

ЕНЕРГИЕН ФОРУМ 2019

МОДЕЛИРАНЕ НА ДВУЕТАПНО РЕЦИКЛИРАНЕ НА МИНОРНИ АКТИНИДИ В РЕАКТОРИ ОТ ТИПА ВВЕР-1000

Костадин Зашев, Калин Филипов

TWO STAGE MINOR ACTINIDES RECYCLING MODELING IN WWER-1000 REACTORS

Kostadin Zashev, Kalin Filipov

In this study was performed the analysis of possibilities for minor actinides transmutation in VVER-1000 thermal-nuclear power reactor. Two stage recycling model is evaluated to investigate the possibilities to reduce minor actinides included in spent nuclear fuels.

Въведение

Трансмутацията на минорните актиниди е считана като основно решение на едни от най-съществените недостатъци на ядрената енергетика [1] – генерирането на радиоактивни отпадъци със значими стойности на остатъчното топлоотделяне при необходимост от изолирането от биосферата за изключително големи срокове от време, обусловена от високата им радиоактивност. Въпреки, че количествата на минорните актиниди в отработените горива, отнесени към тяхната обща маса, са много малки, наличието им налага високи изисквания към съхранението на значителни маси високоактивни материали. В настоящето изследване е моделирана трансмутацията на минорни актиниди в реактори ВВЕР-1000 чрез специализирания софтуерен продукт SCALE и неговите модули [2, 3]. Анализирани са два сценария – рециклиране, извършено непосредствено след извеждането на горивото от активната зона на реактора без предварително отлежаване в басейните за отлежаване на касетите (вариант I) и рециклиране след отлежаване в басейните с цел намаляване на остатъчното топлоотделяне и активността, което улеснява операциите по безопасен транспорт и преработване. Причината за изследване на варианта с непосредственото преработване на отработено ядрено гориво е да се направи оценка на влиянието

на стандартно отлежаване на горивото с продължителност от пет години върху изменението на концентрацията на минорни актиниди в края на трансмутационния цикъл.

Симулационни модели на рециклиране на минорни актиниди в реактори от типа ВВЕР-1000

В зависимост от броя на циклите, съществуват две възможности за рециклиране на минорни актиниди: едноетапна и двуетапна схема на рециклиране. Едноетапната схема представлява еднократно рециклиране на минорните актиниди, добити от отработеното ядрено гориво в рамките на една горивна кампания. След приключване на горивната кампания, представляваща единствения цикъл на рециклиране, остатъчната актинидна маса се насочва за окончателно съхранение в подземни геоложки хранилища. Недостатък на стратегията за единично рециклиране е това, че тя води само до ограничено намаляване на минорните актиниди при непълно компенсиране на значителните производствени разходи.

Многоетапната схема на рециклиране представлява неколккратно рециклиране на минорни актиниди в свежо ядрено гориво с продължителност няколко горивни кампании. Многоетапното рециклиране има потенциала да достигне много ниски нива на радиотоксичност и топлоотделяне, но проведените изследвания показват, че разумният брой цикли, които могат да се имплементират в горивния цикъл, са не повече от два или три.

Реакторите с вода под налягане представляват основна част от работещите в света енергийни реактори. Тъй като трансмутация на минорни актиниди и дългоживеещи продукти на делене е принципно възможна и в реакторите на топлинни неутрони, в последните години се отдава голямо значение на изследване на изследването на трансмутационните характеристики на реакторите с вода под налягане, като най-разпространена и позната технология сред енергийните реактори [9].

Представеният модел разглежда двуетапна схема на рециклиране в реактор с вода под налягане – ВВЕР-1000. Първият етап на изследвания сценарий на рециклиране на минорните актиниди включва изгаряне на свежото ядрено гориво в активната зона на реактора и последващото преработване на отработеното гориво със сепариране на минорните актиниди, които се инкорпорират в ново свежо ядрено гориво, предназначено за нова горивна кампания. Изгарянето на новото ядрено гориво в нова горивна кампания със същия срок представлява първият етап от двуетапната

схема за рециклиране на минорни актиниди. На следващия етап процесите на преработване на отработеното ядрено гориво, сепарирането и инкорпорирането на генерираните минорни актиниди в ново свежо ядрено гориво се повтаря за втората горивна кампания, която представлява вторият цикъл на трансмутацията на минорни актиниди.

За сравнение на получените коефициенти на трансмутация на минорните актиниди са изследвани два варианта. Първият вариант представлява модел на рециклиране, при който отработеното ядрено гориво се извежда от реакторите и се преработва с цел сепариране на минорните актиниди веднага след края на горивната кампания без обичайното петгодишно отлежаване след извеждането от активната зона. При втория вариант се предвижда междинно съхраняване на отработеното гориво в басейните за отлежаване, като понижените стойности на остатъчното топлоотделяне и активността улесняват безопасния транспорт и преработване на отработеното гориво. Съпоставянето на двата варианта има за цел оценка на евентуалните допълнителни ползи при приемане на подход с отложено преработване след кратковременно съхранение от 5 години. За целите на анализа е създаден модел на четиригодишна горивна кампания на реактори ВВЕР-1000 с продължителност 1280 дни (4 години x 320 дни), гориво с обогатяване 4.4% и достигната дълбочина на изгаряне 53 248 MWd/tHM при специфична топлинна мощност – 41.6 MW/tHM. В Таблица 1 са показани получените резултати за количеството на минорните актиниди, генерирани в края на четиригодишна горивна кампания (вариант I) и количеството на минорните актиниди, генерирани след 5 годишно съхранение на отработеното гориво (във вариант II).

Минорните актиниди, получени и при двата варианта в по-значителни количества, се сепарират в завод за преработване на горивото и след това се зареждат в нова генерация свежо ядрено гориво за изпълнение на първия цикъл от двуетапната схема на трансмутация в същия тип ядрени реактори. В изследвания сценарий се приема равномерно разпределение на актинидите в горивната композиция на свежото ядрено гориво. Продължителността на първия цикъл на трансмутация е 1280 дни (4 години x 320 дни), обогатяването на горивото е 4.4%, а специфичната мощност е 41.6 MW/tHM. Съставът на свежото ядрено гориво при двата варианта (с и без отлежаване след извеждането му от активната зона) е показан в Таблица 2. Както може да се види от таблицата, след петгодишно съхранение на отработеното ядрено гориво количеството на минорните актиниди се увеличава поради нарастване на количеството на америций-241 с 650%. Ос-

таналите минорни актиниди намаляват своето количество, но това не е достатъчно, за да се компенсира общото количествено увеличение от 242 грама, дължащо се на изотопа америций-241. Причината за значителното нарастване на количеството на америций след извеждането на горивото от активната зона на реактора е прекратяването на деленето на плутоний-241, в резултат на което цялото му налично количество започва да се разпада до америций-241 (периодът на полуразпад на плутоний-241 е относително кратък – 14.3 години, на което се дължи и бързото нарастване на изотопа америций-241). Количеството на останалите минорни актиниди се изменя минимално като кюри-243 намалява с 11%, кюри-244 – със 17%, а нептуний-238, нептуний-239 и кюри-242 се разпадат почти напълно.

Таблица 1. Количество минорни актиниди, генерирано в края на четиригодишна горивна кампания, както и след петгодишно съхранение на ОЯГ на реактори ВВЕР-1000

В края на четиригодишна горивна кампания (Вариант I)					
Америций, g/tHM		Кюри, g/tHM		Нептуний, g/tHM	
Am-239	6.17E-09	Cm-241	1.92E-06	Np-235	2.87E-05
Am-240	2.68E-06	Cm-242	2.57E+01	Np-236m	1.41E-05
Am-241	5.85E+01	Cm-243	8.70E-01	Np-236	3.70E-04
Am-242m	1.25E+00	Cm-244	1.15E+02	Np-237	7.75E+02
Am-242	1.71E-01	Cm-245	5.62E+00	Np-238	2.86E+00
Am-243	2.75E+02	Cm-246	7.42E-01	Np-239	1.09E+02
Am-244m	0.00E+00	Cm-247	1.01E-02	Np-240m	7.71E-15
Am-244	2.76E-01	Cm-248	8.04E-04	Np-240m	4.15E-03
Am-245	6.68E-07	Cm-249	1.14E-08		
Am-246	8.63E-11	Cm-250	3.93E-10		
		Cm-251	1.47E-15		
След петгодишно съхранение на ОЯГ в БОК (Вариант II)					
Америций, g/tHM		Кюри, g/tHM		Нептуний, g/tHM	
Am-239	0.00E+00	Cm-241	3.33E-23	Np-235	1.18E-06
Am-240	0.00E+00	Cm-242	1.41E-02	Np-236m	0.00E+00
Am-241	4.39E+02	Cm-243	7.70E-01	Np-236	3.70E-04
Am-242m	1.22E+00	Cm-244	9.52E+01	Np-237	7.93E+02
Am-242	1.58E-05	Cm-245	5.62E+00	Np-238	2.23E-07
Am-243	2.76E+02	Cm-246	7.42E-01	Np-239	2.37E-04
Am-244m	0.00E+00	Cm-247	1.01E-02	Np-240	7.93E-17
Am-244	0.00E+00	Cm-248	8.05E-04	Np-240m	7.71E-15
Am-245	7.47E-16	Cm-249	0.00E+00	Np-241	0.00E+00
Am-246	4.13E-19	Cm-250	3.94E-10		
		Cm-251	0.00E+00		
*червено – минорни актиниди, генерирани в по-значителни количества					

В Таблица 3 е показан минорно-актинидният състав на свежото ядрено гориво преди втория трансмутационен цикъл. Минорните актиниди, генерирани в края на първия четиригодишен трансмутационен цикъл (вариант I), както и след петгодишното съхранение на отработеното ядрено гориво (вариант II), са сепарирани и интегрирани в свежо ядрено гориво за повторно рециклиране, представляващо втория цикъл от двуетапна схема на трансмутация. Продължителността на втория трансмутационен цикъл също е 1280 дни (4 години x 320 дни) при достигнатата дълбочина на изгаряне 53 248 MWd/tHM, специфична мощност 41.60 MW/tHM и стойност на неутронния поток $5.16 \cdot 10^{13}$ n/cm².s за първия вариант и $5.14 \cdot 10^{13}$ n/cm².s за втория вариант. След 5 годишно съхранение на отработеното гориво количеството на минорните актиниди се увеличава отново с около 240 грама, основно поради нарастване на количеството на изотопа америций-241 с 644%.

Таблица 2. Състав на свежото ядрено гориво на реактори ВВЕР-1000, произведено за първия етап от трансмутация на минорни актиниди в същия тип реактори

Състав на СЯГ (вариант I)		Състав на СЯГ (вариант II)		Разлика
Елемент	Концентрация, g/tHM	Елемент	Концентрация, g/tHM	
U-234	391.758	U-234	390.71	-
U-235	44017.7	U-235	43900	-
U-236	202.482	U-236	201.94	-
U-238	955388	U-238	955507.4	-
Am-241	58.5	Am-241	439	650%
Am-242m	1.25	Am-242m	1.22	-2%
Am-243	275	Am-243	276	0%
Np-237	775	Np-237	793	2%
Np-238	2.86	Np-238	-	-
Np-239	109	Np-239	-	-
Cm-242	25.7	Cm-242	-	-
Cm-243	0.87	Cm-243	0.77	-11%
Cm-244	115	Cm-244	95.22	-17%
Cm-245	5.62	Cm-245	5.62	0%
Общо МА, g	1368.8		1610.83	242.03

Вариант I: В СЯГ са инкорпорирани генерираните минорни актиниди, сепарирани при преработването на ОЯГ (от предходната горивна кампания) веднага след извеждането му от реактора.

Вариант II: В СЯГ са инкорпорирани генерираните минорни актиниди, сепарирани при преработването на ОЯГ (от предходната горивна кампания) след 5 годишното му съхранение в БОК.

Таблица 3. Състав на свежото ядрено гориво на реактори ВВЕР-1000, произведено за втория етап от трансмутация на минорни актиниди в същия тип реактори

Състав на СЯГ (вариант I)		Състав на СЯГ (вариант II)		
Елемент	Концентрация, g/tHM	Елемент	Концентрация, g/tHM	Разлика
U-234	391.758	U-234	390.71	-
U-235	44017.7	U-235	43900	-
U-236	202.48	U-236	201.94	-
U-238	955388	U-238	955507.4	-
Am-241	60.9	Am-241	453	644%
Am-242m	1.31	Am-242m	1.49	14%
Am-243	321	Am-243	338	5%
Np-237	986	Np-237	1010	2%
Np-238	3.59	Np-238	-	-
Np-239	107	Np-239	-	-
Cm-242	27.3	Cm-242	-	-
Cm-243	1.09	Cm-243	1.87	72%
Cm-244	328	Cm-244	277	-16%
Cm-245	24	Cm-245	24.2	1%
Общо МА, g	1860.2		2105.6	245.4

Вариант I: В СЯГ са инкорпорирани генерираните минорни актиниди, сепарирани при преработването на ОЯГ (от предходната горивна кампания) веднага след извеждането му от реактора. Вариант II: В СЯГ са инкорпорирани генерираните минорни актиниди, сепарирани при преработването на ОЯГ (от предходната горивна кампания) след 5 годишното му съхранение в БОК.

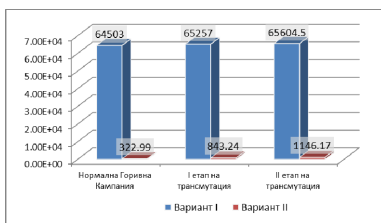
Таблица 4. Количество минорни актиниди, генерирано в края на четиригодишно на горивна кампания и след петгодишно съхранение на ОЯГ на реактори ВВЕР-1000

УРАН								
изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год
U230	7.56E-12	0.00E+00	*U234	1.80E+02	1.94E+02	*U238	9.18E+05	9.18E+05
U231	4.28E-10	0.00E+00	*U235	6.92E+03	6.92E+03	U239	1.35E-07	0.00E+00
U232	7.66E-04	1.71E-03	*U236	6.15E+03	6.15E+03	U240	9.04E-13	9.04E-13
U233	2.66E-03	3.98E-03	*U237	1.50E+01	4.24E-05			
ПЛУТОНИЙ								
изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год
Pu236	1.46E-03	4.44E-04	*Pu240	2.90E+03	2.92E+03	Pu244	4.58E-02	4.58E-02
Pu237	8.63E-04	5.85E-16	*Pu241	1.78E+03	1.40E+03	Pu245	1.92E-06	0.00E+00
*Pu238	3.55E+02	3.68E+02	*Pu242	9.95E+02	9.95E+02	Pu246	3.38E-08	1.65E-16
*Pu239	5.88E+03	5.98E+03	Pu243	9.49E-02	3.52E-13			

МИНОРНИ АКТИНИДИ								
Америций			Кюрий			Нептуний		
изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год
Am-239	3.70E-09	0.00E+00	Cm-241	1.91E-06	3.33E-23	Np-235	2.87E-05	1.18E-06
Am-240	2.38E-06	0.00E+00	*Cm-242	2.57E+01	1.41E-02	Np-236	3.70E-04	3.70E-04
*Am-241	5.86E+01	4.39E+02	*Cm-243	8.70E-01	7.70E-01	Np-236m	1.08E-05	0.00E+00
*Am-242	1.17E-01	1.58E-05	*Cm-244	1.15E+02	9.52E+01	*Np-237	7.76E+02	7.93E+02
*Am-242m	1.25E+00	1.22E+00	*Cm-245	5.63E+00	5.62E+00	*Np-238	2.54E+00	2.23E-07
*Am-243	2.76E+02	2.76E+02	*Cm-246	7.42E-01	7.42E-01	*Np-239	9.85E+01	2.37E-04
*Am-244	1.51E-01	0.00E+00	Cm-247	1.01E-02	1.01E-02	Np-240	1.15E-05	7.93E-17
Am-245	4.57E-07	7.47E-16	Cm-248	8.05E-04	8.05E-04	Np-240m	7.75E-15	7.71E-15
Am-246	8.46E-11	4.13E-19	Cm-249	3.87E-11	0.00E+00	Np-241	0.00E+00	0.00E+00
			Cm-250	3.94E-10	3.94E-10			
			Cm-251	5.53E-25	0.00E+00			
ПРОДУКТИ НА ДЕЛЕНЕ								
ЦЕРИЙ			ЦЕЗИЙ			ЙОД		
изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год
Ce-137	9.61E-12	0.00E+00	Cs-131	4.88E-09	0.00E+00	I-125	3.21E-10	2.34E-19
Ce-138	3.57E-03	3.57E-03	Cs-132	4.08E-04	0.00E+00	I-126	1.89E-05	0.00E+00
Ce-139	3.81E-05	3.85E-09	*Cs-133	1.73E+03	1.74E+03	*I-127	7.19E+01	7.43E+01
*Ce-140	2.02E+03	2.05E+03	*Cs-134	2.21E+02	4.12E+01	I-128	1.54E-10	0.00E+00
*Ce-141	6.27E+01	7.65E-16	Cs-134m	1.04E-03	0.00E+00	*I-129	2.44E+02	2.46E+02
*Ce-142	1.79E+03	1.79E+03	*Cs-135	5.93E+02	5.94E+02	I-130	1.08E-02	0.00E+00
*Ce-143	2.05E+00	0.00E+00	Cs-135m	3.42E-06	0.00E+00	I-130m	2.93E-22	0.00E+00
*Ce-144	4.33E+02	5.09E+00	*Cs-136	1.15E+00	0.00E+00	*I-131	8.97E+00	0.00E+00
Ce-146	1.86E-14	0.00E+00	*Cs-137	1.95E+03	1.73E+03	I-132	1.47E-01	0.00E+00
			Cs-138	1.02E-06	0.00E+00	*I-133	1.54E+00	0.00E+00
			Cs-139	1.16E-19	0.00E+00	I-133m	1.59E-08	0.00E+00
						I-134	3.22E-04	0.00E+00
						I-135	2.45E-01	0.00E+00
МОЛИБДЕН			НЕОДИМ			ТЕХНЕЦИЙ		
изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год
Mo-101	2.22E-13	0.00E+00	Nd-141	3.90E-10	0.00E+00	Tc-101	4.08E-12	0.00E+00
Mo-102	1.14E-16	0.00E+00	*Nd-142	4.45E+01	4.45E+01	Tc-102	8.95E-19	0.00E+00
Mo-92	1.27E-13	1.27E-13	*Nd-143	1.12E+03	1.14E+03	Tc-104	4.02E-11	0.00E+00
Mo-93	8.98E-08	8.97E-08	*Nd-144	1.81E+03	2.23E+03	Tc-105	9.65E-24	0.00E+00
Mo-93m	8.28E-14	0.00E+00	*Nd-145	1.03E+03	1.03E+03	Tc-97	6.66E-07	7.08E-07
Mo-94	2.73E-02	2.73E-02	*Nd-146	1.17E+03	1.17E+03	Tc-97m	4.21E-08	3.55E-14
*Mo-95	1.06E+03	1.18E+03	*Nd-147	8.78E+00	0.00E+00	Tc-98	1.37E-02	1.37E-02
*Mo-96	8.57E+01	8.57E+01	*Nd-148	5.89E+02	5.89E+02	*Tc-99	1.21E+03	1.21E+03
*Mo-97	1.29E+03	1.29E+03	Nd-149	1.09E-03	0.00E+00	Tc-99m	3.35E-01	0.00E+00
*Mo-98	1.32E+03	1.32E+03	*Nd-150	2.89E+02	2.89E+02			
*Mo-99	3.93E+00	0.00E+00	Nd-151	4.49E-16	0.00E+00			
			Nd-152	1.99E-17	0.00E+00			
ЦИРКОНИЙ			ПАЛАДИЙ			РУТЕНИЙ		
изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год	изотоп	в края	след 5 год
Zr-89	2.70E-07	0.00E+00	Pd-102	3.93E-04	6.21E-04	*Ru-100	2.26E+02	2.26E+02
*Zr-90	4.63E+01	1.42E+02	Pd-103	8.97E-05	0.00E+00	*Ru-101	1.25E+03	1.25E+03
*Zr-91	8.85E+02	9.32E+02	*Pd-104	4.54E+02	4.54E+02	*Ru-102	1.31E+03	1.31E+03

*Zr-92	1.02E+03	1.02E+03	*Pd-105	6.46E+02	6.48E+02	*Ru-103	6.02E+01	6.00E-13
*Zr-93	1.11E+03	1.11E+03	*Pd-106	3.99E+02	6.29E+02	*Ru-104	9.21E+02	9.21E+02
*Zr-94	1.22E+03	1.22E+03	*Pd-107	3.74E+02	3.74E+02	Ru-105	5.76E-02	0.00E+00
*Zr-95	8.01E+01	2.08E-07	*Pd-108	2.46E+02	2.46E+02	*Ru-106	2.38E+02	7.88E+00
*Zr-96	1.28E+03	1.28E+03	*Pd-109	1.56E-01	0.00E+00	Ru-96	3.17E-20	3.17E-20
*Zr-97	6.71E-01	0.00E+00	*Pd-110	8.14E+01	8.14E+01	Ru-97	5.37E-15	0.00E+00
			Pd-111	1.03E-06	0.00E+00	Ru-98	1.40E-04	1.40E-04
			Pd-111m	1.85E-05	0.00E+00	Ru-99	5.07E-02	7.07E-02
			Pd-112	2.06E-02	0.00E+00			

* – минорни актиниди и продукти на делене, генерирани в по-значителни количества и заредени в нова генерация СЯГ



Фигура 1. Остатъчно енергоотделяне в отработените ядрени горива, W



Фигура 2. Радиоактивност на отработените ядрени горива, Bq

Заключение

При сравнение на моделите на едноетапно и двуетапно рециклиране по отношение на генерираното количество минорни актиниди преди рециклирането се наблюдава предимство при преработването на отработеното ядрено гориво непосредствено след извеждането му от активната зона без отлежаване в басейните за отлежаване на касетите. При сравнение на моделите на едноетапно и двуетапно рециклиране по отношение на генерирано количество минорни актиниди след рециклиране се наблюдава предимство при моделите с двуетапна трансмутация.

Използвана литература:

[1] *Status of Minor Actinide Fuel Development*. International Atomic Energy Agency, 2009.

[2] *Hermann, O., W., & Westfall, R., M. ORIGEN-S: SCALE system module to calculate fuel depletion, actinide transmutation, fission product buildup and decay, and associated radiation source terms*. Oak Ridge

National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, USA, Feb 1989.

[3] *Gauld, I., C., Radulescu, G., Ilas, G., & Wiarda, D. Isotopic Depletion and Decay Methods and Analysis Capabilities in SCALE. Nuclear technology, 2011.*

[4] *Spent Fuel from Nuclear Power Reactors. An Overview of a New Study by the International Panel on Fissile Materials, 2011.*

[5] *Kloosterman, J., L., & Li, J., M. Transmutation of Americium in Fission Reactors. Netherlands Energy Research Foundation.*

[6] *Hyland, B. et al. Transmutation of americium in light and heavy water reactors. Proceedings of Global 2009, Paris, 2009.*

[7] *Production of Minor Actinides in Thermal Nuclear Reactors and Nonproliferation. Analytical report of U.S. Department of Energy.*

[8] *Spent Fuel from Nuclear Power Reactors. An Overview of a New Study by the International Panel on Fissile Materials, 2011.*

Автори:

Д-р Костадин Иванов Зашев, ТУ-София, катедра ТЕЯЕ, k_zashev@mail.bg

Доц. д-р Калин Боянов Филипов, ТУ-София, катедра ТЕЯЕ, filipov@tu-sofia.bg