условиях эти трудности могут быть преодолены. В рециклируемом тории как следствие распада ^{232}U появляется изотоп ^{228}Th , что осложняет обращение с торием. Однако удельное содержание ($\leq 10^{-6}$) ^{228}Th в тории ^{232}Th , хотя и осложняет работы по его использованию при изготовлении топлива, но представляется преодолемым препятствием. После первой кампании высокообогащенный уран теряет свое оружейное качество из-за нарабатываемых четных изотопов урана, в том числе ^{232}U . Повышение доли четных изотопов плутония понижает привлекательность плутония для изготовления взрывных устройств. При наличии возможности совместного выделения урана, нептуния и плутония и использования этой смеси для изготовления свежего топлива нарабатываемый ^{232}U будет ее основной технологической защитой.

6. При водотопливном отношении $V_B/V_T = 1,23$ в равновесном режиме состав актиноидов торий-уран-плутониевого топлива стартовой загрузки характеризуется следующими удельными значениями на тонну тяжелого металла: ~ 889 кг тория, ~ 69 кг изотопа ^{233}U , $\sim 20,6$ кг изотопа ^{234}U , $\sim 7,6$ кг изотопа ^{235}U , $\sim 6,7$ кг изотопа ^{236}U , $\sim 2,08$ кг ^{237}Np , $\sim 3,3$ кг ^{238}Pu , $\sim 1,1$ кг ^{239}Pu , $\sim 0,42$ кг ^{240}Pu , $\sim 0,3$ кг ^{241}Pu , $\sim 0,12$ кг ^{242}Pu , $\sim 0,07$ кг ^{241}Am . Таким образом, основное содержание топлива определяют торий и изотопы урана, а нептуний и изотопы плутония содержатся на уровне примесей. 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, кюрия и продуктов распада актиноидов, что качественно упрощает обращение с высокоактивными отходами ядерной энергетики.

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. Беланова Т. С., Игнатюк А. В., Пашенко А. Б., Пляскин В. И. Радиационный захват нейтронов. Справочник. – М.: Энергоатомиздат, 1986.
3. Marshalkin V. E., Povyshev V. M. Breeding of ^{233}U in the Thorium-Uranium Fuel Cycle in VVER Reactor Using Heavy Water // Physics of Atomic Nuclei, 2015. Vol. 78, N 11, p. 1274–1286.
4. Marshalkin V. E., Povyshev V. M. Utilization of Non-Weapons-Grade Plutonium and Highly Uranium with Breeding of the ^{233}U Isotope in the VVER Reactors Using Thorium and Heavy Water // Physics of Atomic Nuclei, 2015. Vol. 78, N 11, p. 1287–1300.
5. Пат. 2541516 РФ, МПК G21C1/100. Способ эксплуатации ядерного реактора в ториевом топливном цикле с расширенным производством изотопа ^{233}U / В. Е. Маршалкин, В. М. Повышев // Изобретения. Полезные модели. 2015. № 5.

6. Маршалкин В. Е., Повышев В. М. Эффективное использование оружейного урана в ядерной энергетике // Атом, 2015, № 65, с. 35–39.

7. Матвеев Л. В., Центер Э. М. Уран-232 и его влияние на радиационную обстановку в ядерном топливном цикле. – М.: Энергоатомиздат, 1985.

8. Marshalkin V. E., Povyshev V. M. On the Equilibrium Isotopic Composition of the Thorium-Uranium-Plutonium Fuel Cycle // Physics of Atomic Nuclei, 2016. Vol. 79, N 8, p. 1290–1297.

9. Marshalkin V. E., Povyshev V. M. Natural Transmutation of Actinides via the Fission Reaction the Closed Thorium-Uranium-Plutonium Fuel, ISSN 1063-7788 // Physics of Atomic Nuclei, 2017. Vol. 80, N 8, p. 1433–1442.

10. Маршалкин В. Е., Повышев В. М. Делящиеся материалы второго поколения в ядерной энергетике // ВАНТ, сер. Физика ядерных реакторов. 2017. Вып. 4, с. 54–75.

Контактная информация –

Маршалкин Василий Ермолаевич,
ведущий научный сотрудник ИТМФ,
РФЯЦ-ВНИИЭФ,
e-mail: otd4@expd.vniief.ru

Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2019, вып. 4, с. 19–38.