

A REAKTORMÉRGEZÉS KIKÜSZÖBÖLÉSÉNEK LEHETŐSÉGEI SÓOLVADÉKOS REAKTOROKBAN

Balla Áron, Márkus Ferenc
BME Fizikai Intézet

Az olvadt-sós reaktor a negyedik generációs reaktor-család egyik legfontosabb tagja. Nukleáris reaktorok körében kuriózumnak számít alapvető felépítésbeli különlegessége miatt. Ezekben a reaktorokban az üzemanyag és a hűtőközeg azonos fázist alkot. Ez a fázis egy alkálifém- és alkáliföldfém-fluoridokból álló folyékony sókeverék, amelyben a hasadóanyag-fluoridok vannak oldva [1].

A koncepció legelőnyösebb tulajdonsága az, hogy üzem közben a sóból a hasadási termékek eltávolíthatók, az üzemanyag pedig folyamatosan pótolható. E funkciónak köszönhetően a hasadóanyag-tartalom alacsonyan tartható a reaktorban, és az izotóp-összetétel homogén [1–4]. Mivel a reprocessálás üzem közben zajlik, így egyidejűleg kevesebb veszélyes anyagot kell kezelni, nem úgy, mint szilárd üzemanyagoknál, ahol a kazetták ki és behelyezésénél egyszerre kényszerülnek nagy mennyiségű radioaktív anyagot mozgatni. Az üzemanyag folyamatos betáplálásából az is következik, hogy üzemanyagcserére nem kell leállítani a reaktort [1].

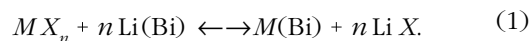
A tervek szerint a helybeli reprocessáló üzemekben a só kezelése több fázisból áll majd. Első lépésként a reaktorból érkező sót héliummal buborékolatják át, deszorbeálva ezzel a gáz halmazállapotú hasadási termékeket, a kripton és a xenont, valamint pár nemesfémet [5]. Ez a folyamat a primer körben, a reaktor közvetlen közelében zajlik, míg ezzel párhuzamosan a só egy része a reaktort elhagyva egy hosszabb idejű kezelésre kerül, amely egy, az erőművel összekapcsolt vegyi üzemben játszódik le. A továbbiakban e sókezelési eljárás részfolyamatait és a reaktor egyes üzemi paramétereire gyakorolt hatását szeretnénk bemutatni.

A sókezelési eljárás részfolyamatai

Olvadt só / folyékonyfém-extrakció

A vegyi üzemben lejátszódó folyamatok elsődleges célja a különböző, nem gáz halmazállapotú hasadási termékek eltávolítása a sóból. Ezek elsősorban a ritkaföldfémek, lantanoidák közé tartozó elemek. Első lépésként a sót egy folyékony fémrel, bizmuttal érintkeztetik, amely előnyös tulajdonságai miatt alkalmas erre a feladatra. Olvadáspontja alacsony (271 °C), a folyamat által érintett hőmérsékleti tartományban (500–700 °C) elhanyagolhatóan kicsi a gőznyomása, a lantanoidák, a tórium, a protaktínium, valamint a só egyik legfőbb alkotóeleme, a lítium kiválóan oldódik benne, viszont a sóval egyáltalán nem elegyíthető [5].

A redukív extrakció a fémfázis és a só között a következő egyenlettel írható le:



Tehát a folyamat során egy fémhalid a bizmutfázisban lévő lítiummal reagál, amelynek eredményeképpen a fém a bizmutfázisba kerül, miközben a lítium a halogénatommal alkot vegyületet. A folyamat szelektivitása meglehetősen gyenge, mivel a lantanoidák és aktinoidák szeparációs faktoraik nagyon közel állnak egymáshoz. Emiatt a sóban lévő fémek közül a protaktínium, a tórium, az urán, a transzurán elemek és a lantanoidák egyidejűleg hagyják el a sóolvadékat [5].

Elektrokémiai szeparáció

A folyékonyfém-extrakciót követően a második lépés a kiextrahált fémek egymástól való szétválasztása. Ennek keretében a legfontosabb cél a lantanoidák elválasztása a sótól, és a visszamaradó aktinoidák reaktorba történő táplálása. A folyamat szelektivitását elsősorban a folyamatban résztvevő elektrodok változtatható redox potenciálja adja. A szeparáció két lépésben valósulhat meg. Első lépésként az anódon – megfelelő feszültség hatására – a fémkeverékből a megfelelő fém(ek) egy LiF-CaF₂ összetételű sókeverékben oldatba mennek, majd a következő egység(ek)ben a különböző feszültségű katódokon kiválnak [5].

Fluorinálás

E szeparációs művelet lényege, hogy a reaktorból érkező elhasznált sót fluorgázzal intenzíven átbuborékolatják. Ennek eredményeként a fluorral könnyen illó vegyületeket képző sókomponensek gáz formájában távoznak a sóolvadékból. Ezek között a legfontosabb az urán, amelynek a sókeverékben jelenlévő formája, az urán-tetrafluorid – a következő egyenlet szerint – a fluor gázzal illékony urán-hexafluoridot alkot [6]:



Ezzel szemben – például – a plutónium PuF₄ állapotban marad, így nem hagyja el a sókeveréket. A teljes sókezelési folyamatot az 1. ábrán foglalhatjuk össze [7].

A folyamatábrán látható protaktínium-bontó egység feladata szintén fontos. A reaktorban a ²³²Th izotóp neutronbefogással először ²³³Th-má alakul, amely viszonylag rövid felezési idővel (22 perc),

negatív β -bomlással ^{233}Pa -má alakul. A ^{233}Pa izotóp a reaktor üzemeltetése során folyamatosan keletkezik, reaktorból való eltávolítása két okból is fontos: egyrészt mert nagyon erős reaktorméreg, továbbá pedig mert értékes hasadó izotóppá bomlik. E folyamat felezési ideje hosszabb (körülbelül 27 nap), és a ^{233}Pa szintén negatív β -bomlással alakul át ^{233}U izotóppá, amelynek felezési ideje $1,592 \cdot 10^5$ év. A reaktorban ezen izotópok közül csak az ^{233}U az, ami elhasad, ezért a sókezelési folyamatban szükség van egy egységre, ahol a protaktíniumot megfelelő körülmények között lehet tárolni addig, amíg az teljes egészében átalakul uránná. Ez – a felezési időből kiindulva – elég hosszadalmas folyamat, mivel a felezési idő körülbelül tízszeresét kell megvárni ahhoz, hogy jó közelítéssel tiszta ^{233}U -t kapjunk. Többek között ennek is köszönhető, hogy a sónak e bonyolultabb vegyi üzembeli kezelése sokkal időigényesebb folyamat, mint a reaktor melletti buborékoltatás.

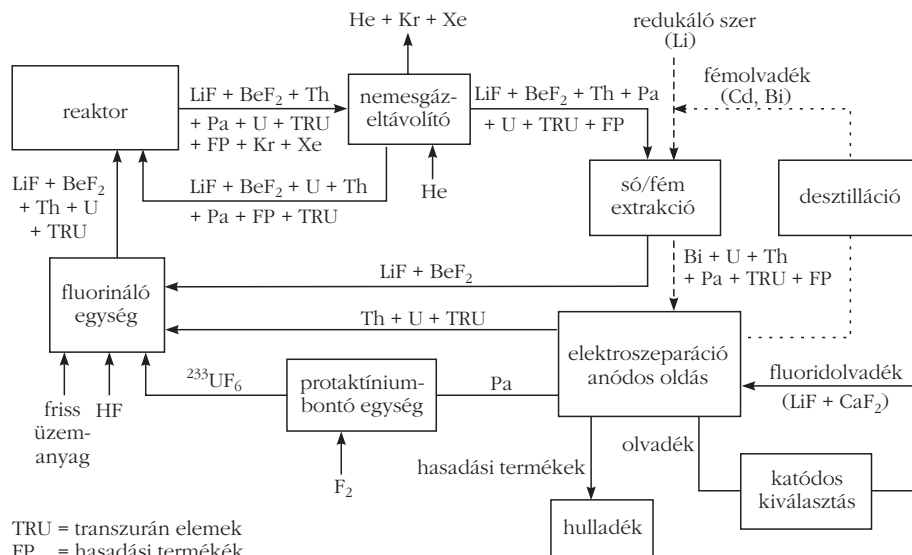
A sókezelés hatása a reaktorra

A sókezelés milyenségének, hatékonyságának jelentős befolyása van a sóolvadékos reaktorra. Ezek közül igen jelentős a kezelés idejének hatása a reaktor konverziós faktorára. A C konverziós faktort tórium alapú sóolvadékos reaktorokra a következőképpen definiálhatjuk [9]:

$$C = \frac{r_{c, 232\text{Th}} - r_{c, 232\text{Pa}}}{r_{f, 233\text{U}} + r_{c, 233\text{U}}}$$

ahol r_c az adott izotóp neutronbefogási (capture rate), r_f pedig hasadási rátája (fission rate). Az 1-nél nagyobb konverziós faktor azt jelenti, hogy a reaktorban nagyobb mennyiségben keletkezik ^{233}U izotóp, mint amennyit a reaktor elhasít. 1-nél kisebb érték mellett a reaktorból „fogy” a hasadó izotóp, ezért azt folyamatosan pótolni kell. Ha hosszú ideig stabilan működő reaktort akarunk, akkor legalább 1-es értékű konverziós faktort kell biztosítani. Mivel a legtöbb hasadási termék és a protaktínium is reaktorméreg, tehát neutronokat könnyen befogó izotópok, eltávolítási sebességeik hatása a konverziós faktorra jelentős [9].

Az 1. táblázatból látható, hogy a só kezelése minél hosszabb ideig tart, annál kisebb lesz a konverziós faktor. Lassú kezelés esetén a reaktorban lévő só csak lassan cserélődik, nagy mennyiségben feldúsulnak a



1. ábra. A sókezelés teljes folyamata.

hasadási termékek és rengeteg neutronot emésztenek fel, így a tórium \rightarrow urán folyamat lassabb lesz, mint az urán hasadásának folyamata [9].

A konverziós faktorra szintén jelentős hatással van, hogy a sókezelés mely elemcsoportok extrakciójára terjed ki. Amennyiben a transzurán elemek és a protaktínium is eltávolításra kerül, úgy a faktor értéke a legmagasabb (a konkrét érték az időtől is függ, amint azt az imént is láttuk), amennyiben csak a transzurán elemeket extrahálják, akkor az érték alacsonyabb, ha csak a protaktíniumot extrahálják, tovább csökken, végül a legalacsonyabb a konverziós ráta abban az esetben, ha a sót csak buborékoltatásnak vetik alá.

Összességében tehát megállapítható, hogy a konverziós faktor akkor lesz magas, ha a sókezelés gyors és minél több elem extrakciójára terjed ki, hiszen ebben az esetben a neutronelnyelő hasadási termékek, transzurán elemek és a protaktínium is rövid időt töltenek a reaktorban, ezért a neutronfluxust csak kis mértékben csökkentik a reaktorban.

Buborékoltatás hatása a reaktorra

A só kezelésének másik, szintén fontos része a gáz halmazállapotú hasadási termékek eltávolítása a sóból. A kiindulási hasadóanyagtól függően nagy számú hasadási termékéről beszélhetünk, amelyek alapvetően

A sókezelési idő hatása a konverziós faktorra	
sókezelési idő	konverziós faktor
rövid (10 nap)	1,062
közepesen rövid (3 hónap)	1,024
közepesen hosszú (6 hónap)	1,000
hosszú (1 év)	0,986
nagyon hosszú (2 év)	0,961
csak buborékoltatás	0,562

2. táblázat

A ¹³⁵Te bomlási sora

nuklid	¹³⁵ Te	¹³⁵ I	¹³⁵ Xe	¹³⁵ Cs	¹³⁵ Ba
$T_{(1/2)}$	30 s	6,6 óra	9,1 óra	$2,6 \cdot 10^6$ év	stabil

két fő csoportba sorolhatók. Az egyik csoport körülbelül 80–110 tömegszámig terjed, ide tartozik az ötödik periódus jó néhány eleme, valamint a kripton, mint nemesgáz. A másik nagy csoport pedig a körülbelül 125–155 tömegszám közötti különböző izotópokat tartalmazza. Ide tartozik egy viszonylag hosszabb életű radionuklid, a ¹³⁷Cs, a lantanoidák körülbelül fele, és két rendkívül fontos reaktorméreg: a ¹⁴⁹Sm és a ¹³⁵Xe is. A nemesgáz-eltávolító rendszer elsődleges célja ez utóbbi izotóp eltávolítása a sóból.

A ¹³⁵Xe meglehetősen kis stabilitású, felezési ideje 9 óra 6 perc. A reaktorokban a teljes xenonmennyiség csak viszonylag kis része, mindössze pár százaléka származik közvetlenül az urán hasadásából, nagyobb hányada a ¹³⁵Te bomlásának eredménye, amely izotóp a hasadásból származik. A ¹³⁵Te felezési ideje mindössze 30 másodperc, és negatív β -bomlással ¹³⁵I keletkezik belőle, amely 6,6 órás felezési idővel bomlik ¹³⁵Xe-ná. A teljes bomlási sort a 2. táblázat mutatja.

A ¹³⁵Xe izotóp neutronbefogási hatáskeresztmetszete $\sim 2,6 \cdot 10^6$ barn, ami elképesztően magas érték. Összehasonlításképpen a ²³⁵U izotóp hatáskeresztmetszete 550 barn. A neutronelnyelés eredményeként ¹³⁶Xe izotóp keletkezik, ami stabil. A reaktor üzemelése közben a ¹³⁵Xe folyamatosan termelődik a hasadásból származó ¹³⁵Te-ből. Ezzel párhuzamosan a ¹³⁵Xe mennyiségét csökkentő neutronelnyelés is zajlik. A két folyamat közötti egyensúly nagyjából 40–50 órányi egyenletes reaktorüzemelés után áll be. Ilyenkor a ¹³⁵Xe koncentrációja a reaktorban a teljesítménnyel arányos értéken állandósul. Amennyiben a reaktor teljesítményét meg akarjuk növelni, akkor a neutronok száma a reaktorban megnő, így a ¹³⁵Xe izotóp mennyiségét csökkentő neutronbefogás mértéke is megnő, ugyanakkor viszont a megnövelt teljesítmény miatt a ¹³⁵I termelés is nő a reaktorban. Ezen folyamatok eredőjeként a neutronfluxus növelését követő néhány órában a ¹³⁵Xe koncentráció csökken, minimumot ér el, majd az azt követő 40–50 órában növekszik, végül beáll a megnövelt teljesítményhez tartozó magasabb koncentrációértéken. Ha a teljesítményt csökkentjük, akkor viszont az egész folyamat éppen fordítva játszódik le, a koncentráció eleinte növekszik, majd csökken, végül beáll egy alacsonyabb értéken. Amennyiben a reaktort leállítjuk, a neutronfluxus sok nagyságrenddel lecsökken, így tulajdonképpen a ¹³⁵Xe-t fogyasztó folyamat jó közelítésben elhanyagolhatóvá válik az azt termelő folyamattal szemben, így ilyen esetben a ¹³⁵Xe koncentrációja a reaktorban átmenetileg drasztikusan megnő. Amikor a reaktort újraindítják, a felhalmozódott ¹³⁵Xe eleinte nagy mennyiségű neutront nyel el, éppen

ezért a reaktor „nehezen indul”. A fentiek miatt a ma használt vízhűtésű reaktorokat leállítás után csak akkor lehet újraindítani, ha a ¹³⁵Xe koncentráció már megfelelően alacsony. A xenon reaktorból való eltávolítása a mai reaktoroknál nem lehetséges [8]. Ezzel szemben számít elég nagy előnynek az olvadt-sós reaktorok azon tulajdonsága, hogy lehetővé teszik a két gázalmazállapotú hasadási termék, a kripton és a xenon üzem közbeni eltávolítását a reaktorból. Ennek során a reaktorból távozó sókeveréket héliummal történő intenzív átbuborékolatásnak vetik alá. Annak érdekében, hogy a sóban a ¹³⁵Xe koncentrációját alacsonyan tartsák, egységnyi idő alatt a só viszonylag nagy térfogatát szükséges a buborékolató egységen átmozgatni, továbbá mivel a sóban a xenon oldhatósága a hőmérséklet növelésével csökken, érdemes a reaktor közvetlen közelében a deszorpciót végrehajtani. Ezen okokból a sóolvadékos reaktor héliumos átbuborékolató egységét a reaktor és a hőcserélő közé tervezik. Ezen belül a reaktorból távozó sőt egy szivattyú hajtja, amely mellett közvetlenül, nagy mennyiségben héliumbuborékokat juttatnak a sóba. Ezek után a gázbuborékok a folyadékkal együtt mozognak, miközben a nemesgázok a sőt elhagyva a gázfázisba koncentrálnak. A folyamat egészen addig tart, amíg a két fázis el nem válik egymástól. Bár e buborékolatási technika rendkívül perspektivikusnak ígérkezik, egyértelmű azonban, hogy a buborékok mérete, geometriája nagyban befolyásolhatja a xenon eltávolításának hatásfokát [5, 6].

Mindent egybevetve mondhatjuk, hogy a sóolvadékos reaktorok igen sok kedvező tulajdonsággal, lehetőséggel rendelkeznek. Ezek a reaktorok megfelelő formában tényleg képesek lehetnek a negyedik generációs reaktorok céljainak elérésére. Azonban az is látható, hogy a koncepció kezdeti kísérleti stádiumban jár. Következésképp ezzel a reaktorkoncepcióval kapcsolatban rengeteg kutatási, fejlesztési munkára van még szükség.

Irodalom

1. Király M.: Lehetséges megoldások az atomenergia-ipar jelenlegi problémáira, I.–II. rész. *Fizikai Szemle* 63 (2013) 121, 162.
2. M. W. Rosenthal, P. R. Kasten, R. B. Briggs: *Molten Salt Reactors – History, Status, and Potential*. Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 1969.
3. M. W. Rosenthal: An Account of Oak Ridge National Laboratory's Thirteen Nuclear Reactors. *ORNL/TM* (2009) 181.
4. D. Leblanc: *Molten Salt Reactors: A new vision for a Generation IV concept*. Department of Physics Carleton University, Ottawa, Ontario, Canada
5. F. N. Peebles: *Removal of Xenon-135 from circulating fuel salt of the MSBR by mass trans to helium bubbles*. Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 1968.
6. J. H. Shaffer: *Preparation and handling of salt mixtures for the Molten Salt Reactor Experiment Oak Ridge National Laboratory*. U.S. Atomic Energy Commission, 1971.
7. J. Uhlir: Chemistry and technology of Molten Salt Reactors – history and perspectives. *Journal of Nuclear Materials* 360/1 (2007) 6–11.
8. DOE Fundamentals Handbook: *Nuclear Physics and Reactor Theory*. Vol. 2. U.S. Department of Energy. January 1993. 35–42.
9. E. Merle-Lucotte, et al.: Influence of the reprocessing on Molten Salt Reactor behaviour. *Nuclear Technology* 163/3 (2008) 358–365.