

Лекция 14

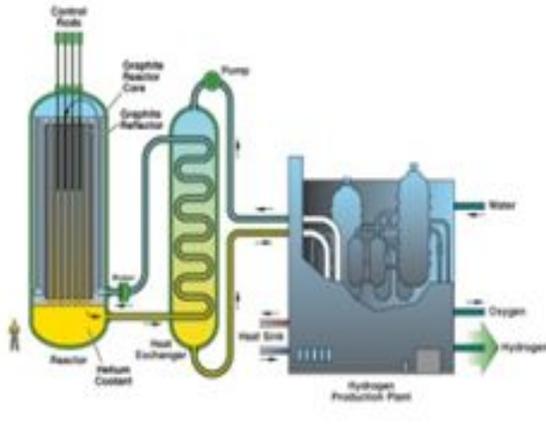
Жидко-солевой реактор (ЖСР)

- Идея ЖСР
- История ЖСР.
- Преимущества ЖСР
- ЖСР- пережигатель МА
- Быстрый ЖСР
- Эвтектика LiF-NaF-KF
- Проблемы ЖСР

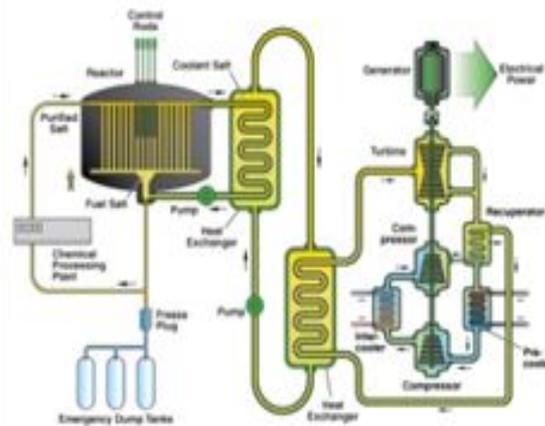
Современное состояние ЯЭ

- Естественная безопасность – нет
- Гарантия нераспространения ядерных материалов – нет
- Замыкание ЯТЦ – нет
- Надёжная утилизация МА – нет
- Экономическая целесообразность - нет

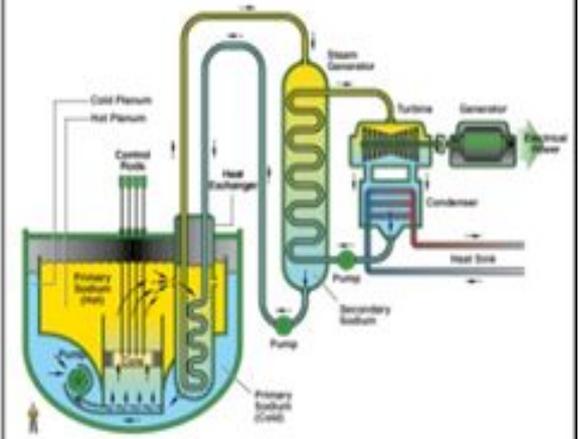
Very-High-Temperature Reactor



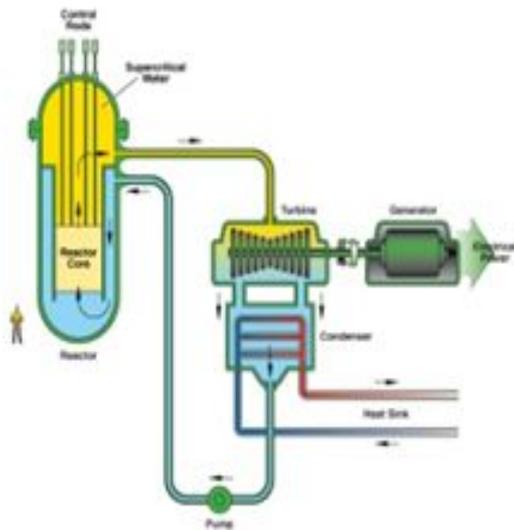
Molten Salt Reactor



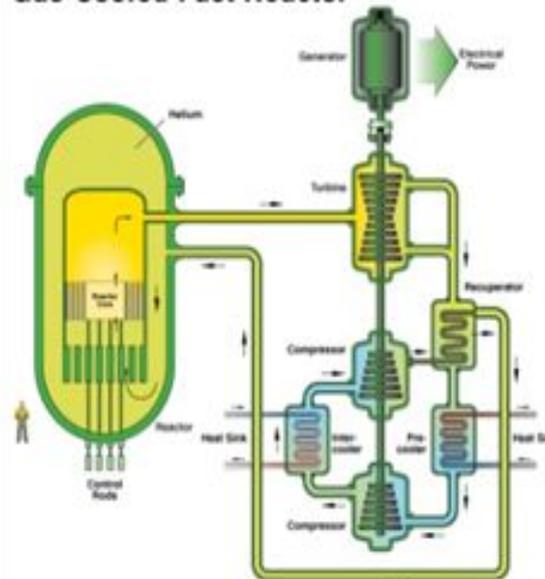
Sodium-Cooled-Fast Reactor



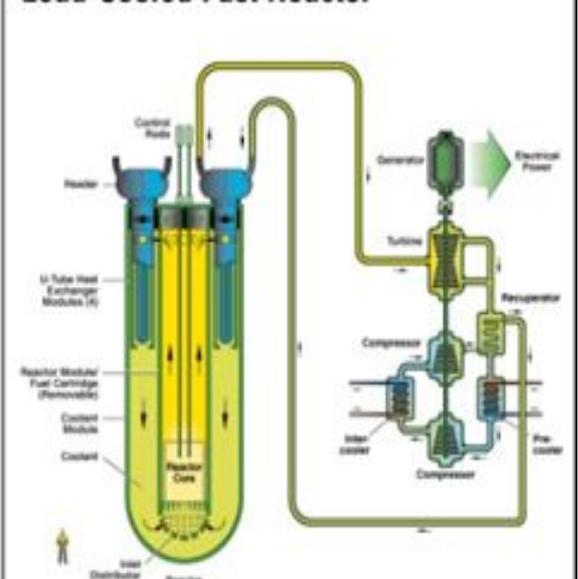
Supercritical-Water-Cooled Reactor



Gas-Cooled Fast Reactor



Lead-Cooled Fast Reactor



Проблема ресурсов

- Оценённые рентабельные запасы урана в мире ~ 16 млн. тонн.
- Запасы ^{235}U ~ 50 тыс. тонн.
- Современное потребление ~600 т/год, к середине века ~ 1 тыс. тонн/год
- Топливный ресурс ~ 50 – 100 лет.
- Выход – использовать ^{238}U .
- Или ^{232}Th (его в 3 раза больше).

Пути преодоления проблемы

- Бридинг ядерного топлива в U-Pu ЯТЦ:



Быстрые Реакторы

- Переход к Th-U ЯТЦ:



Жидко-солевые реакторы

Почему ЖСР?

- **ЖСР** - реактор с внутренней безопасностью, так как его температурный и пустотный коэффициенты отрицательны и для него аварии, подобные Чернобылю, невозможны.
- В реакторе отсутствует давление в контуре и нет потенциально опасного теплоносителя.
- Отсутствует необходимость в изготовлении топливных элементов из высокоактивного ОЯТ.
- Отсутствуют ограничения на глубину выгорания .
- Возможна *on line* переработка ОЯТ и замыкание ЯТЦ.

“Со времени пуска первых реакторов возникли две очень разные школы в реакторостроении. Одна школа, представляющая твердотопливные реакторы, рассматривает реактор, как механическое устройство, основное предназначение которого – генерация тепла. Другой подход, представленный реакторами с жидким топливом, рассматривает реактор, в основном, как химическую фабрику, главная задача которой - эффективное обращение с топливом и его обновление.”

(R. Briant и A. Weinberg, 1957)

Краткая история ЖСР

1939 г.

Я.Б. Зельдович и Ю.Б. Харитон впервые рассмотрели гомогенный ядерный реактор и показали, что без обогащения урана изотопом ^{235}U он работать не будет;

1944 г.

В Los Alamos создан первый гомогенный реактор на водном растворе соли обогащённого урана;

1954 г.

В Oak Ridge построен жидко-солевой реактор **ARE** (Aircraft Reactor Experiment) мощностью **2,5 МВт** с топливной композицией $\text{NaF-Zr F}_4 - \text{UF}_4$ при **860°C**;

1965 – 1969 гг.

В Oak Ridge работал в течение **5 лет** реактор **MSRE** (Molten Salt Reactor Experiment) мощностью **7,6 МВт** с топливной композицией $\text{LiF-BeF}_2 - \text{UF}_4$ при температуре **650°C**.

Сегодня

В РНЦ «КИ» работает реактор **АРГУС** мощностью **20 кВт** с топливной композицией – раствор уранилсульфата в воде.

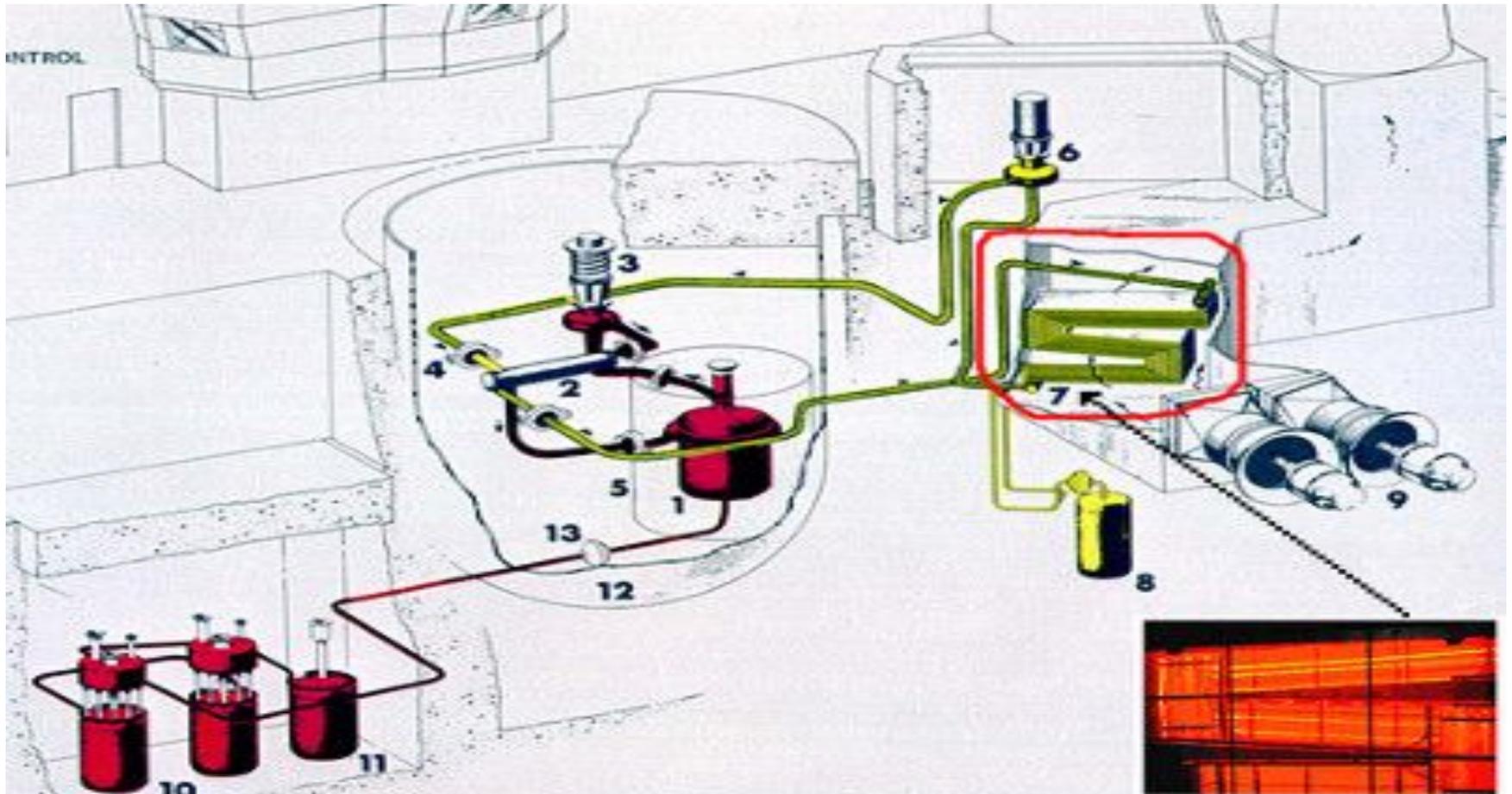
ARE и MSRE

ARE реактор (Aircraft Reactor Experiment, 1954, Oak Ridge, USA) мощностью 2.5 МВт использовал топливную солевую композицию $\text{NaF-ZrF}_4\text{-UF}_4$ (53-41-6 мол.%) при температуре 860°С.

MSRE реактор (Molten Salt Reactor Experiment, Oak Ridge, USA) мощностью 7.4 МВт использовал топливную солевую композицию ${}^7\text{LiF-BeF}_2\text{-ZrF}_4\text{-UF}_4$ (65-30-5-0.1 мол.%) при 650°С и действовал ~ 5 лет (январь 1965 – декабрь 1969), используя как ${}^{235}\text{U}$, так и ${}^{233}\text{U}$.

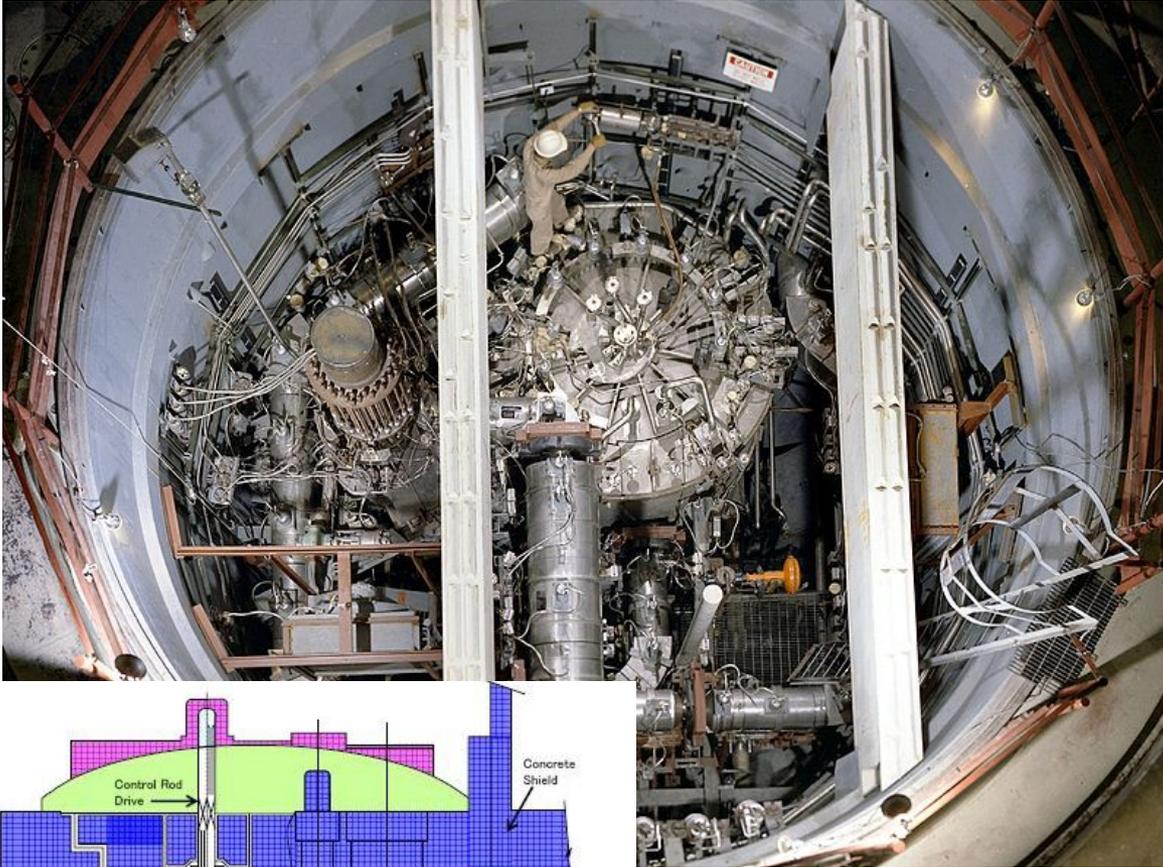
Эксперименты показали возможность устойчивой работы таких реакторов.

MSRE

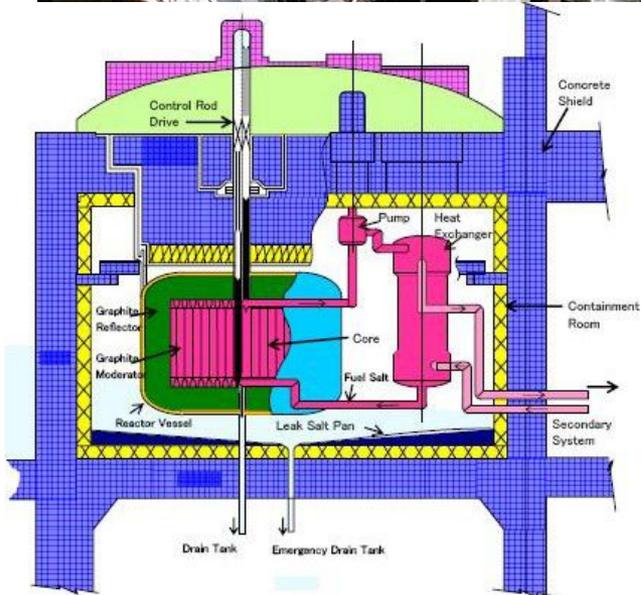


1. Reactor Vessel, 2. Heat Exchanger, 3. Fuel Pump, 4. Freeze Flange, 5. Thermal Shield,
5. Coolant Pump, 7. Radiator, 8. Coolant Drain Tank, 9. Fans, 10. Fuel Drain Tanks,
11. Flush Tank, 12. Containment Vessel, 13. Freeze Valve.

MSRE



MSRE core



MSBR

Опираясь на опыт эксплуатации MSRE в 1971 г. был разработан проект реактора MSBR (*Molten Salt Breeder Reactor*) мощностью 1 ГВт(эл.) с топливной композицией ${}^7\text{LiF}-\text{BeF}_2-\text{ThF}_4-\text{UF}_4$ (72-16-11.7-0.3 мол.%) и графитовым замедлителем.

Спектр нейтронов во всех этих реакторах - тепловой и поэтому в 70-х годах предпочтение было отдано проекту быстрого реактора. Кроме того, в это время было принято стратегическое решение: ОЯТ не перерабатывать, а хранить до лучших времён, что в корне противоречит концепции ЖСР.

Современное состояние

В 1972 г. программа ЖСР была в США закрыта в пользу программы быстрых реакторов.

В 2001 г. ЖСР включён в программу GENERATION-4 как один из шести возможных типов реакторов будущей ЯЭ.

США – Thorium Energy Alliance

FLiBe Energy

Transatomic Power

Европа – **iThEC** – *International Thorium Energy Committee*

ALISIA – материалы, **EVOL**– быстрый ториевый реактор.

Япония – программа **FUJI**

Китай – с 2011 г. программа “Thorium Molten Salt Reactor (TMSR) Nuclear Energy System”, готов дизайн-проект мощностью

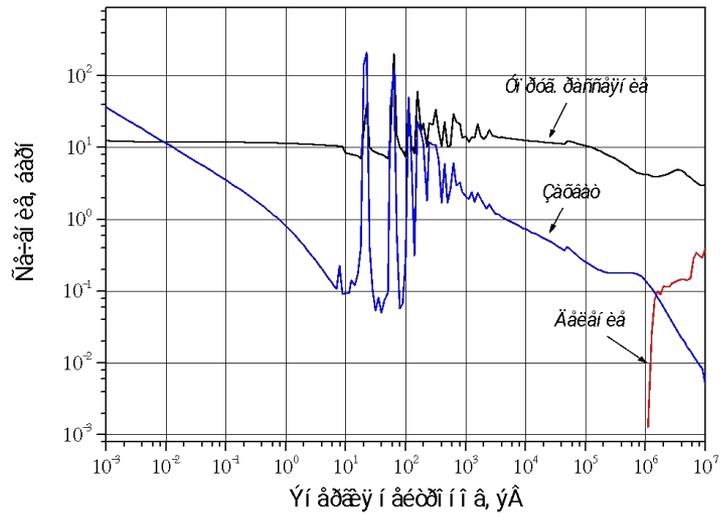
2 МВт, 2020 г. – пуск.

Th-U ТОПЛИВНЫЙ ЦИКЛ

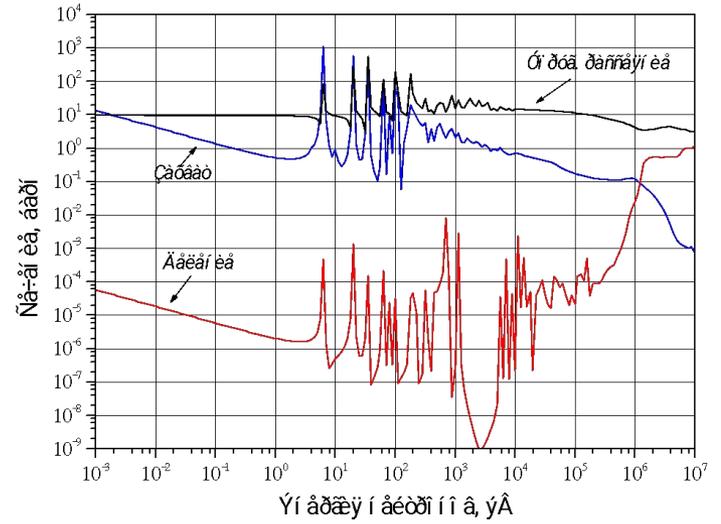
Почти все упомянутые проекты использовали эвтектику ${}^7\text{LiF-BeF}_2$ как несущую соль и **Th-U** топливо с тепловым спектром нейтронов.

Th-U цикл имеет определенные преимущества, но для его реализации необходимо вначале наработать ${}^{233}\text{U}$, а это можно наиболее эффективно осуществить в быстром реакторе с **U-Pu** циклом.

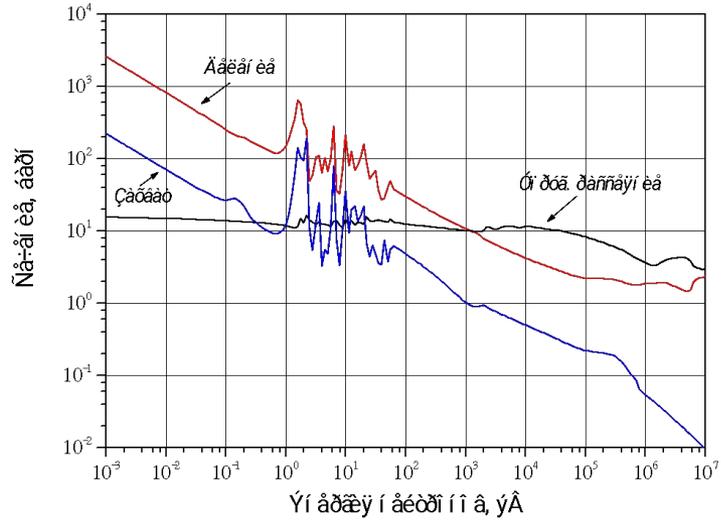
Th-232



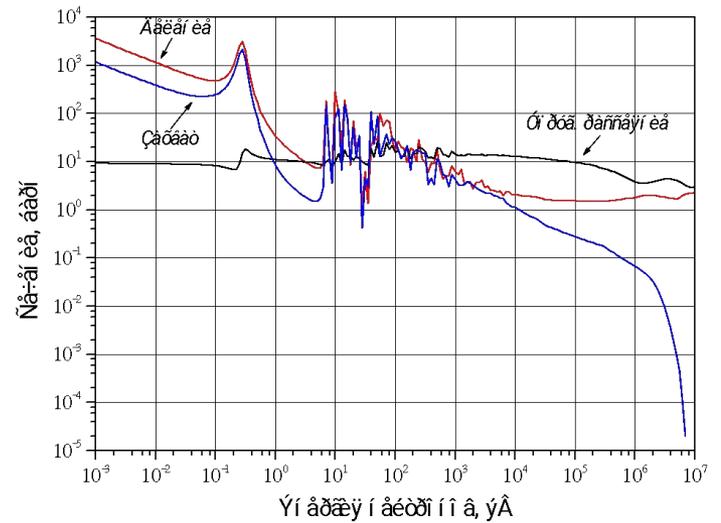
U-238



U-233



Pu-239



Параметры Th-U и U-Pu циклов

$E_n = 0,025 \text{ эВ}$					$E_n = 2 \text{ МэВ}$			
Изотоп	ν	$\sigma_f, \text{барн}$	$\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$	$\eta = \frac{\nu}{1+\alpha}$	ν	σ_f	α	η
^{233}U	2,49	529	0,086	2,29	2,67	1,94	0,041	2,56
^{235}U	2,42	583	0,169	2,07	2,67	1,27	0,047	2,55
^{239}Pu	2,88	748	0,360	2,12	3,18	1,96	0,011	3,15

Задача -- соединить 3 свойства:

- Быстрый спектр ;
- Жидкое топливо;
- U-Pu топливный цикл.

Для этого необходимо обеспечить в топливной композиции концентрацию делящихся изотопов на уровне ≥ 10 ат.%.

U-Pu ядерный топливный цикл

Замыкание **U-Pu** топливного цикла можно осуществить только с использованием быстрых реакторов.

Чтобы создать ЖСР с быстрым спектром нейтронов его топливная композиция должна содержать ~ 10 ат.% делящихся ядер (~ 50 масс. %), в частности **U** и **Pu**.

Но фторидных солей с такой высокой растворимостью **PuF₃** до недавних пор не было известно.

Растворимость PuF_3 (mol%)

	T _{пл.} , °C	Температура, °C			Литература
		550	600	650	
67LiF-33BeF₂	460	0,31	0,45	0,88	Barton et al., 1958
66,7LiF-33,3BeF₂	460	0,39 ^β	0,58	0,83	Barton, 1960
17,5LiF-56,5NaF-26BeF₂	505	1,56	1,56	2,80	Barton, 1960
15LiF-58NaF-27BeF₂	480	1,33	1,94	2,89	Ignatiev et al., 2006
70LiF-10BeF₂-20UF₄	-	1,27	1,70	2,48	Thoma, 1958
72LiF-16BeF₂-12ThF₄	-	1,17	1,78	2,57	Bamberger et al., 1970
75LiF-20BeF₂-5ThF₄	-	-	2,88	-	Iyer et al., 1973
75LiF-5BeF₂-20ThF₄			2,9	3,8	Sood et al., 1975
75LiF-5BeF₂-20ThF₄	-	-	3,16	3,98	Ignatiev et al., 2012

Растворимость PuF_3 (мол. %) в ЖИДКИХ СОЛЯХ

Salt (мол. %)	T_{melt} , °C	Temperature, °C				Ref.
		550	600	650	700	
LiF–BeF₂ (67-33)	460	0.31	0.45	0.84	–	Barton, 1958
LiF–NaF–BeF₂ (15-58-27)	480	1.33	1.94	2.90	–	Ignatiev et al., 2006
LiF–NaF–KF (46.5-11.5-42)	454	6.8 ±0.6	12.7 ±1.0	21.2 ±1.8	31.1 ±2.5	RIAR, VNIITF, 2013

Свойства фторидных солей

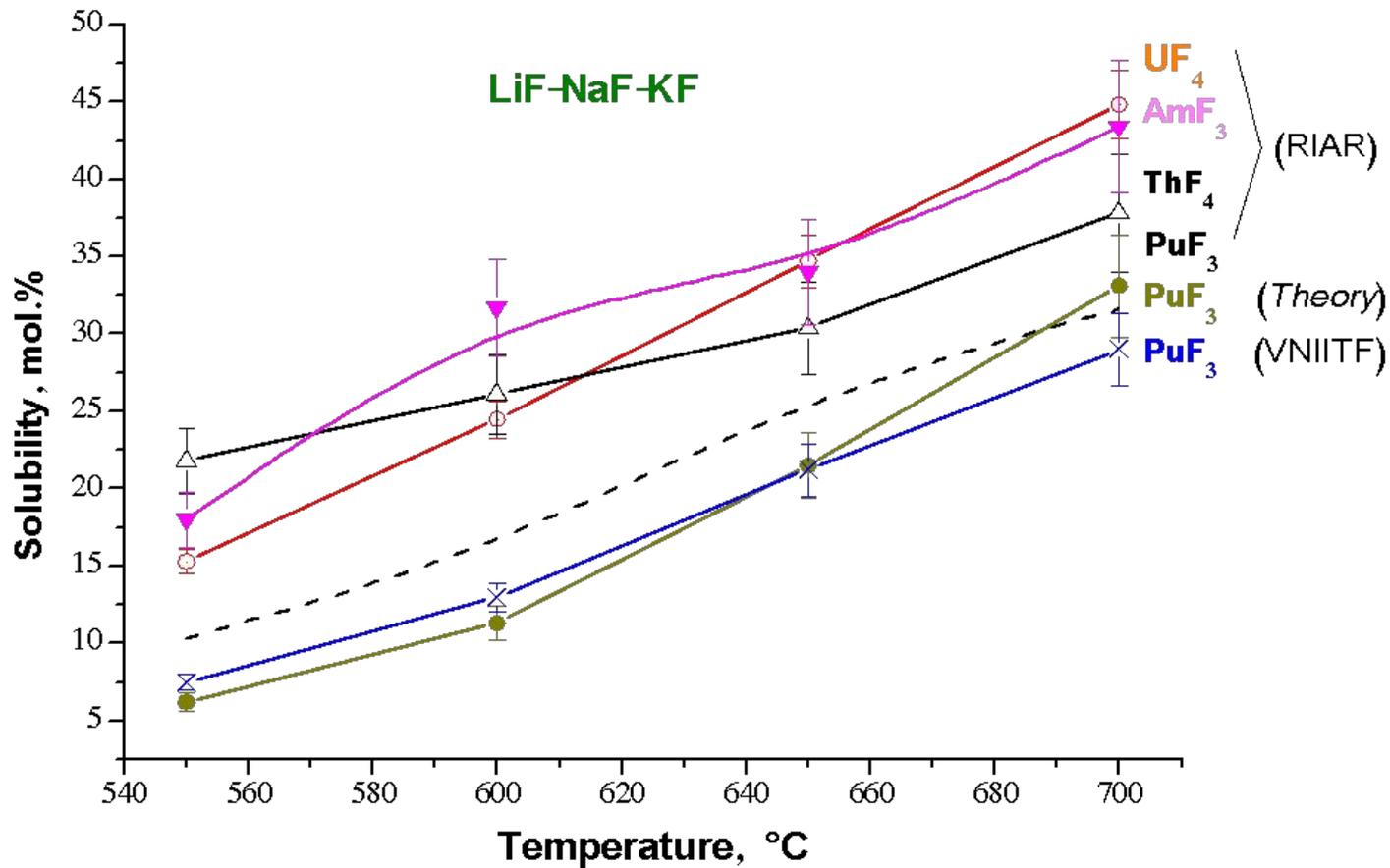
Composition (mole %)	Mol. Weight, g/mol	Liquidus T , °C	Vapor pressure at 900°C, mm Hg	Thermophysical properties at $T=700$ °C				Neutron capture vs. graphite	Deceleration capacity vs. graphite
				Density ρ , g/cm^3	Thermal capacity c_p , $J/g \cdot ^\circ K$	Viscosity νP , m^2/c	Thermo- conductivity, $W/m \cdot K$		
LiF-BeF₂ (67-33)	33	460	1.2	1.94	2.42	5.6	1.00	8	60
LiF-NaF-KF (46.5-11.5-42)	41.3	454	~ 0.7	2.02	1.85	2.9	0.92	4	0.4
Na (450°C)	23.0	98	10.6	0.844	1.272	0.23	71.2	36	0.34
Pb (450°C)	207.2	327.6	10.7	10.52	0.147	0.15	17.1	29	0.15
Pb-Bi 450°C)	208.2	125		10.15	0.146	0.11	14.2	63	0.13
H₂O (300 °C)	18	0	$8.6 \cdot 10^3$	0.72	5.64	0.09	0.54	16	55

LiF-NaF-KF (FLiNaK)

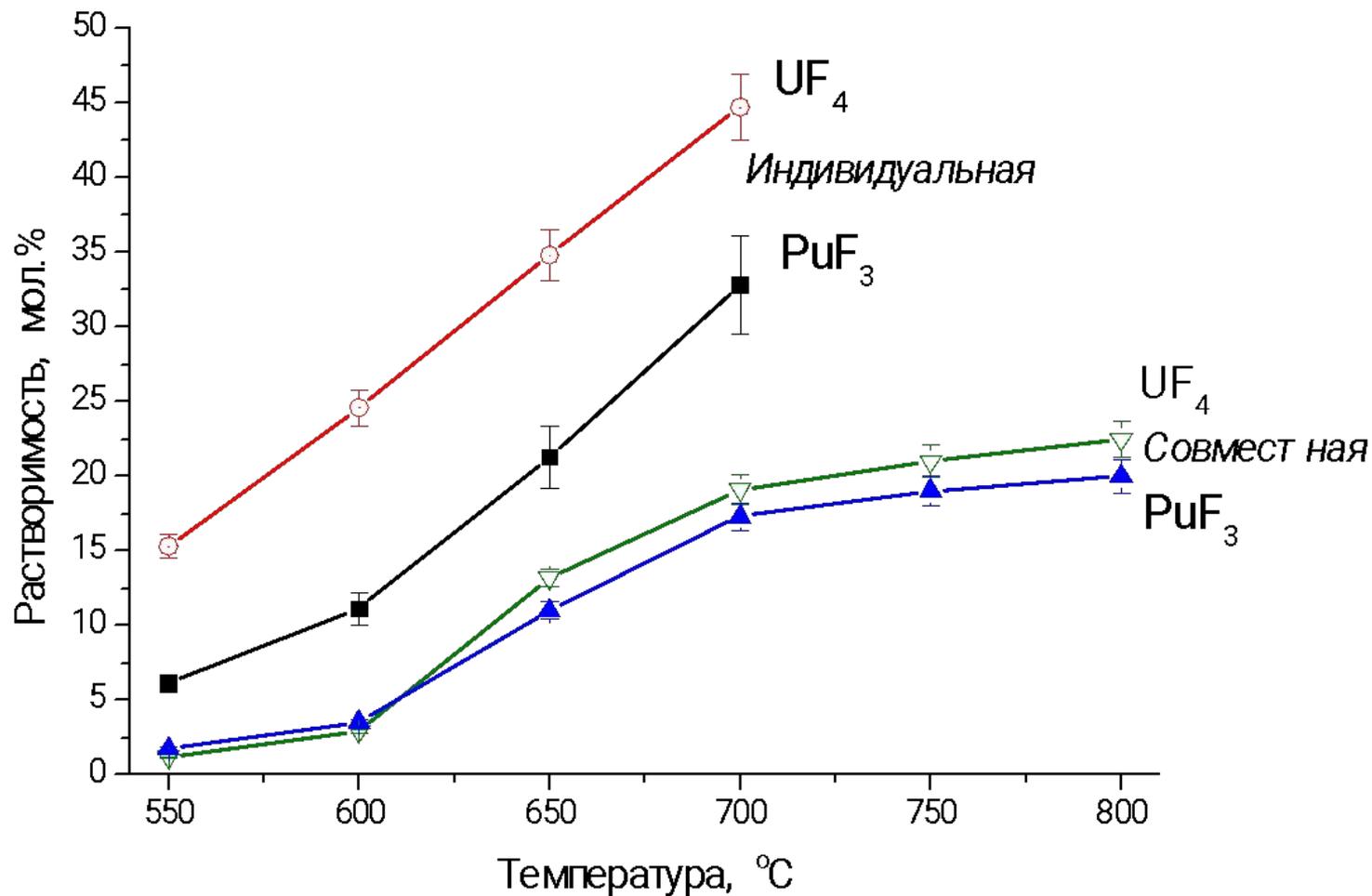
Эвтектика $46.5\text{LiF}-11.5\text{NaF}-42\text{KF}$ (моль.%), FLiNaK хорошо известна, но она рассматривалась только как теплоноситель для высокотемпературных реакторов или как бланкет термоядерного реактора (Oak Ridge, 1972; Livermore, 2006).

Коррозионная активность FLiNaK сравнима с активностью соли $2\text{LiF}-\text{BeF}_2$ (Idaho, 2010).

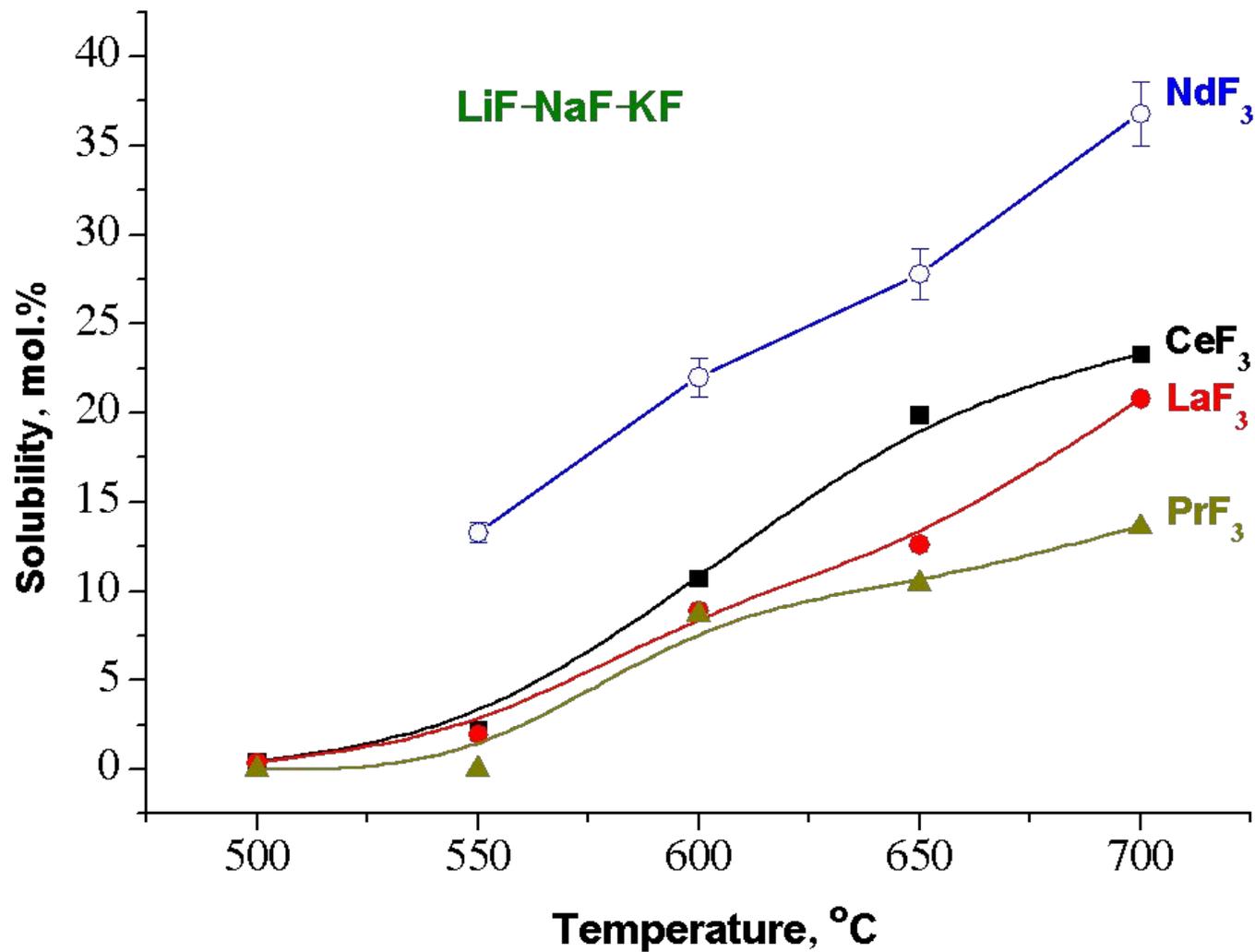
Растворимость актинидов



Совместная растворимость UF_4 и PuF_3



Растворимость лантанидов



Проблема америция

За год в тепловом реакторе мощностью 1 ГВт (ВВЭР, PWR) образуется ~ 3.5 кг Am.

После 30 лет хранения ОЯТ эта масса увеличивается до 30 кг за счёт распада $^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Am}$, а общая масса Am, накопленного за 50 лет хранения ОЯТ, составляет ~ 200 т и каждый год увеличивается на ~ 2 т.

Так как доля запаздывающих нейтронов при делении Am мала ($\beta=0.17\%$), рассматриваются, в основном, подкритические варианты ЖСР-сжигателя Am.

Большая растворимость AmF_3 в FLiNaK позволяет создать подкритический БЖСР-сжигатель Am

ЖСР – пережигатель минорных актинидов

Проблема утилизации **Np**, **Am** и **Cm** в 90-х возродила интерес к ЖСР.

Так как доля запаздывающих нейтронов при делении **MA** мала ($\beta=0.17\%$), были рассмотрены подкритические варианты ЖСР.

Было показано, что один ЖСР-пережигатель на базе **FLiNaK**, способен уничтожить **Am** из отработавшего топлива ~ 10 **ВВЭР-1000** (PWR, BWR) после **30** - летней выдержки.

БЖСР – сжигатель МА на основе LiF-NaF-KF

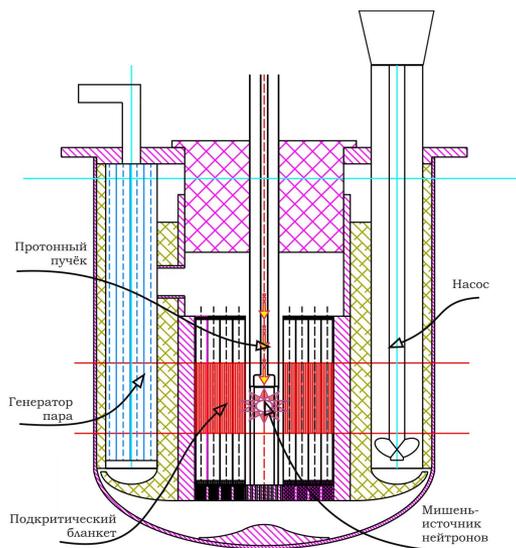
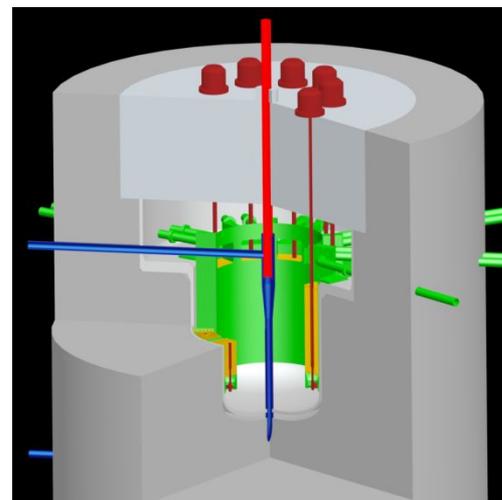


Схема ADS



Подкритический БЖСР-сжигатель

ЖСР – пережигатель МА на основе FLiNaK

Efficiency:

$$q_{TRU} \sim 300 \text{ kg/year} \cdot \text{GWth};$$

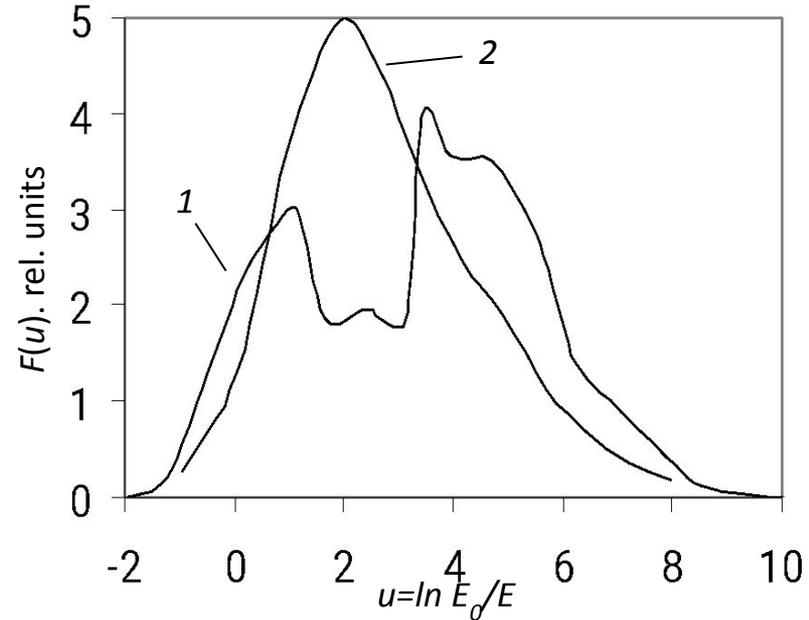
Pu consumption:

$$\varepsilon = Pu / Am \approx 0;$$

Transmutation time:

$$T = Q_{TRU} / q_{TRU} \approx 20 \text{ years};$$

Q_{TRU} is TRU mass in equilibrium mode.



1 – neutron spectrum by MSR-burner;
2 – neutron spectrum by fast reactor.

Подкритический БЖСР- сжигатель Am на основе FLiNaK

Параметр	1650 МВт тепл	495 МВт тепл	495 МВт тепл
Мощность ускорителя, <i>MВт</i>	10	3	9
Подкритичность, $\Delta k=1-k$	0.01	0.01	0.03
Солевая зона, высота/радиус, <i>см</i>	174/94	116/63	118/64
Равновесная загрузка <i>Pu/Am</i> , <i>тонн</i>	5.3/5.4	2.0/1.2	2.0/1.2
Подпитка, <i>Pu/Am</i>	0	0.59	0.54
Скорость пережигания <i>Am</i> , <i>кг/год</i>	520	98	98
Удельная скорость сжигания <i>Am</i> , <i>кг/год·ГВт(тепл.)</i>	~300	~200	~200
Скорость сжигания	~20	~30	~30

Основные характеристики

- **Производительность** ~ 300 кг/ГВт(тепл.)
·год;
- **Потребление** P_u $\varepsilon = P_u / A_m \approx 0$;
- **Время пережигания** $\tau = Q_{TRU} / q_{TRU} \sim 20$ лет;
- Q_{TRU} – равновесная загрузка топлива.
- **20** таких реакторов достаточно для пережигания всего **A_m** , накопленного в хранилищах \sim **ОЯТ** за **50** лет существования **ЯЭ**, в течение \sim **20** лет.

Быстрый жидко-солевой реактор (БЖСР)

БЖСР удовлетворяет требованиям «естественной безопасности» реакторов:

- отсутствует избыточная реактивность;
- отрицательный температурный и плотностной коэффициенты;
- отсутствуют опасные и химически активные теплоносители;
- отсутствует давление в первом контуре.

Кроме того, отпадает необходимость в изготовлении топливных элементов, нет ограничений на глубину выгорания, а также появляется возможность постоянной корректировки состава топлива.

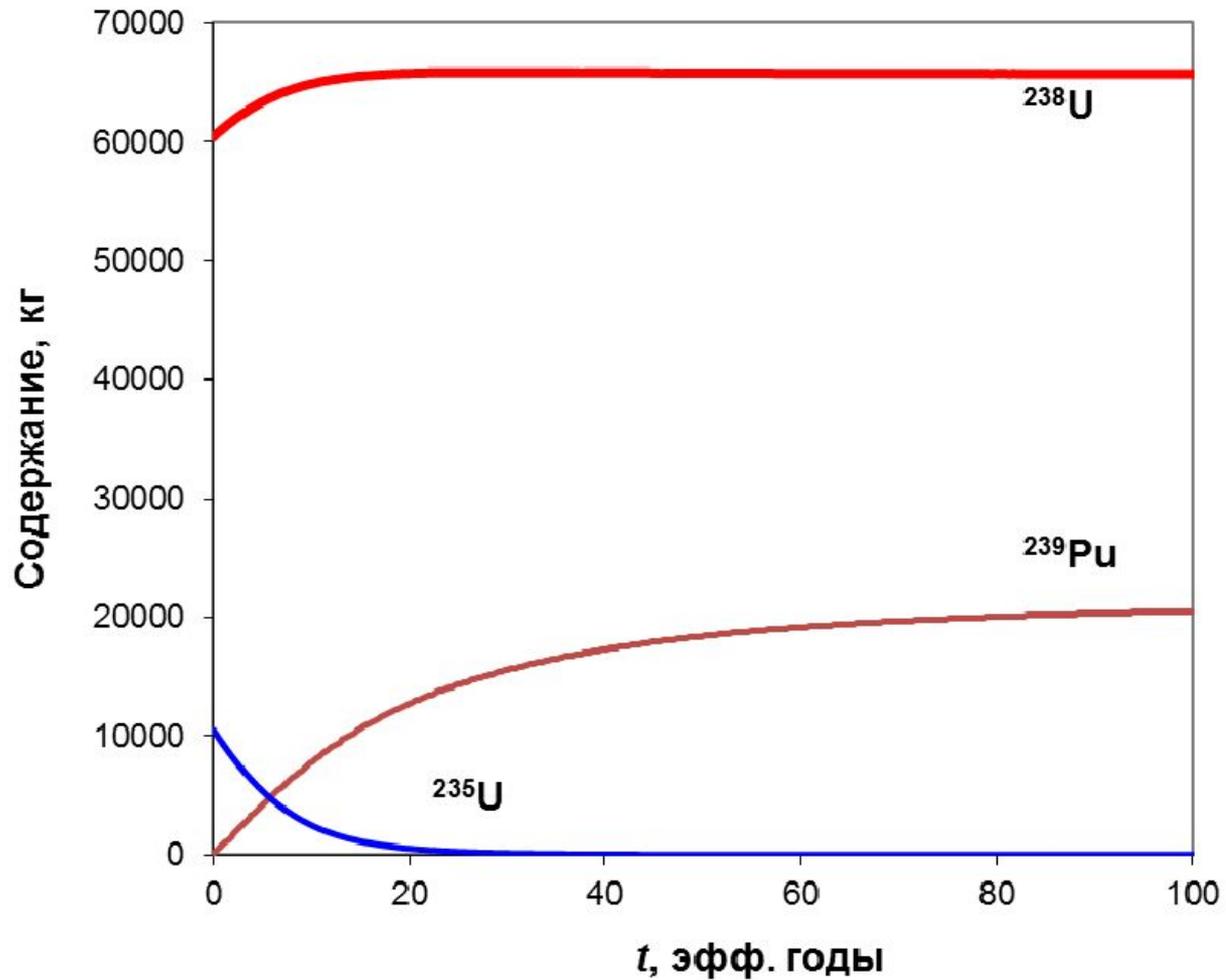
U-Pu БЖСР

Полученные результаты открывают путь для создания быстрого реактора с жидким топливом и пристанционным **U-Pu** замкнутым ядерным топливным циклом. В этом случае отработавшее топливо тепловых реакторов можно использовать как топливо первоначальной загрузки для **БЖСР** даже без какой-либо переработки, добавляя в стартовую загрузку необходимое количество **Pu** или ^{235}U .

Параметры БЖСР и БР

Parameter	FMSR	BREST-1200
Reactor power W_b , <i>MWth</i>	3200	2800
Full loading $U/Pu/MA$, <i>t</i>	68.6/21/1.4	60/5.7
UF_4 , <i>mol.%</i>	21	-
MA fluorides in reactor, <i>mol.%</i>	7	-
Specific power, <i>W/cm²</i>	150	143
Volume of reactor V , <i>m³</i>	21.2	19.5
Volume of fuel counter, <i>m³</i>	29.2	-
Radius/height of reactor, <i>cm</i>	150/300	238/110
Effective fuel density, <i>g/cm³</i>	3.1	3.4

Равновесный режим БЖСР



БЖСР и проблемы ЯЭ

- Естественная безопасность -
есть
- Ресурсы топлива – есть
- Нераспространение – есть
- Замыкание ЯТЦ – не
разработано
- Экономика – не оценена

Заключение

Впервые появилась возможность создания быстрого реактора жидким топливом и U-Pu циклом.

Разработка и создание БЖСР – это не только инженерная и технологическая проблема, но, прежде всего, проблема научная и поэтому требует детальных исследований физики и химии БЖСР.

Большинство проблем ЖСР было изучено в проектах MSRE и MSBR, в которых использовали соль LiF-BeF₂. Методы и результаты этих работ (более 300 статей и отчётов) являются хорошим заделом для разработки БЖСР, основанного на соли LiF-NaF-KF.

Проблемы БЖСР

- Коррозионная стойкость материалов под воздействием ПД, температуры и жёсткой радиации
- Проблема обслуживания ЖСР
- Высокая рабочая температура (700 °C)

Для сравнения: ВВЭР-1000 - 320 °C и 160 атм.

СВБР (Pb-Bi) - 500 °C

БРЕСТ (Pb) - 540 °C

Conclusion of the MSRE creators (1965 – 1970)

1. Operation of the MSRE has served to demonstrate and emphasize the basic **soundness** of the molten-salt reactor concept (*Haubenrich and Engel, Nucl. Appl. & Technol.*, **8**, 118-136, 1970).
2. **Loss of delayed neutrons** by precursor decay outside the core significantly reduces the effective delayed-neutron fraction in the MSRE. In fact, with the salt circulating their effective fractions are **0.0045** and **0.0017** for the ^{235}U and ^{233}U fuels. Despite these low fractions the system response to perturbations is quite acceptable with either fuel (*Haubenrich and Engel, ibid*).
3. Concern is also frequently expressed about corrosion of the system containment of the radioactive liquids and gases, reliability of the equipment and maintenance of the highly radioactive system. Operation of the **7.5-MW Molten Salt Reactor Experiment (MSRE)** from early 1965 to December 1969 **provided favorable first-order answers to these questions** (*MacPherson, Reactor Technology*, **15**, 136, 1972).