

# Negyedik generációs reaktorokat tartalmazó üzemanyagciklusok vizsgálata

*Halász Máté, Szieberth Máté*

BME Nukleáris Technikai Intézet  
1111 Budapest, Műegyetem rakpart 3.

*A gyorsreaktorok üzembe helyezésével és a zárt üzemanyagciklusra történő áttéréssel kapcsolatos stratégiai döntéseket ún. szcenárió kódok segítik, melyek képesek modellezni a nukleárisüzemanyag-ciklus legfontosabb létesítményeit és a közöttük lévő anyagáramokat. A Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem Nukleáris Technikai Intézetében (BME NTI) kifejlesztettünk egy FITXS elnevezésű, gyors kiégyésszámítási módszert, melynek segítségével 4. generációs gyorsreaktorokra, illetve 3. generációs könnyűvízes reaktorok MOX üzemanyag-kazettáira vonatkozó kiégyéssmodelleket hoztunk létre.*

*A kiégyéssmodelleket zárt üzemanyagciklus-modellekbe integrálva vizsgáltuk a gyorsreaktorok egyensúlyi állapotát. Megvizsgáltunk továbbá egy összetettebb, VVER-440-es reaktorparkról 4. generációs gyorsreaktorokat és MOX üzemanyagú VVER-1200-as reaktorokat tartalmazó atomerőműparkra történő átállást leíró üzemanyagciklust, különböző szcenáriókat elemezve a transzuránkészletek stabilizálása és csökkentése szempontjából. A szimulációk eredményeit és a nuklidok átalakulási láncainak Markov-láncokon alapuló modelljeit felhasználva részletesen vizsgáltuk a másodlagos aktinidák transzmutációját és az üzemanyag-tenyésztést a három 4. generációs gyorsreaktorban.*

## Bevezetés

A Generation IV International Forum (GIF) hat, negyedik generációs reaktortípust választott ki, amelyek a fenntarthatóság, a proliferációvédelem, a gazdaságos üzemeltetés és a fokozott biztonság ígéretével kerülnek kifejlesztésre [1]. A hat reaktortípus közül három gyorsreaktor, amelyek képesek megtermelni az üzemanyagukat  $^{238}\text{U}$ -ból, valamint elhasítani a saját maguk által termelt és a könnyűvízes reaktorok (Light Water Reactor, LWR) kiégyétt üzemanyagából származó másodlagos aktinidákat (MA). Ilyen módon a végleges elhelyezésre szánt hulladék mennyisége a hasadási termékekre és a reprocesszási veszteségekre korlátozható, miközben a jelentősen lecsökkent hulladéktérfogat és bomláshő lehetővé teszi majd a mélygeológiai tárolók gazdaságosabb kihasználását.

A gyorsreaktorok üzembe helyezésével, illetve a zárt üzemanyagciklusra történő áttéréssel kapcsolatos stratégiai döntések elemzésére szolgálnak az ún. üzemanyagciklus-szimulációs, vagy más néven szcenárió kódok, amelyek képesek modellezni a nukleárisüzemanyag-ciklus legfontosabb létesítményeit, valamint a közöttük lévő anyagáramokat. Ahhoz, hogy az üzemanyagciklusokat a hasadóanyag-felhasználás mellett a végleges elhelyezésre szánt nagy aktivitású hulladék összetétele, radiotoxicitása alapján is minősíteni lehessen, az alapvető hasadóanyagokon (urán és plutónium) túl valamennyi jelentős mértékben keletkező aktinidaizotóp mennyiségének pontos számítása szükséges.

A részletes kiégyésszámítások rendkívül nagy időigénye miatt a legtöbb szcenárió kód kiégyéstáblákat, illetve parametrizált hatáskeresztmetszeteket használ a reaktorok kiégyéttüzemanyag-összetételének meghatározására. A BME NTI-ben kifejlesztettünk egy FITXS-nek elnevezett,

gyors kiégyésszámítási módszert, amely az egycsoport-hatáskeresztmetszetek és a  $k_{\text{eff}}$  részletes üzemanyag-összetétel függvényében történő illesztésen alapul [2]. A FITXS módszer segítségével 4. generációs gyorsreaktorokra és 3. generációs könnyűvízes reaktorok MOX üzemanyag-kazettáira vonatkozó kiégyéssmodelleket hoztunk létre. Ezeket részletes üzemanyagciklus-modellekbe integrálva vizsgáltuk a gyorsreaktorok egyensúlyi, zárt üzemanyag-ciklusait, valamint egy összetettebb, könnyűvízes reaktorokról vegyes - 4. generációs gyorsreaktorokból és MOX üzemanyaggal működő termikus reaktorokból álló - atomerőműparkra történő átállást leíró üzemanyagciklust. A FITXS kiégyéssmodellek emellett integrálásra kerültek az MTA Energiatudományi Kutatóközpontban fejlesztett SITON v2.0 szimulációs kódba [3].

A transzmutáció jellemző folyamatainak részletes vizsgálata érdekében kidolgoztuk a nuklidok átalakulási láncainak Markov-láncokon alapuló modelljeit, melyek segítségével véges besugárzási időre érvényes és aszimptotikus üzemanyagciklus-jellemzőket határoztunk meg. Ezen modellek felhasználásával többek között levezethetők a különböző aktinidaizotópok átlagos neutronmérlegei, az átalakulási láncok végén elhasadt atommagok nuklidonkénti megoszlása és a lehetséges átalakulási útvonalak, az ún. transzmutációs trajektóriák valószínűségei. A modellek segítségével részletesen elemeztük a másodlagos aktinidák transzmutációját és a hasadóanyag-tenyésztést a három 4. generációs gyorsreaktorban.

## A FITXS módszer

A reaktorok kiégettüzemanyag-összetételének meghatározása elsődleges fontossággal bír az üzemanyagciklus szimulációja során. Az üzemanyag-összetétel időbeli változását az ún. Bateman-egyenletrendszer írja le, amely az egyes nuklidok magssűrűségeire vonatkozó mérlegegyenletekből álló, elsőrendű differenciálegyenletrendszer:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_j (\sigma_{ji}\phi + f_{ji}\lambda_j)N_j - (\sigma_i^a\phi + \lambda_i)N_i, \quad i = 1, 2, \dots, n, \quad (1)$$

ahol  $N_i$  az  $i$ -edik nuklid magssűrűsége,  $\sigma_{ij}$  az  $i$ -edik nuklidból a  $j$ -edik nuklidba vezető magreakció egycsoport-hatáskeresztmetszete,  $\sigma_i^a$  az  $i$ -edik nuklid abszorpciós egycsoport-hatáskeresztmetszete,  $\phi$  a teljes spektrumra integrált neutronfluxus,  $\lambda_i$  az  $i$ -edik nuklid bomlási állandója és  $f_{ij}$  az  $i$ -edik nuklidból a  $j$ -edik nuklidba vezető bomlási gyakoriság.

Az (1) egyenletrendszer megoldásának nehézségét az adja, hogy mind az egycsoport-hatáskeresztmetszetek, mind az integrált neutronfluxus bonyolult módon függnek az üzemanyag aktuális összetételétől, és pontos meghatározásukhoz részletes zónaszámítások szükségesek. Mivel a zónaszámítások időigénye túlságosan nagy az üzemanyagciklus-szimulációkba történő integrálásukhoz, ezért a scenárió kódokban többféle közelítést alkalmaznak a reaktorok kiégett üzemanyagának meghatározására, mint például előre kiszámított, ún. kiégéstáblákat (kiégés függvényében megadott üzemanyag-összetételeket), kiégés függvényében megadott hatáskeresztmetszet-könyvtárakat, vagy parametrizált hatáskeresztmetszeteket. Az első két közelítés pontatlan eredményt szolgáltathat abban az esetben, ha az üzemanyag izotóp-összetétele jelentősen változik, például egy többszörös visszaforgatást feltételező üzemanyagciklus esetében.

A BME NTI-ben kifejlesztett FITXS eljárás lényege, hogy az egycsoport-hatáskeresztmetszeteket és a  $k_{eff}$ -et a részletes üzemanyag-összetétel (15-20 nuklid magssűrűsége) függvényében parametrizáljuk. A módszert elsőként a GFR2400 gázhűtésű gyorsreaktorra (Gas-cooled Fast Reactor, GFR) alkalmaztuk, melyről egy korábbi cikkünkben számoltunk be [4, 5]. Az illesztett hatáskeresztmetszetek segítségével a FITXS módszeren alapuló kiégésmodellek a kezdeti összetételek széles tartományára képesek rövid számítási idő mellett, nagy pontossággal meghatározni a kiégett üzemanyag összetételét. A következő alfejezetben bemutatásra kerülő kiégésmodellek esetében az alábbi másodfokú polinomot használtuk a függvényillesztéshez:

$$\sigma(N_1, N_2, \dots, N_n) = a_0 + \sum_{j=1}^n a_j N_j + \sum_{j=1}^n \sum_{k=1}^n a_{j,k} N_j N_k, \quad (2)$$

amely egy konstans tag mellett tartalmazza a magssűrűségek első és második hatványait, továbbá kéttagú vegyes szorzataikat.

## Kiégésmodellek

A FITXS módszer segítségével a 4. generációs gázhűtésű gyorsreaktorra, ólomhűtésű gyorsreaktorra (Lead-cooled Fast Reactor, LFR) és nátriumhűtésű gyorsreaktorra

(Sodium-cooled Fast Reactor, SFR) vonatkozó kiégésmodelleket fejlesztettünk ki. A következőkben felsorolt referencia zónákat választottuk ki a kiégésmodellek alapjául:

- a 2400 MW termikus teljesítményű GFR2400 a gázhűtésű gyorsreaktorra;
- az 1500 MW termikus teljesítményű ELSY (European Lead-cooled SYstem) az ólomhűtésű gyorsreaktorra;
- a 3600 MW termikus teljesítményű ESRF (European Sodium-cooled Fast Reactor) a nátriumhűtésű gyorsreaktorra.

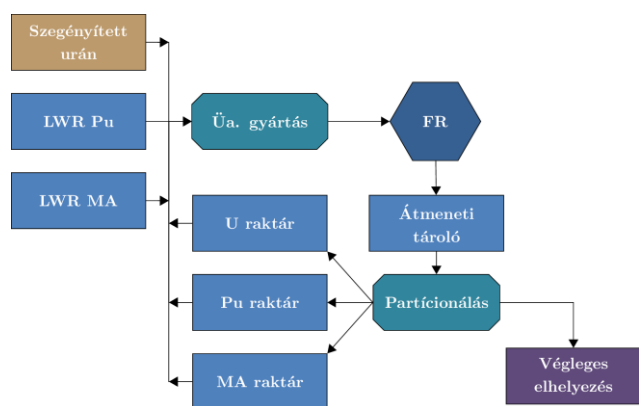
A függvények illesztéséhez szükséges hatáskeresztmetszet-adatbázisokat háromdimenziós, teljes zónamodellek alapján a SCALE 6.0 kódrendszer segítségével hoztuk létre [6]. A szükséges adatpontok nagy száma miatt a hosszú számítási idő csökkentése érdekében kétlépcsős homogenizációt alkalmaztunk, amelynek során a SCALE 6.0 kódrendszer XSDRN modulja segítségével elsőként az elemi cellát, majd az üzemanyag-kazettát homogenizáltuk. A zónaszámításokat a KENO-VI háromdimenziós Monte Carlo-transzportmodul segítségével végeztük a homogén kazettákból és egyéb szerkezeti elemekből álló zónamodellek alapján. A hatáskeresztmetszetek és a  $k_{eff}$  illesztéséhez alkalmazott leíró paramétereket előzetes kiégésszámítások és üzemanyagciklus-szimulációk eredményei alapján választottuk ki, az adatbázisokban szereplő üzemanyag-összetételeket pedig véletlen mintavételezéssel állítottuk elő meghatározott korlátok és átlagos relatív hasadástermék-összetétel figyelembe vételével.

Annak érdekében, hogy a gyorsreaktorokban termelt Pu termikus reaktorokban történő felhasználását vizsgálni tudjuk, kiégésmodelleket fejlesztettünk ki a 3. generációs EPR és VVER-1200 könnyűvízes reaktorok üzemanyag-kazettáira MOX-üzemanyag feltételezésével. A kiégésmodelleket az előzőekben ismertetett módszerhez hasonlóan hoztuk létre, azonban a termikus neutron-spektrum a hasadási termékek részletesebb figyelembe vételét tette szükségessé. Ennek érdekében – előzetes kiégésszámítások eredményeit felhasználva – a kiégés függvényében negyedfokú polinomokat illesztettünk a hasadási termékek relatív összetételére, melyekből a véletlen üzemanyag-összetételekben meghatároztuk a mintavételezett kiégéshez tartozó hasadási termékek összetételét. Mivel termikus neutronspektrumban a neutronok átlagos szabad úthossza jelentősen kisebb, mint gyorsreaktorok esetében, így a MOX üzemanyag-kazetták esetén egy végtelen kazettarácsban történő transzport-számítás segítségével is jó közelítéssel meghatározhatók a kazettában érvényes egycsoport-hatáskeresztmetszetek. A MOX kazettákra vonatkozó hatáskeresztmetszetek adatbázisait ezért reflektív peremfeltételekkel ellátott háromdimenziós kazettamodellek alapján készítettük a KENO-VI modullal, és az üzemanyag-összetételeket véletlen mintavételeztük.

## Egyensúlyi zárt üzemanyagciklus számítások

A 4. generációs gyorsreaktorok kiégésmodelljeit az 1. ábrán látható üzemanyagciklus-modellbe integrálva vizsgáltuk a reaktorok egyensúlyi (azaz felépítésüket tekintve állandó) zárt üzemanyagciklusait [7]. A gyorsreaktorok kezdeti

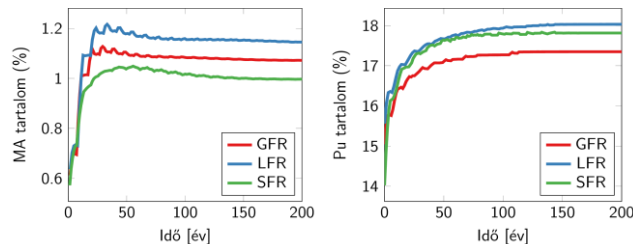
töltetét könnyűvízes reaktorok (Light Water Reactor – LWR) kiegészítő üzemanyagából származó Pu fedezte, melyet 40 MWnap/kg kiegészítő és 5 éves hűtési időnek megfelelő állandó összetétellel vettünk figyelembe a szimulációk során. A gyorsreaktorok a referencia zónakonfigurációnak megfelelő számú zónahányaddal üzemeltek, és minden egyes kampány után egy zónahányad került átrakásra. A reaktorok friss üzemanyaga a kiegészítő üzemanyagból származó, visszaforgatott U, Pu és másodlagos aktinida (MA) volt, a maradék aktinida tömeget szegényített urán, illetve – amennyiben a megfelelő reaktivástartalék beállítása szükségessé tette – kiegészítő LWR üzemanyagból reprocesszált Pu fedezte. A friss üzemanyag hasadóanyag-tartalmának meghatározása iterációval történt a reaktorokban a kampány elején és kampány végén érvényes  $k_{eff}$  alapján. A reaktorok maximális üzemanyag-hasznosítási képességeinek felmérése érdekében a reprocesszálni veszteségeket elhanyagoltuk az egyensúlyi zárt üzemanyagciklus-számítások során.



1. ábra: 4. generációs gyorsreaktor egyensúlyi zárt üzemanyagciklus-modellje

A szimulációkat minden esetben az egyensúlyi állapot (az üzemanyag-összetétel állandósult állapota) beállításáig végeztük. A többszörös visszaforgatás miatt ez több, mint száz évig tartott, ami sokkal hosszabb időtartam, mint nyitott üzemanyagciklus esetében, azonban a zóna átlagos Pu és MA tartalma és az olyan üzemanyagciklus-paraméterek, mint a tenyésztési tényező, jellemzően a reaktorok tervezett üzemideje alatt megközelítették egyensúlyi értéküket. A 2. ábra eredményei alátámasztják, hogy a három vizsgált gyorsreaktor képes a zárt üzemanyagciklusban történő üzemelésre, mivel a zónák MA tartalma 1% körüli egyensúlyi értéket vesz fel, és a termikus reaktorokkal ellentétben nem jelentkezik folyamatos Cm felhalmozódás. A 2. ábrán szintén látható, hogy a kampány eleji Pu tartalom mindhárom gyorsreaktor esetén megnő, ami elsősorban a hasadóképes  $^{241}\text{Pu}$  átmeneti tárolás alatt történő bomlásának és a  $^{240}\text{Pu}$  neutronbefogással történő felhalmozódásának köszönhető. Az irodalomban fellelhető eredményekkel összhangban mindhárom zóna öntenyésztő az egyensúlyban [8], azaz nem igényel az LWR-ek kiegészítő üzemanyagából származó, külső Pu betáplálást. Kizárólag U és Pu visszaforgatást feltételező szimulációink emellett megmutatták, hogy a három reaktor csak akkor öntenyésztő, ha a kiegészítő üzemanyagukból származó MA is visszaforgatásra kerül a friss üzemanyagukba. Az egyensúlyi MA tartalom feletti külső betáplálás esetén a gyorsreaktorok képesek elhasítani

a többlet MA mennyiséget, valamint a megnövekedett egyensúlyi MA tartalom növeli a tenyésztés mértékét, ami a kezdeti Pu tartalom csökkenésében mutatkozik meg. Ez utóbbi jelenséget korábban megfigyelték már a nátriumhűtésű gyorsreaktorra vonatkozóan.

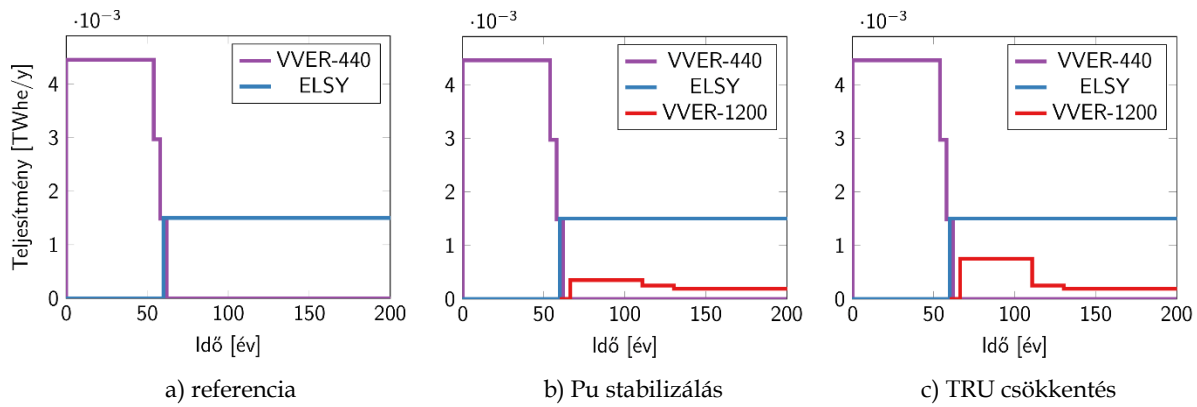


2. ábra: A reaktorok kampány eleji átlagos MA (balra) és Pu (jobbra) tartalmának időbeli alakulása zárt üzemanyag-ciklusban

## Átmeneti scenáriók elemzése

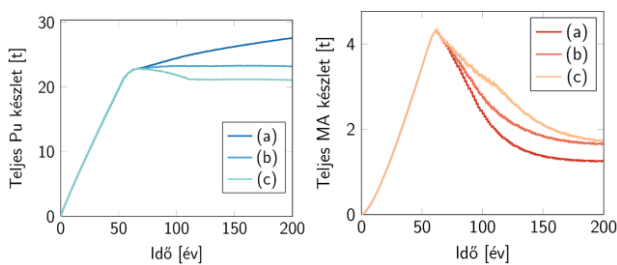
Az egyensúlyi zárt üzemanyagciklus-számítások eredményei azt mutatták, hogy a három vizsgált gyorsreaktor külső MA betáplálás hatására tenyésztővé válik, ami Pu felhalmozódását eredményezi. A FITXS módszer összetett scenáriókban történő alkalmazhatóságának demonstrálása, valamint a gyorsreaktorokban termelt Pu termikus reaktorokban történő hasznosításának vizsgálata érdekében a kiegészítő modelleket egy hagyományos könnyűvízes VVER-440 típusú reaktorokról 4. generációs gyorsreaktorokat és MOX üzemanyagú VVER-1200 típusú reaktorokat tartalmazó, vegyes atomerőműparkra történő átállást leíró üzemanyagciklus-modellbe integráltuk [9]. A gyors- és termikus reaktorok teljesítményarányának változtatásával különböző scenáriókat vizsgáltunk a transzuránkészletek felhasználása, azon belül a Pu- és MA-készletek stabilizálása és csökkentése szempontjából. A VVER-1200-as zónában található urán-oxid (UOX) kazettákat a szimulációkban nem modelleztük, ezért a teljes transzuránkészlet a VVER-440-es reaktorokban, a gyorsreaktorban és a VVER-1200 MOX kazettákban, illetve a kiegészítő üzemanyagban lévő transzurántartalomnak felel meg. Az átmeneti scenárió elemzések közül jelen cikkben az ólomhűtésű gyorsreaktorra vonatkozó eredményeket mutatjuk be.

Az elemzésekhez referencia esetként vizsgáltuk azt a scenáriót, amikor a VVER-1200-as MOX kazetták teljesítményaránya nulla volt, azaz nem történt Pu-visszaforgatás az ELSY kiegészítő üzemanyagából termikus reaktorokba (lásd. 3. ábra a) esete). Az eredmények szerint három VVER-440 reaktor 60 éves üzemelése elegendő plutóniumot termelt az ELSY zóna kezdeti töltetéhez. A 4. ábrán látható, hogy az ELSY képes elhasítani a kiegészítő, VVER-440-es üzemanyagból származó másodlagos aktinidákat, és az egyensúlyi szakaszban a teljes MA-készletet az ELSY zóna MA tartalma határozza meg. A teljes transzuránkészlet egyidejű csökkentése azonban ebben az esetben nem lehetséges, mivel az ELSY friss üzemanyagába történő MA betáplálás miatt megnövekedett mértékű tenyésztés hatására Pu felhalmozódás következik be.



3. ábra: A reaktorpark teljesítményeinek időbeli alakulása

A következő vizsgált esetben a MOX üzemanyag-kazetták időben változó teljesítményarányának megválasztásával értük el a Pu-készletek stabilizálását (lásd. 3. ábra b) esete). A kiegészítő, VVER-440 üzemanyagból származó másodlagos aktinidák mennyiségének csökkenése folytán ehhez az átmeneti időszakban (a 60. évtől a 110. évig) egy magasabb, majd az egyensúlyi szakaszban egy alacsonyabb termikus reaktor teljesítményarányra volt szükség. A 4. ábrán látható teljes Pu és MA készletek alátámasztják, hogy a MA transzmutáció és a teljes Pu készlet stabilizálása is lehetséges a vegyes atomerőműpark segítségével, valamint a második esethez képest magasabb köztes MOX teljesítményarány segítségével (lásd. 3. ábra c) esete) a Pu és MA készletek egyidejűleg történő csökkentése is megvalósítható. Végeredményben tehát kijelenthető, hogy a gyors- és termikus reaktorok teljesítményarányának megfelelő megválasztásával a teljes atomerőmű-rendszer Pu- és MA-mérlege beállítható.



4. ábra: Teljes Pu-leltár (balra) és teljes MA-leltár (jobbra) időbeli alakulása a vizsgált szcenáriókban

## Transzmutáció vizsgálata Markov-láncok segítségével

A transzmutáció és a tenyésztés során lezajló folyamatok mélyebb megértése motiválta a nuklidok átalakulási láncait leíró sztochasztikus modellek kidolgozását [10]. Mivel mind a magreakciók, mind a radioaktív bomlás természetükből adódóan sztochasztikus folyamatok, valamint az atommagok átalakulási valószínűségei mindig csak a jelen állapottól függenek – ami a valószínűségszámításban ismert Markov-tulajdonságnak felel meg –, ezért az átalakulási láncok matematikai leírására ún. diszkrét és folytonos idejű Markov-lánccokat használtunk. Amennyiben az atommagok állapotát csak az átalakulások (magreakciók és radioaktív bomlások) számának függvényében jellemezzük, úgy az átalakulási láncok egy elemi modelljét kapjuk, mely egy diszkrét idejű Markov-lánc. A diszkrét idejű modellben az

átalakulási valószínűségeket egy ún. átmenetivalószínűség-mátrix írja le, melynek  $(i, j)$  eleme adja meg annak a valószínűségét, hogy az  $i$  típusú atommag  $n$  lépésben  $j$  típusú atommaggá alakul át. Az  $n$ -lépéses  $\mathbf{P}^{(n)}$  átmenetivalószínűség-mátrixok felírhatók az egy lépéses  $\mathbf{P}$  átmenetmátrix segítségével, melynek elemei a relatív reakciósebességekkel egyeznek meg:

$$\mathbf{P}^{(n)} = \mathbf{P}^n, \quad [\mathbf{P}]_{ij} = \frac{\sigma_{ij}\phi + f_{ij}\lambda_i}{\sigma_i^a\phi + \lambda_i}. \quad (3)$$

A valóságban azonban az átalakulások nem diszkrét lépésekben történnek, hanem az atommagok élettartamai exponenciális eloszlású valószínűségi változók, ezért a folyamat időbeli alakulásának figyelembe vételére alkalmas modell egy folytonos idejű Markov-lánc. Ennek keretein belül szintén definiálható a  $t$  időre vonatkozó átmeneti valószínűség mátrixa, amely a mikroszkopikus reakciósebességek által meghatározott, egységnyi időre eső átmeneti valószínűségeket tartalmazó, ún.  $\mathbf{Q}$ -mátrix segítségével fejezhető ki:

$$\mathbf{P}(t) = e^{\mathbf{Q}t}, \quad [\mathbf{Q}]_{ij} = \sigma_{ij}\phi + f_{ij}\lambda_i, \quad [\mathbf{Q}]_{ii} = -\sigma_i^a\phi - \lambda_i. \quad (4)$$

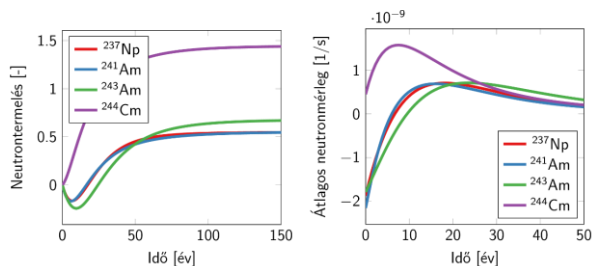
A folytonos idejű Markov-lánc modelljéből várható érték értelemben levezethetőek mind a Bateman-egyenletek, mind pedig a Bateman-egyenletek általános megoldása. Ez utóbbi kifejezhető a lehetséges átalakulási láncok, az ún. transzmutációs trajektóriák valószínűségeivel, amelyek ezáltal szemléletes fizikai jelentést adnak a Bateman-egyenletek megoldásának. A Markov-tulajdonság kihasználása lehetővé teszi emellett olyan, véges besugárzási időre vagy aszimptotikusan érvényes üzemanyagciklus-jellemzők meghatározását, mint a különböző aktinidaizotópok neutronmérlege, a hasadásig eltelt átlagos idő és az elhasadt atommagok nuklidonkénti megoszlása. A következő fejezetekben az említett mennyiségek segítségével vizsgáljuk a másodlagos-aktinida-transzmutáció és a hasadóanyag-tenyésztés folyamatát a három vizsgált, 4. generációs gyorsreaktorban [11].

## Másodlagosaktinida-transzmutáció vizsgálata

A könnyűvízes reaktorokban legnagyobb mennyiségben termelt másodlagos aktinidák a neptúnium, amerícium és kúrium, azon belül is a  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$  és  $^{244}\text{Cm}$ . A plutóniumizotópok mellett a kiegészítő üzemanyag hosszú távú radiotoxicitásához történő legjelentősebb hozzá-

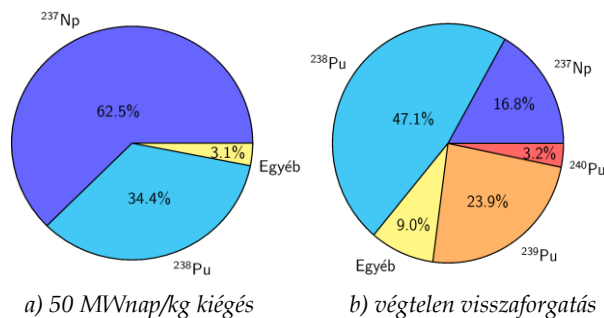
járulást az  $^{241}\text{Am}$  és  $^{243}\text{Am}$  adják, ezért ezek transzmutációja kiemelt fontosságú. A  $^{237}\text{Np}$  transzmutációját egyrészt fertilis jellege (melyet a következő alfejzet eredményei támasztanak alá), másrészt az emberi táplálékláncban érvényes nagy mobilitása motiválja. A kúrium transzmutációja elsősorban az Am többszörös visszaforgatása esetén kívánatos, amely magasabb rendszámú Cm izotópok felépüléséhez vezethet.

A felsorolt másodlagos aktinidák mikroszkopikus reaktivitásértékessége mind termikus, mind gyorsneutron-spektrumban negatív (kivéve a  $^{244}\text{Cm}$ , amely pozitív értékkel rendelkezik gyorsreaktorokban). Ez azt jelenti, hogy kezdetben a  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$  és  $^{243}\text{Am}$  termikus és gyorsreaktorokban egyaránt mind abszorberként viselkednek. A Markov-lánckon alapuló modellek segítségével azonban meghatározható az egyes nuklidok aszimptotikus, azaz zárt üzemanyagciklusban, többszörös visszaforgatás esetén érvényes átlagos neutrontermelése, amely gyorsreaktorokban minden MA-izotóp esetén pozitív (lásd. 5. ábra). A pozitív neutrontermelés csak úgy lehetséges, ha a teljes besugárzási idő alatt a kezdeti atomok összessége előbb-utóbb integrális értelemben véve hasadóanyaggá alakul. Az 5. ábra szintén mutatja, hogy a  $^{244}\text{Cm}$  várható neutronmérlege (időegységre vett neutrontermelése) a GFR2400 reaktorban végig pozitív, a  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$  és  $^{243}\text{Am}$  esetében pedig 5-10 éves besugárzási idő alatt valóban negatívról pozitívrá változik (hasonlóan a másik két gyorsreaktor-típusban is).



5. ábra: MA-izotópok időfüggő neutrontermelése (GFR2400)

A nuklidok átalakulási láncainak folytonos idejű Markov-lánc modellje lehetővé teszi azon folyamatok azonosítását, melyek során a MA-izotópok hasadási termékekké alakulnak, valamint a folyamatok jellemző időskáláit. A 6. ábrán látható a  $^{237}\text{Np}$ -ből kiinduló átalakulási láncok végén elhasadt atommagok nuklidonkénti megoszlása a GFR2400 reaktorban 50 MWnap/kg kiegészig, valamint aszimptotikusan, végtelen visszaforgatás esetén. A várakozásoknak megfelelően kezdetben a legtöbb hasadás közvetlenül, vagy egy neutronbefogást, illetve bomlást követően történik meg. Hosszabb besugárzási idők esetén a több átalakulást magukban foglaló átalakulási útvonalak hozzájárulása meghatározó, de nem elhanyagolható a közvetlen hasadás hatása sem. A többszörös visszatáplálást feltételező, zárt üzemanyagciklusban a  $^{237}\text{Np}$  és  $^{241}\text{Am}$  az átalakulási lánc végén elsősorban  $^{238}\text{Pu}$  és  $^{239}\text{Pu}$ -ként hasad el, míg az  $^{243}\text{Am}$  és  $^{244}\text{Cm}$  hasadása legnagyobb arányban  $^{244}\text{Cm}$  és  $^{245}\text{Cm}$ -ként, valamint magasabb tömegszámú Pu izotópokon ( $^{240}\text{Pu}$  és  $^{241}\text{Pu}$ ) keresztül történik.



6. ábra:  $^{237}\text{Np}$ -ből kiinduló átalakulási láncok végén elhasadt atommagok nuklidonkénti megoszlása 50 MWnap/kg kiegészig, illetve végtelen visszaforgatás esetén (GFR2400)

### Hasadóanyag-tenyésztés vizsgálata

A reaktorok hasadóanyag-tenyésztési képességeinek jellemzésére használt mennyiség a konverziós tényező (Conversion Ratio, CR), amely definíció szerint a megtermelt ( $m_p$ ) és elfogyasztott ( $m_D$ ) hasadóanyag mennyiségének arányával egyezik meg:

$$CR = \frac{\text{megtermelt hasadóanyag tömege}}{\text{elfogyasztott hasadóanyag tömege}} = \frac{m_p}{m_D} \quad (5)$$

Amennyiben a konverziós tényező értéke meghaladja az 1-et, úgy a reaktor nettó hasadóanyagot termel, és a konverziós tényezőt tenyésztési tényezőnek nevezzük (Breeding Ratio, BR). A nettó hasadóanyag-termelés jellemzésére szokták még használni a tenyésztési nyereséget (Breeding Gain, BG), mely közvetlenül számolható a tenyésztési tényezőből:

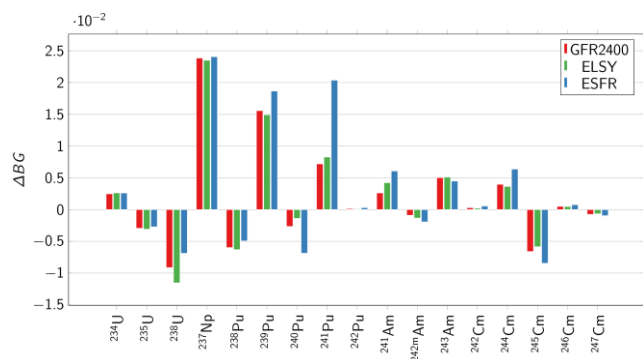
$$BG = \frac{m_p - m_D}{m_D} = BR - 1. \quad (6)$$

Az egyes aktinidák eltérő reaktivitásértékessége folytán a számlálóban és a nevezőben megfelelő súlyozással szokták figyelembe venni a különböző nuklidokat. A zárt üzemanyagciklusra elvégzett számítások eredményei azt mutatták, hogy a három vizsgált, 4. generációs gyorsreaktor öntenyésztő az egyensúlyban az enyhén pozitív tenyésztési nyereség és a  $^{241}\text{Pu}$  átmeneti tárolás alatti bomlása együttes hatásának köszönhetően. A tenyésztési nyereséghez történő legnagyobb abszolút értékű hozzájárulással az  $^{238}\text{U}$  és  $^{239}\text{Pu}$  izotópok rendelkeznek, amelyek mellett a  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  és  $^{241}\text{Am}$  ad még jelentősebb hozzájárulást. A MA-izotópok hozzájárulása jellemzően egy nagyságrenddel kisebb, mint a domináns aktinidák hozzájárulása. A három gyorsreaktorra számolt hozzájárulások nagyon hasonlóak, valamivel nagyobb eltéréssel a  $^{241}\text{Pu}$  és  $^{241}\text{Am}$  esetében, mivel a különböző kampányhosszak különböző átmeneti tárolást eredményeznek, ami jelentősen befolyásolja a  $^{241}\text{Pu}$  kampányok közötti bomlását.

Az elvégzett üzemanyagciklus-számítások eredményei azt is megmutatták, hogy az egyébként öntenyésztő gyorsreaktorokba történő, kiégett LWR üzemanyagból származó MA-k betáplálásának hatására megnő a tenyésztés mértéke. A megnövekedett tenyésztési nyereség magyarázata érdekében a három gyorsreaktorban összehasonlítottuk a tenyésztési nyereséghez történő

hozzájárulásokat abban az esetben, ha a friss üzemanyag MA tartalma 1% körüli (az egyensúlyi érték), illetve ha állandó 3%. Az előbbi referencia esetként használva érzékenységi tényezőkkel, valamint a Markov-láncokon alapuló transzmutációs trajektória hozzájárulások kiszámításával meghatároztuk a tenyésztési nyereség megváltozásának legjelentősebb okait.

Mind a transzmutációs trajektória hozzájárulások, mind a 7. ábrán látható nuklidonkénti hozzájárulások azt mutatták, hogy a MA-betáplálás hatására megnövekedett tenyésztési nyereséget elsősorban a  $^{238}\text{Pu}$   $^{237}\text{Np}$ -ből neutronbefogással és az azt követő  $\beta$ -bomlással történő keletkezése, valamint a friss üzemanyag lecsökkent  $^{239}\text{Pu}$  és  $^{241}\text{Pu}$  tartalma okozza. A növekedést némileg ellensúlyozza a  $^{239}\text{Pu}$  és  $^{241}\text{Pu}$  lecsökkent keletkezése  $^{238}\text{U}$ -ból, illetve  $^{240}\text{Pu}$ -ból, továbbá a megnövekedett  $^{238}\text{Pu}$  és  $^{245}\text{Cm}$  tartalom. A GFR2400 esetében az állandó egycsoport-hatáskeresztmetszeteket feltételező érzékenységi tényezők segítségével becsült tenyésztési nyereség-változás a referencia esetben érvényes  $B_{G,ref}=0,0562$ -höz képest  $\Delta BG=+0,0242$ , míg a tényleges változás  $\Delta BG=+0,0302$ . A két érték viszonylag kis eltérése alátámasztja, hogy a megnövekedett mértékű tenyésztést elsősorban az üzemanyag-összetétel megváltozásának hatására a reakciósebességekben fellépő változás okozza, a neutronspektrum megnövekedett MA-tartalom hatására történő keményedése a teljes változás kevesebb, mint egynegyedéért felelős.



7. ábra: A tenyésztési nyereség megváltozása az egyensúlyi MA visszaforgatást és a friss üzemanyag állandó 3% MA tartalmát feltételező esetek között aktinidaizotóponként

## Összefoglalás

A gyorsreaktorok üzembe helyezésével, illetve a zárt üzemanyagciklusra történő áttéréssel kapcsolatos stratégiai döntések elemzésére szolgálnak az ún. üzemanyagciklus-szenárió kódok, amelyek képesek modellezni a nukleárisüzemanyag-ciklus legfontosabb létesítményeit, valamint a közöttük lévő anyagáramokat. A BME NTI-ben kifejlesztettünk egy FITXS-nek elnevezett, gyors kiégszámítási módszert, melynek segítségével 4. generációs gyorsreaktorokra és 3. generációs könnyűvízes reaktorok MOX üzemanyag-kazettáira vonatkozó kiégsmodelleket hoztunk létre.

## Köszönetnyilvánítás

A kutatás a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Alap által támogatott VKSZ\_14-1-2015-0021 azonosító számú Nemzeti Nukleáris Kutatási Program keretében zajlott.

A kiégsmodelleket részletes üzemanyagciklus-modellekbe integrálva vizsgáltuk a gyorsreaktorok egyensúlyi zárt üzemanyagciklusait különböző visszaforgatási stratégiák mellett. A számítások eredményei szerint a három vizsgált gyorsreaktor a teljes kiégett üzemanyag visszaforgatása mellett az egyensúlyban öntenyésztő, azaz nem igényel külső Pu-betáplálást, és körülbelül 1% egyensúlyi MA-tartalom alakul ki a reaktorok üzemanyagában. Az egyensúlyi MA-tartalomnál nagyobb mértékű betáplálás esetén a reaktorok képesek elhasítani a könnyűvízes reaktorok kiégett üzemanyagából származó másodlagos aktinidákat, valamint az üzemanyag megnövekedett MA-tartalma növeli a tenyésztés mértékét.

Az egyensúlyi zárt üzemanyagciklusok mellett vizsgáltunk egy összetettebb, VVER-440-es reaktorparkról 4. generációs gyorsreaktorokat és MOX üzemanyagú VVER-1200-as reaktorokat tartalmazó atomerőműparkra történő átállást leíró üzemanyagciklust, különböző szenáriókat elemezve a transzuránkészletek stabilizálása és csökkentése szempontjából. Megmutattuk, hogy a három vizsgált gyorsreaktor képes elhasítani azon másodlagos aktinidákat, melyek a könnyűvízes reaktorok kiégett üzemanyagában halmozódtak fel a gyorsreaktorok kezdeti töltetéhez szükséges plutónium megtermelése során. A gyors- és a termikus reaktorok teljesítményarányának megfelelő megválasztásával a teljes atomerőmű-rendszer Pu- és MA-mérlege beállítható, ezáltal egyidejűleg megvalósítható a MA-készletek csökkentése és a Pu-készletek stabilizálása, valamint a teljes transzuránkészlet csökkentése is.

A másodlagos aktinidák transzmutációjának és a tenyésztés folyamatainak részletes vizsgálata motiválta a nuklidátalakulási láncok sztochasztikus modelljeinek megalkotását diszkrét idejű és folytonos idejű Markov-láncok segítségével. A modellek az egyedi atomok átalakulási és bomlási láncait sztochasztikus folyamatokként írják le, és segítségével zárt alakban megadhatók különböző időfüggő és aszimptotikus üzemanyagciklus-jellemzők, valamint levezethetők az időfüggő transzmutációs trajektória-valószínűségek, amelyek lehetővé teszik a másodlagos aktinidák transzmutációja és a tenyésztés jellemző folyamatainak azonosítását.

Az üzemanyagciklus-számítások eredményeit és az aktinidák átalakulási láncainak Markov-láncokon alapuló modelljeit felhasználva vizsgáltuk a másodlagosaktinidatranszmutációt és az üzemanyagtenyésztést a három, 4. generációs gyorsreaktorban. A vizsgálatok eredményei megmutatták, hogy a másodlagos aktinidák betáplálásának hatására megnövekedett tenyésztési nyereséget elsősorban a  $^{238}\text{Pu}$  izotóp  $^{237}\text{Np}$ -ből történő keletkezése, valamint a friss üzemanyag lecsökkent  $^{239}\text{Pu}$  és  $^{241}\text{Pu}$  tartalma okozza, amelyeket némileg ellensúlyoz a  $^{239}\text{Pu}$  és  $^{241}\text{Pu}$  lecsökkent keletkezése  $^{238}\text{U}$ -ból, illetve  $^{240}\text{Pu}$ -ból, valamint a megnövekedett  $^{238}\text{Pu}$  és  $^{245}\text{Cm}$  tartalom.

## Irodalomjegyzék

- [1] US DoE Nuclear Energy Research Advisory Committee and the Generation IV International Forum, „A technology roadmap for Generation IV nuclear energy systems”, GIF-002-00 (2002).
- [2] M. Halász, M. Szieberth, S. Fehér, „FITXS: A fast and flexible burn-up scheme based on the fitting of one-group cross-sections”. *Annals of Nuclear Energy* 104 (2017), pp. 267-281.
- [3] Á. Brolly, M. Halász, M. Szieberth, L. Nagy, S. Fehér, “Physical model of the nuclear fuel cycle simulation code SITON”, *Annals of Nuclear Energy* 99 (2017), pp. 471-483.
- [4] Z. Perkó, S. Pelloni, et al., „Core neutronics characterization of the GFR2400 Gas Cooled Fast Reactor”, *Progress in Nuclear Energy* 83 (2015), pp. 460-481.
- [5] M. Szieberth, M. Halász, S. Fehér, T. Reiss, „Gázhűtésű gyorsreaktor üzemanyag-ciklusának modellezése”. *Nukleon* 7.2 (2014), P. 160, pp. 1-6.
- [6] US Oak Ridge National Laboratory, „SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation”, ORNL/TM-2005/39 Version 6 Vols. I-III (2009).
- [7] M. Halász, Á. Brolly, M. Szieberth, S. Fehér, “Fuel cycle studies of Generation IV reactors with the SITON v2.0 code and the FITXS burn-up scheme”, in *Proc. of Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Next Generation Nuclear Systems for Sustainable Development (FR17)*, Yekaterinburg, Russia, 26-29 June 2017
- [8] J. Krepel, S. Pelloni, and K. Mikityuk, „Comparison of open and closed U-Pu equilibrium fuel cycles for Generation-IV fast reactors with the EQL3D procedure”. *Nuclear Engineering and Design* 250 (2012), pp. 392-402.
- [9] M. Halász, M. Szieberth, “Investigation of fuel cycles containing Generation IV reactors and VVER-1200 reactors”, *Kerntechnik* 83.4 (2018), pp. 319-324
- [10] M. Halász, M. Szieberth, “Markov chain models of nuclear transmutation: Part I – Theory”, *Annals of Nuclear Energy* 121 (2018), pp. 429-445
- [11] M. Halász, M. Szieberth, “Markov chain models of nuclear transmutation: Part II – Application on Generation IV fast reactors”, *Annals of Nuclear Energy* (2020), (benyújtás alatt)
- [12] M. Halász, „Development of a fast burn-up method and investigation of transmutation in Generation IV fast reactors”, PhD értekezés, 2018