

ЯДРЕНИ ГОРИВА ЗА РЕЦИКЛИРАНЕ НА ПЛУТОНИЙ В РЕАКТОРИ С ВОДА ПОД НАЛЯГАНЕ

Златина Манчева, Ивайло Найденов

NUCLEAR FUELS FOR PLUTONIUM RECYCLING IN PRESSURISED WATER REACTORS

Zlatina Mancheva, Ivaylo Naydenov

The global plutonium stock amounts to 530 tHM of which 310 tHM are civilian material. Plutonium management is an important issue since all uranium fuelled reactors produce plutonium. One option is to recycle the plutonium in the form of mixed oxide fuel and burn it in pressurized water reactors. That would allow utilizing plutonium's energy content using well developed technologies. The current paper gives an overview of the main contemporary concepts for nuclear fuel that would improve plutonium recycling in PWR.

Въведение

При експлоатацията на ураново гориво, в резултат на захващането на неутрони от ядрата на ^{238}U , се получава нов делящ се изотоп – ^{239}Pu . Чрез последователност от (n; γ) реакции се получават и други по-тежки плутониеви изотопи [1]. Като следствие, в отработеното гориво, наред с остатъчния уран и продуктите на делене, е наличен плутоний. Годишното количество генериран плутоний е между 136 и 366 kg на реактор, от които между 47 и 69% са ^{239}Pu , в зависимост от типа реактор [2].

Един от начините за утилизация на тези количества плутоний е включването им в смесени уран-плутониеви горива (MOX). Първоначалното развитие на MOX горивата е продиктувано именно от необходимостта за имобилизиране на излишния плутоний от граждански и военен произход [3]. MOX горивата за леководни реактори съдържат от 4 wt.% до 10 wt.% плутоний [4]. Първата опитна експлоатация на MOX в леководни реактори започва през шестдесетте години на XX век, а през седемдесетте години се преминава към промишлената им експлоатация, първоначално в кипящи реактори, а впоследствие и в реактори с вода под налягане в електроцентрали във Франция и ФРГ [5].

Разликите в неутронно-физичните свойства на урана и плутония водят до няколко ефекта, проявяващи се при експлоатацията на MOX в

леководни реактори, по-важните от които са втвърдяване на неутронния спектър, локални пикове на енергоотделянето и намаляване на средното време на живот на топлинните неутрони. По-подробно тези ефекти, както и експлоатационните особености на MOX горивата в реактори с вода под налягане са разгледани в [6].

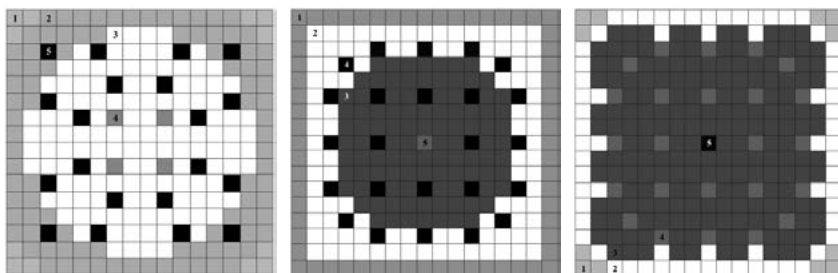
Типове горивни касети за рециклиране на плутоний

Съществуват два основни типа конфигурации на горивни касети с MOX [4,7]:

- Конфигурация „плутониев остров“, при която централните топлоотделящи елементи са заредени с MOX, а периферните – със стандартно ураново гориво. Такъв тип профилиране е по-подходящ за кипящи реактори и реактори, при които между касетите има големи хлабини, запълнени с вода;
- Изцяло плутониева касета – подходяща за реактори с вода под налягане като ефектите от неравномерността на неутронния поток и пиковете на енергоотделянето се компенсират чрез подходящо профилиране на концентрацията на плутония в касетата.

На Фигура 1 са представени профилирани стандартни горивни касети за реактори с вода под налягане, експлоатирани в Германия и Франция през деведесетте години на XX век.

Обозначенията са, както следва: за касета 16×16: 1 – 12 TOE с масов дял на делящи изотопи на плутония в тежкия метал 2,0 wt.%; 2 – 92 TOE с масов дял на делящи изотопи на плутония в тежкия метал 2,8 wt.%;



Фигура 1. Стандартна MOX касета 16×16, използвана в немски реактори с мощност 1300 MW в началото на 90-те (ляво); стандартна MOX касета 17×17 за френски реактор PWR 900 (в средата) и касета PWR AFA 2G (дясно) [4,7]

3 – 128 ТОЕ с масов дял на делящи изотопи на плутония в тежкия метал 4,1 wt.%; 4 – клетка, запълнена само с топлоносител; 5 – направляващи тръби за органите на СУЗ; за касета 17×17: 1 – зона 1: 64 ТОЕ с дял на плутоний 3,35%; 2 – зона 2: 100 ТОЕ с дял на плутоний 5,10%; 3 – зона 3: 100 ТОЕ с дял на плутоний 6,75%; 4 – направляващи тръби за органите на СУЗ; 5 – централна инструментална тръба; за касета PWR AFA 2G: 1 – 12 ТОЕ с общ масов дял на плутония 2,70%; 2 – 68 ТОЕ с общ масов дял на плутония 3,86%; 3 – 184 ТОЕ с общ масов дял на плутония 5,98%; 4 – направляващи тръби за органите на СУЗ; 5 – централна инструментална тръба. Еволюцията на френските горивни касети включва промяна на профилирането по масов дял на плутония и постепенното му повишаване.

Модификацията, показана в средата на Фигура 1 се експлоатира до 1995 г., когато е заменена от касета AFA 2G. Тя на свой ред е заменена през 2001-2002 г. с MOX касета от трето поколение AFA 3G. Разположението на плутониевите зони е същото като при AFA 2G, но масовият дял на плутония е повишен – 3,65% в зона 1, 6,5% в зона 2 и 9,8% в зона 3 [8].

Съвременни концепции за смесени горива

В настоящата статия са разгледани няколко съвременни концепции за конструктивно оформление на смесени горива за реактори с вода под налягане, които могат да се използват като заместител на конвенционалните UO_2 и MOX горива. Въпреки че повечето от тези нови проекти са обект на детайлни теоретични изследвания, понастоящем нито един от тях не е внедрен в промишлена експлоатация. В контекста на средносрочното управление на плутония се разграничават две възможности [4]:

- Оптимизирано използване и съхранение;
- Унищожаване.

И двата аспекта могат да се реализират при прилагането на някои съвременни концепции за уран-плутониеви горива за реактори с вода под налягане.

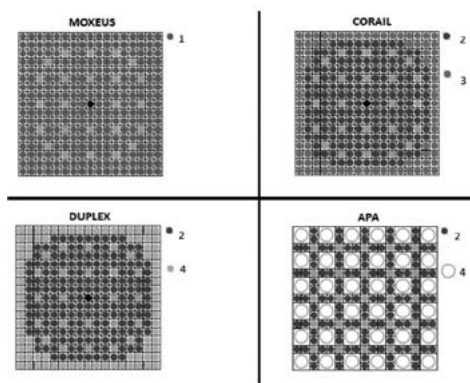
- Смесено гориво с обогатен уран (MIX) [4,9]

Концепцията MOXEUS (MOX Enriched Uranium Support), известна още като MOX-EU (MOX-Uranium Enrichi) или MIX, е смесено уран-плутониево гориво, подходящо за многократно рециклиране на плутоний в реактори с вода под налягане. В този случай стандартна конструкция на MOX касета се зарежда със смесено уран-плутониево гориво, което се изработва от обогатен уран. MIX е смесено уран-плутониево оксидно гориво за PWR, в което PuO_2 има само второстепенна роля като източник на делящи се из-

отопи, а по-голямата част от деленията се осъществява в UO_2 . Тъй като PuO_2 играе второстепенна роля, горивните касети, показани на Фигура 2, и неутронно-физичните характеристики на горивото са сходни с тези на UO_2 . Това контрастира с конвенционалния MOX, в който се използва обеднен или природен UO_2 , а плутоният във вид на PuO_2 представлява основният дялщ се материал.

Концепцията MIX е разработена като потенциална техническа възможност за постигане на затворен по отношение на плутония горивен цикъл с многократно рециклиране в реактори с вода под налягане като обогатеният уран се използва за компенсация на загубата на реактивност, дължаща се на деградацията с облъчването изотопен състав на плутония. Касетите, използвани за оформяне на MIX, са конструктивно идентични с касетите UO_2 , което запазва механичните и термохидравличните характеристики на активната зона.

Първоначалният вариант на концепцията предвижда дял на плутония в смесеното гориво от 1,3 wt. % и обогатяване на урана до 3,9 wt. %, което е еквивалентно на ураново гориво с обогатяване 4,7%. Вариациите в изотопния състав на плутония трябва да се компенсират с корекции на обогатяването на UO_2 . Плутоният може да достигне до 12 wt. % при обогатяване на урана от 2,5 wt. % в зависимост от прилаганата стратегия за управление на плутониевия инвентар. Освен това съдържанието на плутоний трябва да е ограничено, за да се избегнат прекалено високи



Фигура 2. Конфигурация на горивните касети за концепции MIX, CORAIL, APA и DUPLEX. 1 – топлоотделящи елементи MIX; 2 – топлоотделящи елементи UO_2 ; 3 – топлоотделящи елементи MOX; 4 – топлоотделящи елементи $(Pu,Ce)O_2$ [9]

стойности на коефициентите по реактивност. Тези относителни пропорции на горивото биха позволили всички повторни преработки на плутония да се прилагат безпроблемно.

Тъй като ядрено-физичните характеристики на MIX се доминират от урана, горивото има сравнително малка чувствителност към изотопното качество на плутония. При това, намаляването на плутониевия инвентар е приблизително 60 kg/TWh. Тази концепция може да се приложи и за рециклиране на америций. Горивото, съдържащо америций, се поставя в отделни топлоотделящи елементи, наречени „цели“, заедно с около 50% MIX. Обогащаването на урана в това MIX гориво е увеличено, за да се компенсира поглъщането на неутрони от америциевите цели.

Производството на MIX ще трябва да отговаря на същите стандарти на безопасност, както производството на MOX. Тези стандарти, обаче, ще трябва да се прилагат за неколkokратно по-големи масови потоци, което би довело до завишаване на производствените разходи. Към това следва да се добавят и разходите, възникващи за уранов концентрат, конверсия и обогащаване, които отсъстват при производството на MOX. Освен това мощността на инсталацията за производство на MIX би била два до три пъти по-голяма, отколкото в случая на производство на MOX.

В сравнение с еднократно рециклиране на конвенционалните MOX, многократното рециклиране на MIX значително намалява радиотоксичността на потока високоактивни отпадъци (BAO), тъй като само малка част от плутония (загуби при преработка) попада в отпадния поток при радиохимичната преработка. При всяко рециклиране масата на плутония намалява, което води и до постепенно намаляване на радиотоксичността му. В случай, че рециклирането на плутония продължи в реактори на бързи неутрони радиотоксичността би намаляла още. MIX осигурява намаляване на радиотоксичността в сравнение с традиционните MOX горива. Същевременно, обемите на средно и ниско активните отпадъци, генерирани при преработката, са сравними с количествата, получавани при преработка на MOX. В Таблица 8 са представени масовите дялове на ^{235}U и плутония в свежото гориво MIX.

Таблица 1. Минимални и максимални масови дялове (в wt%) на ^{235}U и плутония в свежото гориво MIX

	^{235}U	w_{Pu}	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
MIN	0,25	0,00	0,50	10,00	10,00	0,00	1,50
MAX	5,00	16,00	8,00	80,00	40,00	25,00	35,00

- Усъвършенствана плутониева касета (APA и APA DUPLEX) [4,9]

Усъвършенстваната плутониева касета АРА (Advanced Plutonium Assembly) се явява алтернатива на МОР за изгарянето на плутония в реактори с вода под налягане. АРА представлява горивна касета, включваща едновременно ТОЕ с UO_2 и ТОЕ, съдържащи плутоний, включен в цериева матрица. Плутониевите ТОЕ са оптимизирани, а оформлението на касетата е направено така, че да се избегнат ефектите на екраниране, наблюдавани при частично зареждане на активната зона с уран-плутониево гориво.

В касетата АРА са подредени хетерогенно (в отделни топлоотделящи елементи) PuO_2 , поставен в инертна цериева матрица $(Pu,Ce)O_2$ и UO_2 . Общ вид на касетата е представен на Фигура 2. Тя е съставена от 36 топлоотделящи елемента с голям диаметър, в които е поставена плутоний-цериевата матрица, и 120 топлоотделящи елемента с UO_2 . Теплоотделящите елементи с UO_2 са напълно идентични с тези, използвани в стандартизираните касети за реактори с вода под налягане. От друга страна, плутоний-съдържащите ТОЕ съдържат пръстеновидни горивни таблетки от плутоний-цериев диоксид $(Pu,Ce)O_2$. Тази горивна матрица е с голям външен диаметър, като клетката ѝ заема обем, еквивалентен на обема на четири клетки, съдържащи топлоотделящи елементи с ураново гориво.

През централния пръстен на горивната таблетка преминава топлоносител като това увеличава местното съотношение забавител-гориво и го поддържа близо до оптималната стойност за плутония. Отсъствието на уран в съдържащите плутоний ТОЕ, намалява възпроизводството на ^{239}Pu и способства за увеличаване на потреблението на плутоний. То възлиза на около 75 kg/TWh(e).

Освен това изотопният състав на отработения плутоний е много деградиран (много ниско съдържание на ^{239}Pu), което е положителен ефект от гледна точка на неразпространението на ядрен материал.

Проектът АРА има няколко недостатъка. Геометрията на плутониевата горивна композиция е различна от досега използваните. Необходимо е и да се докажат механичните и якостните характеристики на конструкцията на касетата. Освен това, разположението на регулиращите органи е несъвместимо с разположението на вътрешнокорпусните устройства на експлоатираните понастоящем реактори с вода под налягане. Иновативната геометрия и материалът на плутоний-съдържащата матрица също налагат провеждането на допълнителни изпитания. Същото важи и за установяване на поведението на горивото в аварийни ситуации. Всички тези недостатъци довеждат до изоставянето на касетата АРА на етапа на концептуална разработка.

Концепцията за изгаряне на плутоний с помощта на матрица от

$(Pu,Ce)O_2$ е доразвита във вид на горивна касета, наречена APA-DUPLEX. Касетата DUPLEX се състои от хетерогенно подреждане на PuO_2 в интертна матрица, заобиколена от топлоотделящи елементи, съдържащи UO_2 . Големите пръстеновидни $(Pu,Ce)O_2$ ТОЕ са заменени с по-малки плътни таблетки от $(Pu,Ce)O_2$. В този случай касетата е конструктивно идентична с касетите, използващи ураново гориво. Това запазва хидравличните характеристики на активната зона и отпада необходимостта от реконструкция на СУЗ, тъй като разположението на регулиращите органи остава непроменено. В случая на касета DUPLEX те преминават през зоната, съдържаща ураново гориво.

При всички сценарии на APA – единично или многократно рециркулиране, ползите, свързани с намаляването на активността, са малки. Обемът на ниско и средно активните отпадъци, които биха се генерирали при преработка на отработено гориво, са същите като при стандартния MOX.

- Концепция CORAIL [4,9]

Концепцията CORAIL (Combustible recyclage à filot – рециклиране на горивото в остров (фр.)) представлява стандартна касета PWR 17×17, заредена хетерогенно с топлоотделящи елементи, съдържащи MOX и уранов диоксид. Фигура 2 показва схемата на този вид гориво, състоящо се от 84 топлоотделящи елемента със смесено уран-плутониево гориво, разположени по периферията (един ред, с изключение на ъгловите участъци), а останалата част от топлоотделящите елементи съдържат UO_2 . Направляващите канали на органите на системата за управление и защита се намират изцяло в частта, заета от ураново гориво, което позволява да се запази физическото тегло на регулиращите органи. Това позволява цялостно зареждане на активната зона без реконструкция на системата за управление и защита.

Касетата CORAIL е конструктивно идентична на APA-DUPLEX, с изключение на това, че топлоотделящите елементи, съдържащи $(Pu,Ce)O_2$, са заменени с топлоотделящи елементи, съдържащи MOX. Теплоотделящите елементи с UO_2 и MOX имат еднакъв външен диаметър, а стъпката е идентична с тази на стандартните касети 17×17 за PWR. Така се осигурява съвместимост на касетите CORAIL и APA-DUPLEX със съществуващите реактори с вода под налягане.

При CORAIL урановото гориво е с обогатяване от 5,2 wt.%, а съдържанието на плутоний в MOX-горивото е 11,3 wt.%. В този случай, екраният ефект между урановото и уран-плутониевото гориво възниква в самата касета, а не между касетите в активната зона. Така той може да се управлява чрез профилирането на топлоотделящите елементи в касетата. При CORAIL MOX горивото е с еднакво съдържание на плутоний, за

разлика от стандартизираната касета MOX 17×17, която е профилирана по концентрациите на плутоний. Така значително се улеснява производството.

По отношение на плутониевия баланс, изгарянето в MOX-зоната е малко по-високо от възпроизводството в урановата зона. CORAIL е малко по-толерантно гориво в сравнение с традиционния MOX по отношение на деградирания изотопен състав на плутония и позволява реализиране на многократната рецикулация на плутония в цикъла. Едно от предимствата на този проект е, че той е напълно съвместим със съществуващите активни зони и не изисква нова технология, както при АРА. Възможно да се зареди цялата зона с това гориво, а стойностите на коефициентите на реактивност попадат в приемливи рамки. Като цяло комплектът CORAIL показва неутрално потребление на плутоний - производството на плутоний в UO_2 е близо до потреблението на плутоний в топлоотделящите елементи с MOX при равновесен цикъл.

При многократно рециклиране CORAIL осигурява значително намалена радиотоксичност в сравнение с еднократно рециклиране с MOX. Обемите на ниско- и средноактивните отпадъци, генерирани от преработката, са по същество съизмерими със случая на MOX гориво.

Източници:

- [1] Глухов, Г. (2004) Ядрени енергийни реактори, Ифо дизайн, С.
- [2] Castle, B.K. et al. (2012) Plutonium Discharge Rates and Spent Nuclear Fuel Inventory Estimates for Nuclear Reactors Worldwide, Idaho National Laboratory, INL/EXT-12-27150, Idaho Falls, ID, United States
- [3] Burakov, B.E., M. Ojovan, W.E. Lee (2011) Crystalline Materials for Actinide Immobilisation, Materials for Engineering – vol. 1, Imperial College Press, London, United Kingdom
- [4] OECD NEA (2003) Plutonium Management in the Medium Term, A Review by the OECD/NEA Working Party on the Physics of Plutonium Fuels and Innovative Fuel Cycles (WPPR), NEA No. 4451, Paris
- [5] Provost, J.-L. et al. (2000) MOX Fuel Fabrication and Utilisation in LWRs Worldwide, In: Proceedings of MOX Fuel Cycle Technologies for Medium and Long Term Deployment Symposium, pp. 29-37, ISSN 1563-0153, Vienna
- [6] Найденов, И. (2017) Особенности при експлоатацията на смесени уран-плутониеви (MOX) горива в леководни реактори, В: Сборник доклади XXII Научна конференция с международно участие ЕМФ 2017, Том I, Созопол, стр. 103-109

- [7] OECD NEA (1995) Physics of Plutonium Recycling, Volume I, Issues and Perspectives, A Report by the Working Party on Physics of Plutonium Recycling of the NEA Science Committee, Paris
- [8] Provost, J.-L. (2011) MOX use in PWRs. EDF operation experience, GLOBAL 2011, Makuhari, Japan, December 11-15, 2011
- [9] Courtin, F. (2017) Etude de l'incinération du plutonium en REP MOX sur support d'uranium enrichi avec le code de simulation dynamique du cycle CLASS, Thèse, Ecole nationale supérieure Mines-Télécom Atlantique, Nantes

Автори:

маг. инж. Златина Манчева, Агенция за ядрено регулиране, zlatina.mancheva@gmail.com

д-р инж. Ивайло Найденов, член на УС, Научно-технически съюз на енергетиците в България, +359 898 597194, ivaylo.naydenov@gmail.com