

УДК 621.039.674.3

КОНЦЕПЦИЯ «ЗЕЛЁНОЙ» ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ

Е.П. Велихов, Э.А. Азизов, П.Н. Алексеев, М.И. Гуревич, С.А. Субботин, А.Л. Шимкевич

НИЦ «Курчатовский институт», Москва, Россия

На саммите РИО + 20 в Рио-де-Жанейро заявлена необходимость технологических инноваций, в том числе в энергетике, для устойчивого развития общества. Сформулированы требования к «зелёным» (экологически приемлемым) технологиям. Ядерные технологии, при определённых условиях, максимально подходят под это определение. Однако ахиллесовой пятой ядерной энергетики деления являются запроектные аварии, которые в течение полувекa три раза угрожали самому существованию ядерной энергетики (аварии на Три-Майл-Айленде, в Чернобыле и Фукусиме). Две основные причины — неконтролируемый разгон реактора и потеря охлаждения. Неконтролируемый разгон связан с осуществлением самоподдерживающейся цепной реакции (чернобыльская авария). Отказ от этого свойства приводит к естественному решению — созданию гибридного (синтез-деления) реактора. Вторая проблема — потеря охлаждения (аварии на Три-Майл-Айленде и Фукусиме). Кардинальное решение — постоянная очистка топлива от продуктов деления. Такая технология известна — реактор на расплавах солей. Решение, таким образом, здесь сводится к возможному варианту реактора с внутренней самозащищённостью — жидкосолево-му гибридне-му токамаку.

Ключевые слова: ядерные технологии, внутренняя самозащищённость, жидкосолево-й подкритический реактор, термоядерный источник нейтронов.

CONCEPT OF «GREEN» NUCLEAR POWER ENGINEERING

E.P. Velikhov, E.A. Azizov, P.N. Alekseev, M.I. Gurevich, S.A. Subbotin, A.L. Shimkevich

NRC «Kurchatov Institute», Moscow, Russia

At RIO + 20 meeting in Rio de Janeiro the need for technological innovation for the sustainable development of society, including energetic, was declared. The demands for «green» (environmentally acceptable) technologies were formulated. Nuclear technologies, under certain circumstances, come under this definition at most. However beyond design accidents which for the half of century three times threatened the very existence of nuclear power (Three Mile Island, Chernobyl, and Fukushima) are the Achilles heel of nuclear power engineering. The two main reasons are uncontrolled reactor runaway and the loss of cooling. Uncontrolled runaway is connected with the reactor ability to implement self-sustaining chain reaction (the Chernobyl accident). The renunciation of this feature will lead to the creation of hybrid (fusion—fission) reactor as the natural fix. The loss of cooling (Fukushima accident) is the second problem. The permanent fuel refinement from fission products is the cardinal solution. This technology is known — the Molten Salt reactor. Thus, the solution of problems of safety of the future nuclear power engineering here is reduced to possibility of realization inherent safety nuclear power plant — MSHT — Molten Salt (MS) Hybrid (H) Tokamak (T).

Key words: nuclear technologies, inherent safety, molten salt subcritical reactor, fusion source of neutrons.

ВВЕДЕНИЕ

На Конференции ООН по устойчивому развитию (Rio + 20) в Рио-де-Жанейро (Бразилия) 20—22 июля 2012 г. была обозначена острая необходимость осуществления технологических инноваций прежде всего в энергетике и сформулированы требования к «зелёным» технологиям. Ядерная энергетика при определённых условиях, как это ни странно, идеально отвечает этим требованиям:

— имеет почти неограниченную ресурсную базу — урановую, ториевую и дейтериевую (с учётом запасов мирового океана);

— в нормальном эксплуатационном режиме не засоряет окружающую среду — ни атмосферу, ни воду, ни почву;

— в некоторых местах, например, в Арктике, в ледовых условиях, это единственное приемлемое решение с точки зрения сохранения окружающей среды;

— современные технологии обеспечивают надёжное хранение отходов ядерного топливного цикла длительное время.

Вместе с тем чрезвычайно редкие тяжёлые (запроектные) аварии, трижды за полвека угрожавшие существованию ядерной энергетики, стали её «ахиллесовой пятой». В связи с этим на первый план выдвинулась задача создания ядерно-энергетических систем, для которых при любом сочетании внутренних и внешних инициаторов аварий не потребуется отселить окружающее население. Только в этом случае ядерная энергетика сможет, наконец, занять существенное место в мировом топливно-энергетическом балансе на длительную перспективу.

Причины таких запроектных аварий очевидны — неконтролируемый разгон реактора или потеря охлаждения. Неконтролируемый разгон реактора (как в Чернобыле) обусловлен главной способностью критического ядерного реактора — самоподдерживающейся цепной реакцией. Отказ от неё, очевидно, потребует включения в реакторную систему нейтронного источника, т.е. создания гибридного термо-ядерного реактора, который, однако, не исключает другую особенность ядерного реактора — необходимость постоянного отвода тепла. В противном случае остаточное энерговыделение разрушит реактор (как на Три-Майл-Айленде и Фукусиме).

Радикальным решением этой проблемы может стать отказ от накопления радиоактивных продуктов в твёрдотопливных элементах ядерного реактора — второй «священной корове» современной ядерной энергетики. В принципе это возможно при непрерывной очистке циркулирующего жидкого топлива, например, расплава соли (Molten Salt) в химическом контуре реактора. Применение расплавно-солевых топливных композиций на основе фторидов обосновано следующими их свойствами:

- пожаробезопасность, высокая температура кипения, низкая электропроводность и слабое воздействие магнитных полей на теплообмен;
- высокая радиационная и термическая стойкость, химическая инертность по отношению к воде и воздуху;
- возможность обеспечения естественной циркуляции в контурах ядерных энергетических установок;
- преимуществом расплавно-солевой системы является отсутствие давления в первом контуре реактора, что позволяет уменьшить массу конструкций в реакторе и устранить источник механической аварии, внутренне присущей системам с газовым или водяным охлаждением;
- высокая температура плавления и вязкость фторидов позволяют осуществить гарнисажную защиту поверхности и способствуют эффективному самозалечиванию трещин в случае разгерметизации;
- высокие рабочие температуры расплава соли позволяют повысить эффективность преобразования энергии.

Технической платформой для гибридного термоядерного реактора может стать ИТЭР, имеющий приемлемый для этих целей научный и технологический потенциал. Решение проблем безопасности будущей «зелёной» ядерной энергетики сводится к возможности реализации внутренне самозащищенного ядерного энергоисточника — жидкосолевого гибридного токамака (ЖСГТ), в котором неприятные последствия всех возможных запроектных аварий — с изменением мощности (реактивные аварии), с захолаживанием теплоносителя, с потерей расхода теплоносителя, с потерей теплоносителя и их наложение без срабатывания систем защиты должны быть исключены на уровне законов природы. Неприятные последствия в запроектных авариях с изменением мощности (реактивные аварии) и с захолаживанием теплоносителя без срабатывания систем защиты в ЖСГТ исключены условиями работы бланкета в подкритическом режиме с внешним источником нейтронов. Для запроектных аварий с потерей расхода солевого расплава (причины — отключение или заклинивание насосов, перекрытие проходного сечения) и потерей теплосъёма вторым контуром без срабатывания систем защиты в ЖСГТ неприятные последствия исключены свойствами и решениями, характерными для жидкосолевого реактора (ЖСР) (в активной зоне нет избыточного запаса топлива на кампанию реактора, остаточное энерговыделение пропорционально мощности бланкета, а не интегралу от энерговыделения благодаря постоянной сепарации продуктов деления в химическом контуре; при избыточных перегревах топливного солевого расплава он пассивно сливается в дренажные баки, которые охлаждаются воздухом). Авария с потерей теплоносителя в ЖСГТ исключена за счёт отсутствия давления, наличия страховочного корпуса бланкета, гарнисажа на внутренней стенке, двойных трубопроводов, замораживания солевого расплава на воздухе. В среднесрочной перспективе необходимо выполнить программу экспериментальных исследований в обоснование гибридного термоядерного реактора с расплавно-солевым бланкетом ЖСГТ.

ГИБРИДНЫЕ РЕАКТОРЫ

Ранние разработки гибридных реакторов [1, 2] показали, что для их эффективной работы достаточно плотности нейтронного потока на бланкет $\sim 0,5$ МВт/м². В качестве источника нейтронов рассматривался

токамак с радиусом плазменного шнура 6,4 и 1,5 м, вытянутостью 2, напряжённостью тороидального магнитного поля 6 Тл, током плазмы 3,8 МА, энергией инжектируемых быстрых атомов 500 кэВ, внешней мощностью нагрева плазмы 400 МВт и термоядерной мощностью 600 МВт, генерирующий поток нейтронов $1,0 \text{ МВт/м}^2$. В гетерогенном бланкете с тепловой мощностью 6,9 ГВт предполагалась наработка 5,0 т ^{239}Pu в год [1].

Позже были разработаны компактные токамаки с теплыми и сверхпроводящими магнитными системами [3—7], которые в стационарных условиях инжекции частиц с энергией более 100 кэВ должны генерировать удельные потоки термоядерных нейтронов $\sim 0,3 \text{ МВт/м}^2$. Эти разработки обоснованы компьютерным моделированием с использованием современной базы данных по физике и технологии токамаков.

Однако перспектива реализации таких нейтронных источников зависит от создания эффективных методов неиндуктивного поддержания тока и разработки новых высокоресурсных материалов первой стенки реактора и дивертора (специального устройства, служащего для приёма потоков частиц и излучения с периферии плазменного шнура). Поэтому основой ЖСГТ пока может служить только ИТЭР как экспериментальный гибридный токамак, в котором впервые будут соединены плазмозфизические, электрофизические и ядерные технологии. К работе над его реализацией привлечены крупные многопрофильные промышленные компании, созданы новые производства, материалы, новейшие эффективные технологии, информатика, физические и технологические диагностики. Для моделирования процессов в ИТЭР были использованы программы высокого уровня и возможности суперкомпьютеров. В результате теоретических и экспериментальных исследований физики горячей плазмы в токамаках были определены основные характеристики ИТЭР в индуктивном, «гибридном» и стационарном сценариях.

Предполагается, что в 2030 г. будут достигнуты мощность термоядерных реакций 500 МВт в 400-секундном рабочем цикле и нейтронные потоки от 0,4 до 0,8 МВт/м^2 на бланкете, располагающемся на всей внутренней поверхности (за исключением патрубков и дивертора) тороидальной вакуумной камеры ИТЭР с внешним диаметром $\sim 19,4$, внутренним $\sim 6,5$ и высотой $\sim 11,3$ м. Габариты каждого из 440 модулей бланкета равны $1,40 \times 1,00 \times 0,45$ м. Толщина бланкета может превышать 0,45 м, вплоть до 1 м. При этом температура первой стенки не должна превышать 600 °С.

КОНЦЕПТУАЛЬНОЕ РАЗВИТИЕ ЖИДКОСОЛЕВОЙ ЯДЕРНОЙ ТЕХНОЛОГИИ

Для развития ядерной энергетики деления, чтобы устранить ресурсные ограничения, необходимо полное использование ^{238}U и ^{232}Th , т.е. нужен эффективный бридер (производитель) ядерного топлива. Есть основания [8] полагать, что эту проблему наилучшим образом решают термоядерные источники нейтронов (ТИН) с подкритичным жидкосолевым бланкетом. В данной концепции для производства энергии можно использовать токамак с жидкосолевым бланкетом FLiBe—UF_4 , для эффективного воспроизводства ^{233}U — токамак с жидкосолевым бланкетом FLiNaK—ThF_4 .

Эта концепция сформировалась в развитие жидкосолевых критических и подкритических реакторов [2, 9—12], которые имеют тот же возраст, что и ядерная энергетика в целом. Первый экспериментальный жидкосолевым реактор ARE был пущен в США в 1951 г. В 1965 г. в ORNL (США) был запущен новый экспериментальный реактор MSRE с тепловой мощностью 8 МВт, предназначенный для проверки работоспособности конструкционных материалов и узлов конструкции, отработки технологии топливной композиции и теплоносителя, исследования динамики реакторов такого типа. В четырёхлетней кампании реактор успешно проработал без изменения конструкции на всех основных типах ядерного топлива, поскольку эти реакторы принципиально отличаются от твердотопливных активных зон: в них можно корректировать состав ядерного топлива без остановки реактора и непрерывно удалять продукты деления из него, т.е. замкнуть ядерный топливный цикл в самом реакторе.

Позже концептуальные проекты и технические предложения ЖСР были сделаны в Японии, Франции, СССР (России), КНР, Чехии. Наибольший интерес вызвали жидкосолевые топливные композиции и теплоносители на основе фторидных расплавов вследствие их пожарной безопасности, высокой температуры кипения и, тем самым, низкого давления при рабочих температурах, высокой радиационной стойкости и химической пассивности в воде и воздухе, легкой текучести в сильных магнитных полях.

Итак, для воспроизводства ^{233}U предлагается использовать ТИН с жидкосолевым бланкетом FLiNaK—ThF_4 . В ядерных реакциях изотопа ^{232}Th каждый быстрый нейтрон (~ 14 МэВ) ТИН может образовать примерно 1,7 ядер ^{233}Pa , которые можно непрерывно экстрагировать из зоны ядерных реакций в ходе работы реактора и после их β -распада использовать как ^{233}U в жидкосолевым бланкете FLiBe—UF_4 гибридного термоядерного реактора с удалением из солевой топливной композиции продуктов деления также без останова реактора. Поскольку FLiBe—UF_4 и FLiNaK—ThF_4 содержат литий, при облучении которого нейтронами получается тритий, «зелёная» ядерная энергетика в гибридной схеме токамака и жидкосолевых бланкетов частично будет обеспечиваться и термоядерным топливом.

Расчёты коэффициента размножения, наработки трития и побочных радионуклидов в нейтронном поле ИТЭР проводились для жидкосолевых бланкетов из FLiNaK—ThF_4 и FLiBe—UF_4 по схеме, представленной на рис. 1.

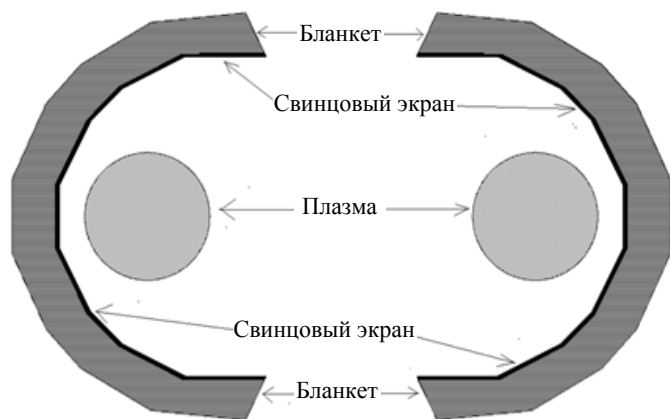


Рис. 1. Расчётная модель делительного бланкета жидкосолевого гибридного токамака

Между источником нейтронов и солевым бланкетом помещался экран из естественного свинца, выполнявший две функции:

- реакция $(n, 2n)$ на свинце даёт дополнительные нейтроны;
- прохождение через свинец смягчает энергетический спектр нейтронов, что существенно уменьшает скорости высокопороговых реакций на фторе и щелочных металлах, продукты которых приводят к нежелательным изменениям редокс-потенциала.

Проводились расчёты с несколькими толщинами экрана, в результате была выбрана толщина свинцового экрана 13 см. Во всех проведённых расчётах с таким экраном на один термоядерный нейтрон приходилось 0,7 реакции $(n, 2n)$ на свинце, т.е. экран вносит существенный вклад в баланс.

Рассматривались две толщины бланкета — 140 и 70 см.

Для каждой конфигурации, кроме расчёта задачи с источником нейтронов, для оценки безопасности проводился расчёт однородной задачи на $k_{эф}$.

Температура расплава соли на входе в бланкет ~ 550 °С, на выходе из бланкета ~ 600 °С. Максимальная температура расплава соли ~ 700 °С. Материал стенки сосуда, содержащего расплав соли, — хастеллой (Cr — 7% мас., Fe — 4% мас., Ni — 72% мас., Mo — 17% мас.), плотность $\sim 8,89$ г/см³, средняя температура ~ 620 °С.

Рассматривались две солевых композиции.

В первой композиции расплава основной солью был FLiBe (57,0% LiF + 42,0% BeF_2 в молярных %). В ней растворялся 1% тетрафторида ^{233}U , плотность соли $\sim 2,3$ г/см³. Нарботка ядерного топлива здесь не рассматривалась, литий брался природный, так что возможна дополнительная наработка трития.

При добавлении 1% тетрафторида урана и толщине бланкета 140 см $k_{эф}$ однородной задачи оказывался равным 0,86, что находится в пределах разумных требований безопасности. При добавлении 1,5% тетрафторида ^{233}U с той же толщиной бланкета система оказывалась надкритичной.

При работе с источником, добавлении к FLiBe 1% тетрафторида ^{233}U и толщине бланкета 140 см один термоядерный нейтрон вызывает более 4 делений урана, т.е. обеспечивается существенная энергетическая добавка.

Следует отметить, что на один термоядерный нейтрон приходятся:

- 6 поглощений на ^6Li , т.е. идёт активная наработка трития;
- 0,10 реакции (n, α) на фторе (все прочие реакции на фторе имеют существенно более низкую скорость); таким образом, присутствует изменение редокс-потенциала системы из-за трансмутации фтора в кислород.

При уменьшении толщины бланкета до 70 см и концентрации тетрафторида ^{233}U 1,0% $k_{эф}$ однородной задачи оказывался равным 0,74, что соответствует вполне безопасному уровню. Однако в этом слу-

чае при работе с источником один термоядерный нейтрон вызывает лишь два деления урана, т.е. существенно снижается производство энергии.

При толщине blankets 70 см и концентрации тетрафторида ^{233}U 1,5% $k_{эф}$ однородной задачи оказался равным 0,93, что меньше 0,95, находящегося на грани внутренне присущей безопасности. При работе с источником один термоядерный нейтрон вызывает 7,2 деления урана, т.е. энергетическая добавка очень велика.

Следует отметить, что на один термоядерный нейтрон приходятся:

- 7,3 поглощений на ^6Li , т.е. идёт активная наработка трития;
- 0,17 реакции (n, α) на фторе.

Во второй композиции, воспроизводящей ядерное топливо, в качестве основной соли использовался FLiNaK (47,0% LiF + 10,6% NaF + 42,4% KF в молярных %). В ней растворялась смесь тетрафторидов ^{233}U и ^{232}Th , причём тетрафторид урана всегда составлял 1% мол. результирующего состава blankets, а суммарное мольное содержание тетрафторидов урана и тория бралось 30 (плотность соли $\sim 4,6$ г/см³), 15 и 10%.

В данном варианте весь литий имел атомный вес 7, т.е. наработка трития не рассматривалась.

Реакция деления на тории не играет большой роли, однако торий — активный поглотитель в том числе медленных нейтронов. Поэтому его содержание сильно влияет на критичность и, следовательно, безопасность системы. Расчёты указанных вариантов на критичность дали:

- 30% тетрафторидов — $k_{эф} = 0,53$, т.е. совершенно безопасный режим;
- 15% тетрафторидов — $k_{эф} = 0,74$. также безопасный режим;
- 10% тетрафторидов — $k_{эф} = 0,90$, что уже ближе к критичности; увеличение критичности по сравнению с предыдущим вариантом без тория вызвано отсутствием поглощения на ^6Li .

Для каждого из этих вариантов были проведены расчёты с источником.

Для варианта с 30% тетрафторидов на один термоядерный нейтрон приходятся:

- 0,63 деления на уране и 0,03 деления на тории, т.е. по существу отсутствует выигрыш по энергии;
- 2,2 захвата нейтронов торием, т.е. наработка топлива идёт существенно быстрее его расхода.

В этом варианте лишь реакции (n, α) на фторе и калии могут влиять на редокс-потенциал солевого расплава. На один термоядерный нейтрон приходятся 0,026 и 0,014 актов этих реакций соответственно. Такая их интенсивность допустима.

Данный вариант может рассматриваться как наработчик топлива, но не как источник энергии.

Для варианта с 15% тетрафторидов на один термоядерный нейтрон приходятся:

- 2,11 деления на уране и 0,04 деления на тории, т.е. уже имеется выигрыш по энергии;
- 3,7 захвата нейтронов торием, т.е. наработка топлива и в этом случае идёт заметно быстрее его расхода;

— 0,056 и 0,043 актов реакции (n, α) на фторе и калии соответственно и 0,12 актов реакции (n, p) на фторе, которая производит долгоживущий аргон, поэтому в этом варианте возникает проблема поддержки редокс-потенциала.

Данный вариант уже может рассматриваться как источник энергии.

Для варианта с 10% тетрафторидов на один термоядерный нейтрон приходятся:

- 4,3 деления на уране и 0,07 деления на тории, выигрыш по энергии получен больше, чем в варианте с FLiBe;
- 6,4 захвата нейтронов торием, т.е. наработка топлива и в этом случае идёт заметно быстрее его расхода;

— 0,12 и 0,11 актов реакции (n, α) на фторе и калии соответственно и 0,34 актов реакции (n, p) на фторе, т.е. существует проблема поддержки редокс-потенциала.

Тем не менее данный вариант пока не может рассматриваться как источник энергии ввиду близости к критичности с учётом имеющихся значительных неопределённостей.

Также были проведены расчёты для blankets, не содержащих тетрафторид ^{233}U . В FLiNaK указанного состава растворялось соответственно 10, 15 и 30% мол. тетрафторида ^{232}Th . Ввиду очевидной глубокой подкритичности данных конфигураций проводились расчёты лишь задач с источником. Скорости

наиболее существенных реакций, отнесённые к одному нейтрону термоядерного источника, приведены в таблице.

Наработка ^{233}U и скорости наиболее существенных реакций, отнесённых к одному нейтрону термоядерного источника при разных молярных концентрациях тетрафторида ^{232}Th и разной толщине бланкета

Вариант	Бланкет, см	Концентрация, %	Наработка ^{233}U	(n, α) на фторе	(n, α) на калии	(n, p) на калии
1	140	10	1,17	0,0112	0,0151	0,0275
2	140	15	1,26	0,0114	0,0127	0,0233
3	140	30	1,39	0,0117	0,0081	0,0150
4	70	10	1,02	0,0109	0,0146	0,0268
5	70	15	1,17	0,0111	0,0124	0,0228
6	70	30	1,36	0,0115	0,0080	0,0148

Таким образом, во всех вариантах имеет место наработка ядерного топлива, но требуется управление редокс-потенциалом системы. Однако следует иметь в виду, что в данной модели не учитывается неизбежное поглощение нейтронов материалами первой стенки, а также проводниками магнитной системы. Поэтому реальная наработка ядерного топлива будет меньше.

Для расчётных оценок использовалась программа MCU5 [13] с библиотекой файлов оцененных ядерных данных ENDF/B-VII [13, 14].

Полученные результаты показывают, что можно создать энергосистему на базе жидкосолевых гибридных токамаков с расширенным воспроизводством топлива, включая тритий. Требуется с учётом имеющихся неопределённостей специальная оптимизация для состава бланкетов, производящих энергию, и для состава бланкетов, производящих ядерное топливо.

ЭЛЕКТРОННАЯ МОДЕЛЬ СОЛЕВЫХ РАСПЛАВОВ

Несмотря на большой опыт использования жидких солей [10, 11, 15], мало внимания уделялось изучению их электронной структуры, не говоря уже о нестехиометричности солей и её влиянии на термодинамические и физико-химические свойства. Напротив, насущной задачей исследователей [16, 17] всегда был подбор окислительно-восстановительных пар катионов, пригодных для поддержания заданного качества и практического подавления коррозионной активности жидкосолевых топливных композиций, например, с помощью окислительно-восстановительной (редокс) реакции



потенциал которой можно представить формулой [17]

$$E(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}) = E_0(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}) + (RT/F) \ln(c_{\text{U}^{4+}}/c_{\text{U}^{3+}}) \quad (2)$$

или преобразовать к виду

$$E(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}) = (RT/F) \ln[\exp(FE_0(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+})/RT) c_{\text{U}^{4+}}/c_{\text{U}^{3+}}]. \quad (3)$$

Здесь $E_0(\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+})$ — стандартный потенциал урановой пары $\text{U}^{4+}/\text{U}^{3+}$; R — газовая постоянная; T — температура, К; F — число Фарадея; $c_{\text{U}^{4+}}$ и $c_{\text{U}^{3+}}$ — концентрация окисляющего (IV) и восстанавливающего (III) катионов примеси урана соответственно. В случае большого числа растворённых примесных элементов в солевом расплаве уравнение (1) следует представить в общем виде

$$\sum_{i=1}^n M_i^{k_i}/n(k_i - l_i) + e^- \rightleftharpoons \sum_{i=1}^n M_i^{l_i}/n(k_i - l_i), \quad (4)$$

где примесные элементы M_i должны так перераспределить свои катионы $M_i^{k_i}$ и $M_i^{l_i}$ по зарядам k_i, l_i , чтобы их концентрация удовлетворяла уравнению

$$E_{\text{рез}} = (RT/F) \ln[\exp(FE_0(M_i^{k_i}/M_i^{l_i})/RT)^{k_i - l_i} \sqrt{c_{M_i^{k_i}}/c_{M_i^{l_i}}}] \quad (5)$$

для каждой окислительно-восстановительной пары $M_i^{k_i}/M_i^{l_i}$. При этом следует учитывать нестехиометричность самого расплава, в котором растворены эти примеси. Его базовые элементы тоже будут участ-

водить в установлении результирующего редокс-потенциала $E_{\text{рез}}$ сложного солевого раствора. Из (5) получаем очевидное отношение концентрации агентов каждой окислительно-восстановительной пары

$$c_{M_i^{k_i}}/c_{M_i^{l_i}} = \exp[(k_i - l_i)F(E_{\text{рез}} - E_0(M_i^{k_i}/M_i^{l_i}))/RT]. \quad (6)$$

Видно, что задача надёжного контроля и тем более управления редокс-потенциалом многокомпонентной жидкой соли переменного состава настолько сложна, что без привлечения электронного потенциала, обобщающего влияние всех примесей на редокс-потенциал расплава и сравнительно легко контролируемого внешним измерителем, этой задачи не решить.

Суть электронной модели состоит в том, что примесные элементы, упорядоченные в «электрохимическом окне» базового солевого расплава последовательностью стандартного потенциала восстановления, образуют разрешённые уровни энергии электронов в запрещённой зоне солевого расплава [18—20]. Тогда вакантный уровень примеси M_i связан с окислителем $M_i^{k_i}$, а занятый уровень — с восстановителем $M_i^{l_i}$. Заселённость примесного уровня зависит от положения уровня Ферми в запрещённой зоне соли и его перемещения при незначительном отклонении компонентного состава соли от стехиометрии [21]. Для иллюстрации на рис. 2 в качестве примера показана модель зонной структуры жидкой соли с растворённой в ней примесью соли урана.

Видно, что в гипотетическом состоянии (см. рис. 2, а) при $T = 0$ К примесная зона, расположенная ниже уровня Ферми, заселена полностью, выше — совершенно свободна в отличие от заселённости примесных зон при высокой температуре (рис. 2, б), которая определяет отношение концентраций окислителя и восстановителя, связанных с примесным уровнем $\varepsilon(M_i^{l_i})$:

$$c_{M_i^{k_i}}/c_{M_i^{l_i}} = \exp[(k_i - l_i)(\varepsilon(M_i^{l_i}) - \varepsilon_F)/k_B T], \quad (7)$$

где k_B — постоянная Больцмана.

Сравнивая формулы (6) и (7), можно видеть, что $E_{\text{рез}}$ равен ε_F/e^- , $E_0(M_i^{k_i}/M_i^{l_i})$ равен $\varepsilon(M_i^{l_i})/e^-$ с точностью до постоянного отрицательного слагаемого. При $T = 1000$ К имеем $k_B T \sim 0,086$ эВ и для урановой пары U^{4+}/U^0 при $\varepsilon(U^0) - \varepsilon_F = 0,1$ эВ из (7) получаем $c_{U^{4+}}/c_{U^0} \sim 104,7$, т.е. когда результирующий редокс-потенциал расплава является на 100 мВ положительнее, чем потенциал восстановления металлического урана, только 1% его четырёхвалентных катионов U^{4+} переходит в нейтральную (металлическую) форму U^0 разбавленного раствора соли урана. Концентрация восстановителей при условии $c_{M_i^{k_i}}/c_{M_i^{l_i}} \ll 1$ определяется простой формулой [22]

$$c_{M_i^{l_i}} = c_{M_i} \exp((k_i - l_i)(\varepsilon_F - \varepsilon(M_i^{l_i}))/k_B T) / [1 + \exp((k_i - l_i)(\varepsilon_F - \varepsilon(M_i^{l_i}))/k_B T)]. \quad (8)$$

В той же мере это относится и к базовому элементу солевого расплава, например, свободных атомов Li^0 нестехиометрического галогенида лития $LiX_{1\pm z}$:

$$c_{Li^0} = c_{Li} \exp((\varepsilon_F - \varepsilon_c)/k_B T) / [1 + \exp((\varepsilon_F - \varepsilon_c)/k_B T)]. \quad (9)$$

Измеряя эту концентрацию в ходе работы реактора, можно определять уровень Ферми и, следовательно, организовать непрерывный мониторинг редокс-потенциала смеси жидких солей топливной композиции бланкета.

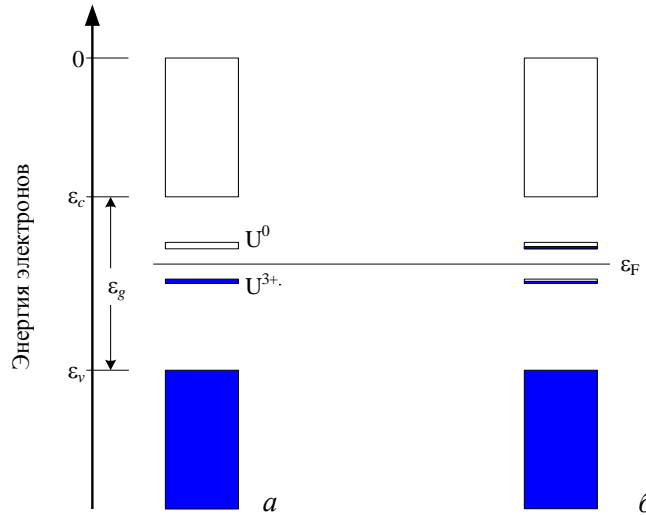


Рис. 2. Зонная модель жидкой соли с растворённой примесью окислительно-восстановительных урановых пар U^{4+}/U^{3+} и U^{3+}/U^0 в гипотетическом состоянии при $T = 0$ (а) и высокой температуре (б): ε_F — уровень Ферми; ε_c — дно зоны проводимости; ε_v — вершина валентной зоны; ε_g — ширина запрещённой зоны

КОНЦЕПЦИЯ ВНЕШНЕГО МОНИТОРИНГА РЕДОКС-ПОТЕНЦИАЛА БЛАНКЕТНОЙ СОЛИ

Для надёжного контроля редокс-потенциала расплава солей следует использовать внешний измеритель, например, электрохимический датчик термодинамической активности лития a_{Li^0} в солевом расплаве, которая связана законом Генри

$$a_{Li^0} = c_{Li^0} / c_{Li_s^0} \quad (10)$$

с уровнем Ферми ϵ_F (редокс-потенциалом) достаточно хорошим приближением (9). Здесь $c_{Li_s^0}$ — концентрация насыщения солевого расплава металлическим литием, которая для всех солей составляет порядка $1\text{--}10 \text{ млн}^{-1}$ как и $c_{M_{Si}^0}$ других металлических примесей M_i .

Датчик для контроля a_{Li^0} можно сделать из твёрдого электролита (с униполярной проводимостью по катиону лития), отделённого от соли тонким слоем жидкого металла, например, свинца [20]. Тогда ЭДС датчика E определяется формулой Нернста

$$E = -(RT/F) \ln a_{Li^0}, \quad (11)$$

если в качестве электрода сравнения использовать чистый жидкий литий.

Для контроля термодинамической активности металлического лития a_{Li^0} в жидкой соли можно использовать твёрдую мембрану $Li^+ - \beta'' - Al_2O_3$, если исключить непосредственный контакт твёрдого электролита и солевого расплава, обеспечивая одновременно эффективный поднос к электролиту нейтральных атомов лития из жидкой соли. Такая техническая задача решается, если отделить электролит от расплавленной соли жидкометаллическим измерительным электродом (например, из свинца или висмута) в тонком слое войлока ($\leq 0,1 \text{ мм}$), коррозионно-стойкого в расплавленных солях. Принципиальная схема такого датчика показана на рис. 3.

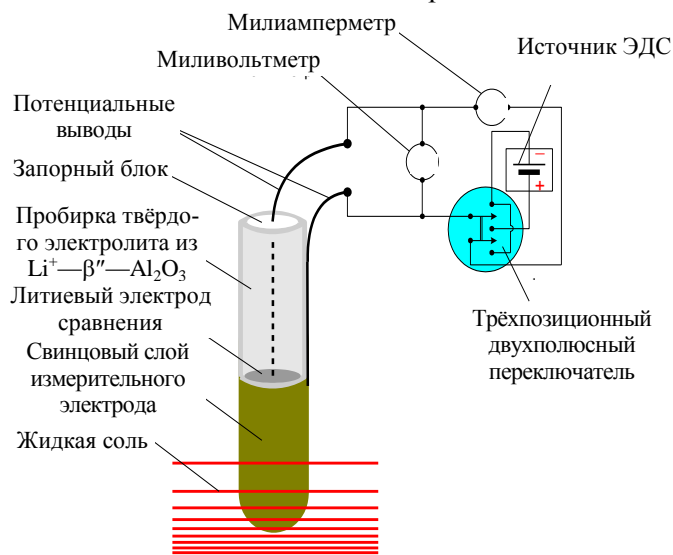


Рис. 3. Принципиальная схема устройства для внешнего мониторинга и управления редокс-потенциалом солевого расплава путём кулонометрического титрования атомов лития (Li^0) в солевой расплав и обратно

Использование жидкометаллического измерительного электрода позволяет создать инструмент для измерения редокс-потенциала расплава солей и эффективное средство его регулирования в электрохимической ячейке



когда измерительный электрод $Pb[Li]$ кинетически организован так, что термодинамическая активность лития в нём совпадает с термодинамической активностью нейтрального лития a_{Li^0} в соли, что легко достигается благодаря высокой диффузионной подвижности атомов лития в жидком металле и солевом расплаве.

Принцип действия датчика основан на измерении милливольтметром ЭДС (11) электрохимической ячейки (12), которая является внешним измерителем для расплава соли и чувствительна только к атомам Li^0 . Для быстрого установления термодинамического равновесия по

литию между жидкой солью и измерительным электродом слой свинца должен быть тонким ($\leq 0,1 \text{ мм}$). Характерное время релаксации τ_n неравновесного состояния измерительного электрода (двукратного изменения концентрации лития) определяется формулой

$$\tau_n \sim h^2 / 2D, \quad (13)$$

где h — толщина измерительного электрода; D — коэффициент диффузии лития в жидком свинце, который при $500\text{ }^\circ\text{C}$ приблизительно равен $10^{-5}\text{ см}^2/\text{с}$. Отсюда для $h = 0,1\text{ мм}$ получаем $\tau_n \sim 5\text{ с}$. Таким образом, если скорость изменения редокс-потенциала не будет превышать $0,4\text{ мВ/с}$, погрешность его измерения с помощью предлагаемого датчика лития будет меньше 5 мВ . Поскольку на практике допустимое время измерения на порядок больше, выбранная толщина слоя жидкого свинца как измерительного электрода вполне удовлетворяет критериям прецизионного мониторинга.

Это позволит определять с высокой точностью разрешённые электронные уровни в запрещённой зоне солевой композиции для металлических примесей как восстановителей (занятые электронами разрешённые состояния) и оптимизировать процесс их извлечения из расплава в контакте с жидкометаллическим носителем примесей, регулируя уровень Ферми методом кулонометрического титрования атомов лития в жидкую соль.

ТЕРМОДИНАМИЧЕСКАЯ КОНЦЕПЦИЯ ОЧИСТКИ БЛАНКЕТНОЙ СОЛИ В ХОДЕ РАБОТЫ РЕАКТОРА

Согласно изложенной электронной модели эффективно извлекать из бланкета только осколки деления ядерного топлива можно, если в запрещённой зоне соли, контактирующей с жидкометаллическим носителем примесей в массообменнике (рис. 4), установить уровень Ферми ϵ_{Fex} между электронными уровнями восстановленных лантаноидов (Ln^0) и актиноидов (An^0), как показано на рис. 5. Тогда термодинамические активности этих нейтральных примесей в солевом расплаве будут удовлетворять соотношениям

$$a_{\text{Ln}_i^0} = c_{\text{Ln}_i} / c_{\text{Ln}_{Si}^0} \leq 1; \tag{14}$$

$$a_{\text{An}_i^0} = c_{\text{An}_i} / c_{\text{An}_{Si}^0} \exp(k_i[\epsilon_{\text{FS}} - \epsilon(\text{An}_i^0)]/k_B T) / [1 + \exp(k_i[\epsilon_{\text{FS}} - \epsilon(\text{An}_i^0)]/k_B T)] \ll 1, \tag{15}$$

даже в случае $c_{\text{An}_i} / c_{\text{An}_{Si}^0} \gg 1$, когда $c_{\text{An}_i} = 0,01$, $c_{\text{An}_{Si}^0} = 10^{-6}$, а $\epsilon(\text{An}_i^0) - \epsilon(\text{Ln}_i^0) = 0,4\text{ эВ}$, из (15) получим $a_{\text{An}_i^0} \sim 10^{-4}$.

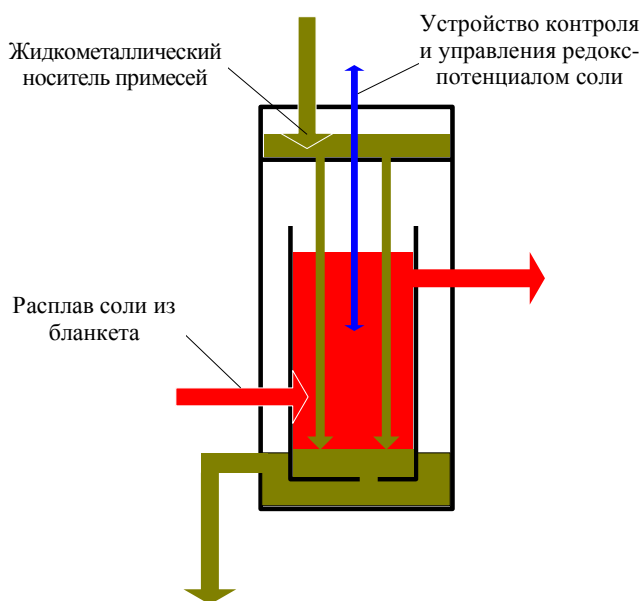


Рис. 4. Схема массообменника соль/жидкий металл

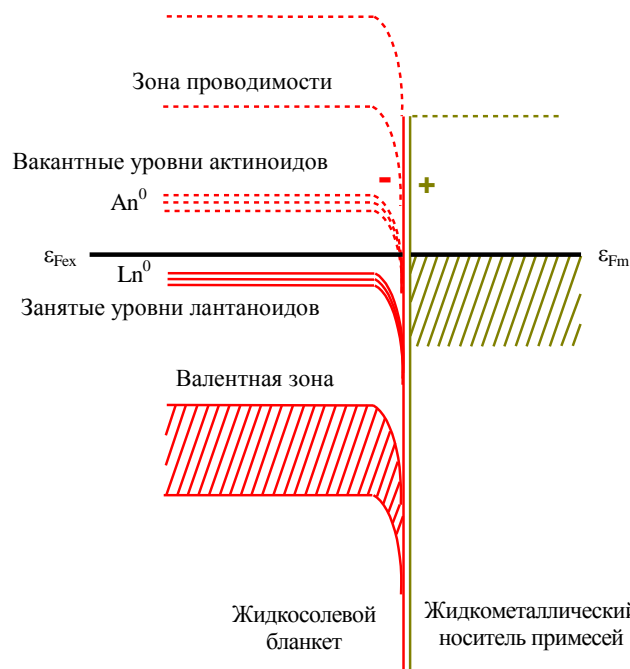


Рис. 5. Электронная модель термодинамического извлечения лантаноидов из жидкосолевого бланкета

Это означает, что в солевом расплаве все лантаноиды будут находиться в виде атомов металлов, а актиноиды — в виде катионов, и при условии $a_{\text{Ln}_i^0} > a_{\text{Ln}_m}$ эта примесь будет выходить из соли в жидкометаллический носитель в массообменнике, показанном на рис. 4.

Если теперь жидкометаллический носитель примесей присоединить к жидкосолевой ловушке, схема которой показана на рис. 6, то, настроив её так, чтобы уровень Ферми был ниже энергетических уровней восстановленных лантаноидов (рис. 7), открывается сток этих металлических примесей из жидкого металла в солевую ловушку, в основном, в виде катионов $\text{Ln}_i^{k_i}$, поскольку термодинамическая активность восстановленных лантаноидов $a_{\text{Ln}_i^0}$ в ловушке будет удовлетворять соотношению

$$a_{\text{Ln}_i^0} = (c_{\text{An}_i}/c_{\text{An}_{Si}^0}) \exp(k_i[\varepsilon_{\text{FS}} - \varepsilon(\text{Ln}_i^0)]/k_B T) / [1 + \exp(k_i[\varepsilon_{\text{FS}} - \varepsilon(\text{Ln}_i^0)]/k_B T)] \ll 1 \quad (16)$$

вместо соотношения (14) для $a_{\text{Ln}_i^0}$ в массообменнике (см. рис. 4).

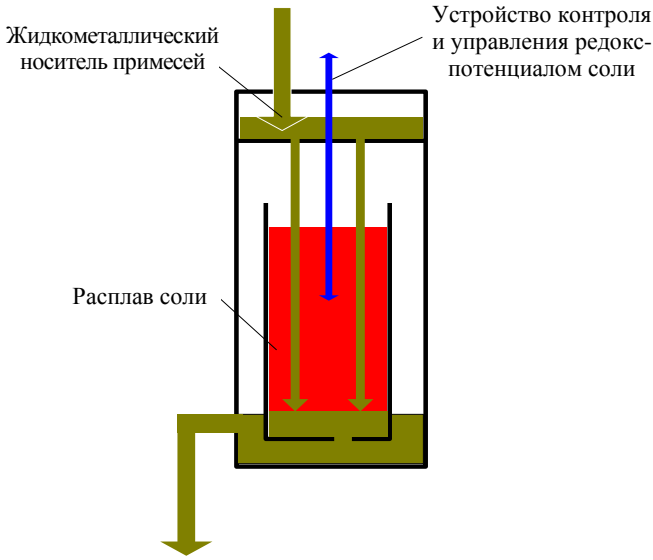


Рис. 6. Схема солевой ловушки

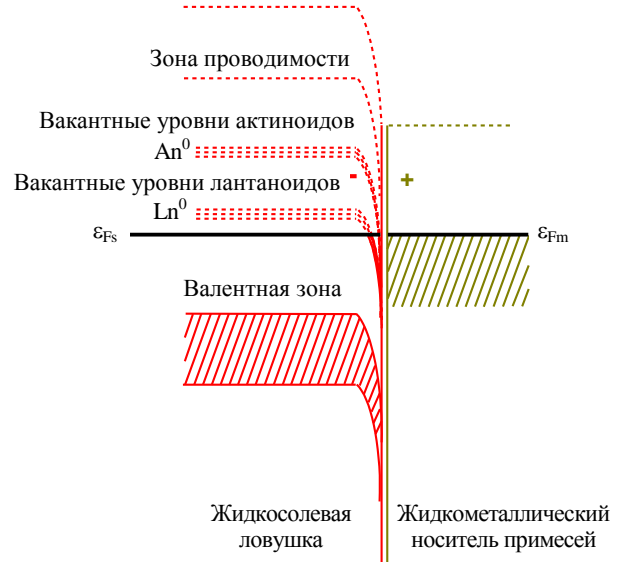


Рис. 7. Электронная модель термодинамического стока лантаноидов из жидкого металла в жидкосолевую ловушку

Очевидно, в этом случае реализуется механизм накопления примесей в ловушке, поскольку соотношение (16) соблюдается и при условии $c_{\text{An}_i}/c_{\text{An}_{Si}^0} \gg 1$. Тогда при эффективном извлечении этих примесей из соли в массообменнике лимитирующим фактором очистки бланкета является расход соли v_s через массообменник. Действительно, изменение концентрации примеси при наличии её источника в бланкете будет определяться кинетическим уравнением

$$\frac{dc_{\text{Ln}_i}}{dt} = -(v_s/V_s)c_{\text{Ln}_i} + j_{\text{Ln}_i}, \quad (17)$$

где V_s — объём соли в бланкете; j_{Ln_i} — удельный источник осколков деления. Это уравнение имеет простое решение

$$c_{\text{Ln}_i} = [1 - \exp(-t/t_o)]t_o j_{\text{Ln}_i}, \quad (18)$$

которое даёт стационарное значение примеси в бланкете на уровне $c_{\text{Ln}_i} = t_o j_{\text{Ln}_i}$. Здесь $t_o = V_s/v_s$ — обратная величина кратности циркуляции по байпасной линии массообменника. Очевидно, чем меньше t_o , т.е. больше расход соли через массообменник, тем ниже уровень остаточной концентрации радионуклидов в солевом бланкете.

ВЫВОДЫ

Современные вызовы обуславливают необходимость разработки новых гибридных ядерных энергосистем, исключающих разрушительные аварии, распространение оружейных материалов и

накопление долгоживущих радиоактивных отходов в условиях ограниченности капитала, экономических кризисов, инфляционных процессов и быстрого истощения природных ресурсов делящегося ядерного топлива ^{233}U .

В основу такой ядерной энергетики положена концепция жидкосолевых гибридных токамаков как подкритических бланкетов с внешним источником термоядерных нейтронов, самообеспечением ядерным топливом и непрерывной очисткой солевого бланкета от радионуклидов.

Жидкосолевые гибридные термоядерные реакторы могут стать экологически чистыми и безопасными источниками энергии, которые удовлетворяют требованиям «зелёной» энергетики.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований. Проект ОФИ-М12-02-12-083.

REFERENCES

1. **Velikhov E.P., Glukhikh V.A., Gur'ev V.V., Kadomtsev B.B., Kolbasov B.N. et al.** Hybrid fusion reactor-tokamak for production of fissile fuel and electricity. — *Atomnaya energiya (Atomic energy)*, 1978, vol. 45, issue 1, pp. 3—9 (in Russian).
2. **Novikov V.M., Prusakov V.N., Blinkin V.L., Chuvilin D.Yu.** Molten-salt blankets of fusion reactor: the benefits and problems. — *VANT. Ser. Termoyadernyi sintez (Problems of Atomic Science and Technology. Ser. Thermonuclear Fusion)*, 1985, issue 4, pp. 19—23 (in Russian).
3. **Azizov E.A., Dokuka V.N., Kovan L.A.** Investigations of VNS for minor actinides transmutation on base of spherical tokamaks with aspect ratio $A = 2$. — In: *Workshop on Blanket and Fusion Reactor Concepts for Transmutation of Minor Actinides*. San Diego, USA, 2001.
4. **Azizov E.A., Arefiev Yu.P., Gladush G.G., Dokuka V.N. et al.** The VNS concept on the base of tokamak JUST-T for transmutation of minor actinides. — *Plasma Devices and Operations*, 2003, vol. 11, p. 279.
5. **Azizov E.A., Arefiev Yu.P., Buzhinskij O.I., Gladush G.G., Dokuka V.N. et al.** Plasma-physical and electrophysical aspects of the compact stationary neutron source on the basis of tokamak. — *Plasma Devices and Operations*, 2005, vol. 13 p. 167.
6. **Azizov E.A., Gladush G.G., Dokuka V.N., Khayrutdinov R.R. et al.** Use of compact-size tokamaks as neutron sources for nuclear power problems solution. — *VANT. Ser. Termoyadernyi sintez (Problems of Atomic Science and Technology. Ser. Thermonuclear Fusion)*, 2009, issue 3, pp. 3—9 (in Russian).
7. **Azizov E.A., Gladush G.G., Lopatkin A.V., Lukasevich I.B.** Hybrid systems based on the tokamak for producing fuel and utilization of spent nuclear fuel. — *Atomnaya energiya (Atomic energy)*, 2011, vol. 110, issue 2, pp. 84—88 (in Russian).
8. **Alekseev P.N., Azizov E.A., Velikhov E.P., Lopatkin V.A., Smirnov V.P., Strebkov Yu.S., Subbotin S.A., Filatov O.G., Tsibul'skiy V.F., Shimkevich A.L.** Use of thermonuclear neutrons for nuclear power. — In coll.: *36th Intern. (Zvenigorod) conf. on plasma physics and CTF*, 9—13 February 2009 (in Russian).
9. **Grimes W.R.** Reactor Chemistry Division Annual Progress Report for Period Ending December 31, 1965. ORNL-3913. Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN.
10. **Powers W.D., Cohenj S.I., Greene N.D.** Physical properties of molten reactor fuels and coolants. — *Nuclear Science and Engineering*, 1963, vol. 71, pp. 200—211.
11. **MSR Program Semiannual Progress Report for Period Ending, Feb. 29, 1968.** ORNL-4254.
12. **Spiewak I., Weinberg A.** Inherent Safety Reactors. — *Ann. Rev. Energy*, 1986, № 10, pp. 431—460.
13. **MCNP** — a General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5. X-5 Monte Carlo Team. Los Alamos National Laboratory Report LA-UR-03-1987, April, 2003.
14. **NJOY99.0 Code System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross Sections from ENDF/B Data.** RSICC Peripheral Shielding Routine Collection. Oak Ridge National Laboratory. Documentation for PSR-480/NJOY99.0 Code Package, March 2000.
15. **Haubenreich P.N., Engel J.R.** Experience with the molten-salt reactor experiment. — *Nucl. Appl. & Technol.*, 1970, vol. 8, pp. 118—136.
16. **Jenkins H.W., Mamantov G.** E.M.F. measurements on the nickel—nickel (II) couple in molten fluorides. — *J. of Electroanal. Chem.*, 1968, vol. 19, pp. 385—389.
17. **Jenkins H.W., Mamantov G., Manning D.L.** Electrode potentials of several RedOx couples in molten fluorides. — *J. Electrochem. Soc.*, 1970, vol. 117, № 2, pp. 183—185.

18. **Alekseev P.N., Dudnikov A.A., Prusakov V.A., Subbotin S.A., Shimkevich A.L., Yakovlev V.V.** Calculation and experimental research of high-flux molten-salt reactor. — In coll.: Proceedings of XIII Russia conf. On physical chemistry and electrochemistry of molten slag and solid electrolytes. Ekaterinburg, UrB RAS, 2004, vol. 1, p. 272 (in Russian).
19. **Alekseev P.N., Shimkevich A.L.** On voltage-sensitive managing the redox-potential of MSR fuel composition. — In: Proc. of 16th Intern. Conf. on Nuclear Engineering (ICONE16). Orlando, Florida, USA, 2008, Paper ICONE16-48176.
20. **Alekseev P.N., Shimkevich A.L.** On fine management of fuel composition in molten salt reactors. — Intern. J. of Nuclear Energy Science and Engineering (IJNESE), 2012, vol. 2, pp. 88—91.
21. **Shimkevich A., Shimkevich I.** On 2D water chemistry. — In: Proc. of Nuclear Plant Chemistry Conf. (NPC-2012), 2012, Paper NPC 176 P1-39.
22. **Kittel Ch., Kroemer H.** Thermal Physics. Ed. by W.H. Freeman. San Francisco, 1980.

AUTHORS

Velikhov E.P. NRC “Kurchatov Institute”, pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia

Azizov E.A. NRC “Kurchatov Institute”, pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia; Azizov_EA@nrcki.ru

Alekseev P.N. NRC “Kurchatov Institute”, pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia; Alekseev_AG@nrcki.ru

Gurevich M.I. NRC “Kurchatov Institute”, pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia; gur.m@mail.ru

Subbotin S.A. NRC “Kurchatov Institute”, pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia; subbotin@dhtp.kiae.ru

Shimkevich A.L. NRC “Kurchatov Institute”, pl. Kurchatova 1, 123182 Moscow, Russia; shall@dhtp.kiae.ru

Received 28 January 2013
Problems of Atomic Science and Technology
Ser. Thermonuclear Fusion, 2013, vol. 36, issue 1, pp. 5—16.