



Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem  
Nukleáris Technikai Intézet

Gyors kiégyezés számítási módszer fejlesztése és  
transzmutáció vizsgálata 4. generációs  
gyorsreaktorokban

Ph.D. tézisfüzet

Halász Máté Gergely

Témavezető: Dr. Szieberth Máté

Budapest  
2018

## A kutatások előzménye

A 4. generációs gyorsreaktorok a jelenlegi elképzelések szerint zárt üzemanyagciklusban fognak üzemelni annak köszönhetően, hogy képesek megtermelni az üzemanyagukat  $^{238}\text{U}$ -ból vagy  $^{232}\text{Th}$ -ból és elhasítani a saját maguk, illetve a termikus reaktorok által termelt másodlagos aktinidákat [US DoE, 2002]. A végleges elhelyezésre szánt hulladék keletkezése ilyen módon a hasadási termékekre és reprocesszási veszteségekre korlátozható, miközben a lecsökkent hulladéktérfogat és bomláshő a mélygeológiai tárolók gazdaságosabb felhasználását teszi lehetővé [Salvatores, 2011]. 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 [McCarthy, 2009]. A többszöri visszatáplálást feltételező üzemanyagciklus-számítások legnagyobb kihívásai közé tartozik, hogy a különböző stratégiák elemzése nagyszámú izotóp követését igényli az üzemanyagciklusban, továbbá a kiégett üzemanyag összetételének pontos meghatározását.

A részletes kiégésszámítások rendkívül nagy időigénye miatt a legtöbb szcenárió kód kiégéstáblákat, illetve parametrizált hatás keresztmetszeteket használ a reaktorok kiégettüzemanyag-összetételének meghatározására [Boucher, 2010]. A kiégéstáblák és a kiégés függvényében megadott hatás keresztmetszet-könyvtárak pontossága megkérdőjelezhető azon esetekben, amikor az üzemanyag izotóp-összetétele nagymértékben változik, például plutónium és másodlagos aktinidák többszöri visszatáplálása esetén. Vidal és társai [Vidal, 2006] ezért illesztési paraméterként bevezették az egyes plutónium izotópok, illetve az  $^{241}\text{Am}$  mennyiségét a CESAR5.3 kódban, ami egyhatod részére csökkentette a referencia számításoktól történő eltéréseket. Leniau és társai [Leniau, 2015] egy neurális háló alapú modellt implementáltak a CLASS kódban a MOX üzemanyag plutónium-összetétele változásának leírására, melynek bemeneti paraméterei a  $^{238-242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{235}\text{U}$  és  $^{238}\text{U}$  izotópok arányai, illetve a besugárzási idő, amelyek felhasznál-

lásával kevesebb, mint 3% átlagos eltérést tapasztaltak a CLASS kód és az MCNP alapú MURE kód segítségével végzett kiéegésszámítások eredményei között.

## Célkitűzések

A doktori kutatás első célkitűzése egy olyan új, közelítő kiéegésszámítási módszer kifejlesztése volt, amely rövid számítási idő mellett, a kezdeti összetételek széles tartományára képes meghatározni a kiégett üzemanyag összetételét. Az egycsoport-hatáskeresztmetszetek részletes üzemanyag-összetétel (15-20 nuklid magssűrűsége) függvényében történő illesztését alapul véve kifejlesztettem egy FITXS elnevezésű, gyors kiéegésszámítási sémát, melynek segítségével a 4. generációs gázhűtésű, ólomhűtésű és nátriumhűtésű gyorsreaktoroknak, illetve 3. generációs termikus reaktorok MOX üzemanyag-kazettáinak kiéegésszámításait hoztam létre.

A kutatás második célkitűzése a másodlagosaktinida-transzmutáció és a hasadóanyag-tenyésztés vizsgálata volt 4. generációs gyorsreaktorokban. Ennek érdekében elemeztem a reaktorok egyensúlyi zárt üzemanyagciklusait, valamint összetettebb, könnyűvízes reaktorokról 4. generációs gyorsreaktorokat és MOX üzemanyaggal működő 3. generációs termikus reaktorokat tartalmazó, vegyes atomerőműparkra történő átállást jellemző üzemanyagciklusokat, melynek során különböző scenáriókat vizsgáltam a plutónium- és másodlagosaktinida-készletek stabilizálása és csökkentése szempontjából.

Az üzemanyagciklus-vizsgálatok eredményei azt mutatták, hogy a másodlagosaktinida-betáplálás növeli a tenyésztés mértékét a három vizsgált 4. generációs gyorsreaktorban, amely jelenséget korábban Coquelet és társai [Coquelet, 2015], valamint Meyer és társai [Meyer, 2013] megfigyeltek a nátriumhűtésű gyorsreaktorban. A doktori kutatás harmadik célkitűzése a másodlagosaktinida-transzmutáció és a hasadóanyag-tenyésztés folyamatának részletes vizsgálata volt, valamint a másodlagosaktinida-betáplálás hatására megnövekedett tenyésztési tényező okainak felderítése.

## Vizsgálati módszerek

A reaktorok és üzemanyag-kazetták háromdimenziós modelljeit a SCALE 6.0 kódrendszer KENO-VI Monte Carlo transzportmoduljában hoztam létre [ORNL, 2009]. A modelleket nagyszámú különböző üzemanyag-összetélt tartalmazó hatáskeresztmetszet-adatbázisok létrehozására használtam fel, melyek a hatáskeresztmetszetek és a  $k_{\text{eff}}$  magsűrűségek függvényében, legkisebb négyzetek módszerével történő másodfokú polinomillesztésének alapjául szolgáltak. A kiégésmodelleket a SCALE 6.0 kódrendszerrel számolt, valamint az illesztett hatáskeresztmetszeteken alapuló kiégésszámításokkal verifikáltam.

A 4. generációs gyorsreaktorok kiégésmodelljeit egyensúlyi zárt üzemanyagciklus-modellekbe és átmeneti scenáriókba integráltam a JOSSETE (ObJect OriEnted Simulation Program for SeEnario STudiEs) szimulációs program segítségével, melyet a vizsgálatokhoz hoztam létre C++ programozási nyelven. A különböző létesítményeket és modelleket osztályokként implementáltam, melyekből örökléssel származtattam a létesítmények altípusait és az egyes számítási módszereket. A program a létesítményeket és a közöttük lévő anyagáramokat diszkrét módon írja le, valamint diszkrét események szerint növeli a szimulációs időt, mely események az egyes létesítmények működését reprezentálják.

A másodlagosaktinida-transzmutáció és a hasadóanyag-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, segítségükkel zárt alakban megadtam különböző időfüggő és aszimptotikus üzemanyagciklus-jellemzőket, valamint levezettem az időfüggő transzmutációs trajektória valószínűségeket, melyek lehetővé teszik a másodlagosaktinida-transzmutáció és a tenyésztés meghatározó folyamatainak azonosítását.

Végezetül, az üzemanyagciklus-vizsgálatok eredményeit és az aktinida átalakulási láncok Markov-láncokon alapuló modelljeit felhasználva vizsgál-

tam a másodlagosaktinida-transzmutációt a három 4. generációs gyorsreaktorban, beleértve a másodlagosaktinida-betáplálás tenyésztésre gyakorolt hatását. Az egyes nuklidok és transzmutációs trajektóriák tenyésztési nyereséghez történő hozzájárulását érzékenységi tényezőkkel, valamint a Markovláncokon alapuló modellek segítségével határoztam meg a megnövekedett mértékű tenyésztés okainak felderítése végett.

## Új tudományos eredmények

1. Kifejlesztettem egy FITXS elnevezésű, az egycsoport-hatáskeresztmetszetek és a  $k_{\text{eff}}$  részletes üzemanyag-összetétel függvényében történő illesztésen alapuló, gyors kiégésszámítási módszert. A FITXS módszer segítségével a kezdeti összetételek széles tartományára alkalmazható kiégésmodelleket hoztam létre a 4. generációs gázhűtésű, ólomhűtésű és nátriumhűtésű gyorsreaktorokra, illetve a 3. generációs EPR és VVER-1200 reaktorok MOX üzemanyag-kazettáira vonatkozóan. A kiégésmodelleket a SCALE 6.0 kódrendszer segítségével verifikáltam [P1, P2, P3].

2. Az általam kifejlesztett JOSSETE üzemanyagciklus-szimulációs program segítségével a három 4. generációs gyorsreaktor zárt üzemanyagciklusának kezdeti állapotból egyensúlyi állapotba történő teljes átmenetének szimulációjával igazoltam a FITXS módszer alkalmazhatóságát üzemanyagciklus-szimulációkban és szcenárió elemzésekben, miközben a  $k_{\text{eff}}$  illesztése lehetővé tette a reaktorok friss üzemanyagai hasadóanyag-tartalmának iterációval történő meghatározását. Az eredmények szerint a három gyorsreaktor az enyhén pozitív tenyésztési nyereség és a  $^{241}\text{Pu}$  átmeneti tárolás közben történő bomlása együttes hatásának eredményeképpen az egyensúlyban öntenyésztő, körülbelül 1% másodlagosaktinida-tartalommal, összhangban az irodalomban szereplő, korábbi eredményekkel. További másodlagos aktinidák friss üzemanyagba történő betöltése a tenyésztési nyereség növekedését eredményezi [P1, P3, P4].

3. Megmutattam hagyományos könnyűvízes reaktorokról 4. generációs gyorsreaktorokra és 3. generációs termikus reaktorokra történő átállást jellemző üzemanyagciklus-szenáriókban, hogy a három vizsgált gyorsreaktor képes elhasítani a könnyűvízes reaktorok kiégett üzemanyagában a gyorsreaktorok kezdeti töltetéhez szükséges plutónium megtermelése során felhalmozódott másodlagos aktinidákat. Meghatároztam a gyors és termikus reaktoroknak a plutóniumkészletek stabilizálásához és csökkentéséhez szükséges teljesítményarányát, és megmutattam, hogy a kiégett MOX üzemanyagból származó plutóniumot először gyorsreaktorokban újrafelhasználva betarthatók a friss üzemanyagokra vonatkozó korlátok. A kezdeti szakaszban a másodlagosaktinida-betáplálás hatására megnövekedett tenyésztés ellensúlyozására magasabb termikus reaktor teljesítményarány, ezt követően pedig az egyensúlyi állapot eléréséhez egy alacsonyabb teljesítményarány szükséges [P5, P6].

4. Kidolgoztam a nuklidátalakulási láncok sztochasztikus modelljeit diszkrét idejű és folytonos idejű Markov-láncok segítségével. Megmutattam, hogy a folytonos idejű Markov-lánc modellből egyaránt levezethetők a Bateman-egyenletek és az időfüggő transzmutációs trajektória valószínűségek, beleértve az aktinida átalakulási láncok esetén hasadással, illetve bomlási láncok esetén stabil atommaggal végződő trajektóriákat. Megmutattam, hogy a transzmutációs trajektória valószínűség megegyezik a Bateman-egyenletek lineáris láncokra érvényes általános megoldásával egységnyi kezdeti koncentráció esetén. A transzmutációs trajektória valószínűségek felhasználása lehetővé teszi a másodlagosaktinida-transzmutáció és az üzemanyag-tenyésztés jellemző folyamatainak azonosítását [P7].

5. Módszert fejlesztettem ki címkézett átmenetek várható értékének meghatározására a nuklidátalakulási láncokban. A módszer segítségével zárt formulákat adtam meg véges besugárzási időre integrált és aszimptotikus üzemanyagciklus-jellemzők számításához, mint a hasadási valószínűségek, átlagos neutrontermelés, D-érték, a hasadásig eltelt átlagos idő és az el-

hasadt leánymagok nuklidonkénti megoszlása. A levezetett formulák felhasználásával megmutattam, hogy zárt üzemanyagciklusban az egyensúlyi üzemanyag egy kampányra vonatkoztatott neutrontermelése megegyezik a frissüzemanyag-betáplálás aszimptotikus neutrontermelésével [P7, P8].

6. Érzékenységi tényezőkkel és a nuklidátalakulási láncok folytonos idejű Markov-lánc modelljének felhasználásával kiszámítottam a különböző nuklidok és transzmutációs trajektóriák hozzájárulását a tenyésztési nyereség másodlagosaktinida-betáplálás hatására történő megváltozásához 4. generációs gyorsreaktorokban. Megmutattam, hogy a három vizsgált gyorsreaktorban a megnövekedett mértékű tenyésztést elsősorban a  $^{238}\text{Pu}$   $^{237}\text{Np}$ -ből történő keletkezése, illetve a friss üzemanyag lecsökkent  $^{239}\text{Pu}$  és  $^{241}\text{Pu}$  tartalma eredményezi. A növekedést részben ellensúlyozza 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. A másodlagosaktinida-betáplálás spektrális hatása lényegesen kisebb, mint a keletkezési és fogyási ráták megváltozásának hatása [P1, P7].

## A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

- [P1] M. Halász, M. Szieberth, and 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.
- [P2] Z. Perkó, S. Pelloni, K. Mikityuk, J. Křepel, M. Szieberth, G. Gaëtan, B. Vrbán, J. Lüley, Š. Čerba, M. Halász, et al. “Core neutronics characterization of the GFR2400 Gas Cooled Fast Reactor”. *Progress in Nuclear Energy* **83** (2015), pp. 460–481.
- [P3] M. Halász, Á. Brolly, M. Szieberth, and 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 Gene-*

- ration Nuclear Systems for Sustainable Development, Yekatinburg, Russia, 26–29 June 2017 (FR17)*. 2017.
- [P4] Á. Brolly, M. Halász, M. Szieberth, L. Nagy, and S. Fehér. “Physical model of the nuclear fuel cycle simulation code SITON”. *Annals of Nuclear Energy* **99** (2017), pp. 471–483.
- [P5] M. Halász and M. Szieberth. “Investigation of fuel cycles containing Generation IV reactors and VVER-1200 reactors (megjelenés alatt)”. *Kern-technik* **83.4** (2018).
- [P6] M. Halász and M. Szieberth. “Investigation of fuel cycles containing Generation IV reactors and VVER-1200 reactors”. In: *Proc. of the 27th Symposium of AER, Munich, Germany, 17-20 October 2017*. 2017.
- [P7] M. Halász and M. Szieberth. “Markov chain models of nuclear transmutation: Part I - Theory”. *Annals of Nuclear Energy* **121** (2018), pp. 429–445.
- [P8] M. Szieberth, M. Halász, S. Fehér, and T. Reiss. “Simulation of fuel cycles with minor actinide management using a fast burnup calculation tool”. In: *Proc. of PHYSOR 2014 - The Role of Reactor Physics Toward a Sustainable Future, Kyoto, Japan, 28 September - 3 October, 2014*. 2014.
- [P9] M. Szieberth, M. Halász, S. Fehér, and T. Reiss. “Gázhűtésű gyorsreaktor üzemanyagciklusának modellezése”. *Nukleon* **7.2** (2014), Paper 160, pp. 1–6.
- [P10] M. Szieberth, M. Halász, S. Fehér, and T. Reiss. “Fuel cycle studies on minor actinide burning in Gas Cooled Fast Reactors”. In: *Proc. of Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation 12th Information Exchange Meeting, Prague, Czech Republic, 24-27 September 2012 (IEMPT12)*. 2012.
- [P11] M. Szieberth, M. Halász, S. Fehér, and T. Reiss. “Fuel cycle studies on minor actinide burning in Gas Cooled Fast Reactors”. In: *Proc. of Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Safe Technologies and Sustainable Scenarios, Paris, France, 4–7 March 2013 (FR13)*. 2013.



- [P12] M. Halász, M. Szieberth, S. Fehér, and T. Reiss. “Fuel cycle studies on the fuel utilization and minor actinide burning in Gas Cooled Fast Reactors”. In: *Proc. of 4th International Youth Conference on Energy, Siófok, Hungary, 6-8 June 2013 (IYCE 2013)*. IEEE Xplore Digital Library, 2013.

## Hivatkozások

- [US DoE, 2002] US DoE Nuclear Energy Research Advisory Committee and the Generation IV International Forum. “A technology road-map for Generation IV nuclear energy systems”. *GIF-002-00* (2002).
- [Salvatores, 2011] M. Salvatores and G. Palmiotti. “Radioactive waste partitioning and transmutation within advanced fuel cycles: Achievements and challenges”. *Progress in Particle and Nuclear Physics* **66.1** (2011), pp. 144–166.
- [McCarthy, 2009] K. McCarthy. “Nuclear fuel cycle transition scenario studies”. *OECD Nuclear Energy Agency, NEA-6194* (2009).
- [Boucher, 2010] L. Boucher et al. “International comparison for transition scenario codes involving COSI, DESAE, EVOLCODE, FAMILY and VISION”. In: *Proc. of Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation 11th Information Exchange Meeting, San Francisco, California, USA*. 2010, pp. 61–71.
- [Vidal, 2006] J.-M. Vidal et al. “CESAR: A code for nuclear fuel and waste characterisation”. In: *Proc. of WM’06 Waste Management Symposium, Tucson, Arizona, USA*. 2006.
- [Leniau, 2015] B. Leniau et al. “A neural network approach for burn-up calculation and its application to the dynamic fuel cycle code CLASS”. *Annals of Nuclear Energy* **81** (2015), pp. 125–133.
- [Coquelet, 2015] C. Coquelet-Pascal et al. “COSI6: a tool for nuclear transition scenario studies and application to SFR deployment scenarios with minor actinide transmutation”. *Nuclear Technology* **192.2** (2015), pp. 91–110.

- [Meyer, 2013] M. Meyer et al. “Scenarios for Minor Actinides Transmutation in the Frame of the French Act for Waste Management”. In: *Proc. of International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Safe Technologies and Sustainable Scenarios (FR 13), Paris, France*. 2013.
- [ORNL, 2009] 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).