

Stefan CHWASZCZEWSKI\*, Stanisław KILIM\*\*, Magdalena MAŁDRY\*\*

## Wykorzystanie toru w energetyce jądrowej

STRESZCZENIE. Obecnie stosowane technologie w energetyce jądrowej wykorzystują głównie, jedynie występujący w przyrodzie, izotop rozszczepialny – U235. W naturalnym uraniu izotop ten stanowi 0,72% ogólnej masy uranu. Pozostała część to nierozszczepialny neutronami termicznymi izotop U238. Wprawdzie niewielka ilość tego izotopu, pod wpływem neutronów, ulega przekształceniu w rozszczepialny izotop Pu239, ale w rezultacie tylko około 1% wydobywanego ze środowiska uranu ulega rozszczepieniu i jest wykorzystywana do wytwarzania energii. Reszta idzie do odpadów.

Jest to rozrzućna gospodarka tym surowcem energetycznym. Możliwość wykorzystania nierozszczepialnego izotopu U238 do wytwarzania rozszczepialnego izotopu Pu239 i Pu241 zwiększy zasoby energetyczne uranu ponad pięćdziesiąt razy. Jeszcze większe zasoby energetyczne są zawarte w torze. Pod wpływem neutronów powstaje z toru rozszczepialny izotop U233. Wykorzystanie toru jako materiału paliworodnego pozwoli zwiększyć zasoby energetyczne paliw jądrowych ponad stukrotnie w porównaniu do zasobów uranu wykorzystywanych w obecnych technologiach.

Wykorzystanie zarówno U238 jak i Th232 w energetyce jądrowej wymaga zastosowania nowych technologii reaktorów energetycznych – reaktorów, w których przeprowadzono by procesy jądrowe wytwarzające z materiałów paliworodnych paliwo jądrowe. Są to w przypadku wykorzystania U238 reaktory powielające na neutronach prędkich – FBR (*Fast Breeder Reactor*). W przypadku wykorzystania toru procesy te mogą być prowadzone w odpowiednio przystosowanych do tych celów reaktorów wykorzystujących neutrony termiczne: lekkowodnych (PWR i BWR), reaktorach ciężkowodnych (PHWR-CANDU) oraz w budowanych obecnie reaktorach wysokotemperaturowych.

W pracy przedstawiono podstawowe informacje o reakcjach jądrowych prowadzących do uzyskania izotopów rozszczepialnych w procesie naświetlania toru neutronami w reaktorze

---

\* Prof. dr hab., \*\* Mgr — Instytut Energii Atomowej, Otwock-Świerk.

Recenzent: prof. dr hab. inż. Roman NEY

energetycznym, własności tych izotopów jako paliwa jądrowego, wykorzystanie toru w cyklach paliwowych reaktorów energetycznych oraz zalet i utrudnień w realizacji tego zamierzenia.

SŁOWA KLUCZOWE: tor, uran, reaktor jądrowy, paliwo jądrowe

## Wprowadzenie

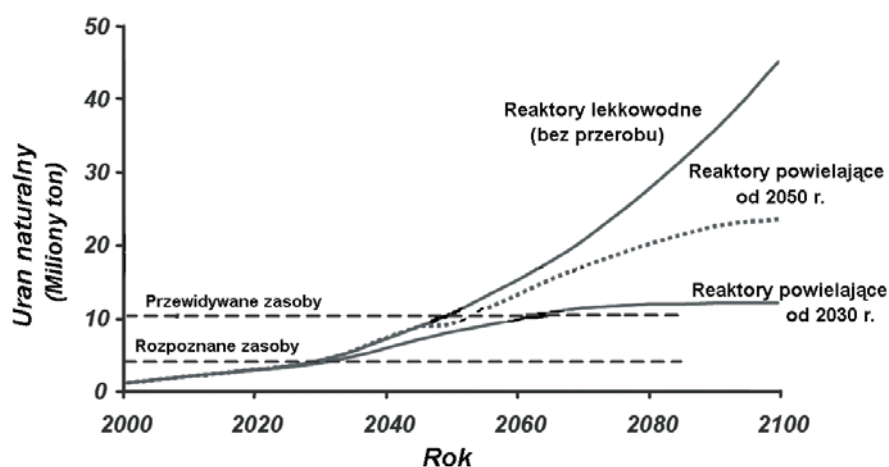
W przyrodzie występuje tylko jeden izotop rozszczepialny: U235. W wydobywanym ze środowiska naturalnym uranie znajduje się go 0,72%. Pozostała część to nierozszczepialny neutronami o niskich energiach U238 oraz śladowe ilości U234, występującego w szeregu radioaktywnego rozpadu U238. W zasadzie, znakomita część obecnie eksploatowanych reaktorów energetycznych i badawczych bazuje na wykorzystaniu występującego w przyrodzie rozszczepialnego izotopu U235. Niewielka część wytwarzanej energii w tych reaktorach pochodzi z rozszczepienia Pu239 powstałego w reaktorze, w wyniku napromieniania izotopu U238 neutronami. Jednakże wykorzystanie uranu naturalnego do wytwarzania energii pozostało na poziomie 0,5–1%! Do wytworzenia 1 TWh energii elektrycznej, ze środowiska, jest wydobywane około 23 tony uranu naturalnego. Z tej ilości rozszczepieniu ulega 130 kg. 20 ton uranu – to uran zubożony, z którego wydobyto część U235, aby wytworzyć paliwo z 3–6% udziałem U235. Pozostałe 3 tony to wyładowane z reaktora wypalone paliwo – wysokoaktywny odpad, który musi być odizolowany od środowiska przez tysiące lat.

W latach siedemdziesiątych i osiemdziesiątych ubiegłego wieku, w okresie gwałtownego rozwoju energetyki jądrowej, rozpoczęto prace nad wykorzystaniem U238 do wytwarzania Pu239. Oczywiście, pomocne w tym rozwoju okazały się militarne technologie wytwarzania plutonu rozszczepialnego. Jednakże celem tych opracowań była konstrukcja reaktora, w którym ilość wytworzonego Pu239 byłaby większa od ilości wykorzystanego U235 lub Pu239 do podtrzymania łańcuchowej reakcji rozszczepienia. Okazało się, że ten warunek spełnia tylko reaktor wykorzystujący neutrony prężkie w reakcji rozszczepienia. Reaktor taki nazwano reaktorem powielającym na neutronach prężkich. W języku angielskim uproszczono tę nazwę do „*Fast breeder reaktor – FBR*”. Okazało się, że reaktor taki może wytworzyć około 10% rozszczepialnego paliwa więcej niż sam zużywa do swojej pracy. „Nadmiar” wytworzonego w tym reaktorze plutonu może być wykorzystany do wytwarzania paliwa dla reaktorów nie posiadających takich własności lub do zasilania paliwem nowych reaktorów powielających.

Stagnacja rozwoju energetyki jądrowej, po awarii reaktora energetycznego w Czarnobylu, spowodowała spowolnienie a nawet zatrzymanie prac nad reaktorami powielającymi. Szczególnie, że eksploatacja tych reaktorów okazała się skomplikowana, a wydobycie plutonu z napromieniowanego uranu przedsięwzięciem dość kosztownym. Proces likwidacji militarnych zapasów wysoko wzbogaconego uranu i plutonu i wykorzystanie ich do wy-

tworzenia paliw do reaktorów cywilnych spowodował znaczący spadek cen jądrowych surowców energetycznych. W latach dziewięćdziesiątych 50% zapotrzebowania na paliwa jądrowe do reaktorów cywilnych, było pokrywane z tych zasobów.

Jednakże sytuacja zaczyna się zmieniać. Wyniki prowadzonych analiz rynków surowców energetycznych przewidują wzrost wykorzystania energetyki jądrowej. Stan ten wynika ze świadomości ograniczonych zasobów energetycznych (głównie ropy naftowej i gazu) oraz z konieczności ochrony środowiska przed emisją gazów cieplarnianych i innych szkodliwych substancji powstających przy przetwarzaniu i wykorzystaniu energii. Wykorzystywane obecnie do wytwarzania paliwa jądrowego zasoby militarnego uranu i plutonu ulegają wyczerpaniu. Zasoby uranu wydobywanego po racjonalnych kosztach nie są nieograniczone. Według [1] udowodnione światowe zasoby uranu (*proved resources*) wydobywanego po kosztach do 130 US\$ wg cen 2004 r. wynoszą 3200 kton naturalnego uranu metalicznego, natomiast szacowane dodatkowe i nie odkryte zasoby uranu (*estimated additional resources and undiscovered resources*) są oceniane na 9800 kton. Obecnie, światowe zapotrzebowanie na uran naturalny wykorzystywany do celów cywilnych wynosi rocznie około 65 kton. W sytuacji wzrastającego zapotrzebowania na źródła czystej i taniej energii wykorzystanie paliw jądrowych w obecnie wykorzystywanych technologiach energetyki jądrowej – BAU (*Business As Usual*) spowoduje szybkie wyczerpanie zasobów tego surowca. Oceny podane w publikacji [2] przewidują konieczność wykorzystania w znaczącej skali reaktorów powielających.



Rys. 1. Prognoza wykorzystania światowych zasobów uranu

Fig. 1. Worldwide uranium resource utilization forecast

Wykorzystanie U238 do wytwarzania izotopów rozszczepialnych pozwoli na ponad 50-krotne zwiększenie ilości energii wytworzonej z rozpoznanych i potencjalnych zasobów uranu naturalnego.

Drugim surowcem umożliwiającym wytwarzanie izotopu rozszczepialnego jest tor. W wyniku naświetlania neutronami jedyny izotop toru – Th232 zostaje przekształcony

w rozszczepialny izotop U233. Ocenia się, że tor występuje w przyrodzie w ilościach 3–4 krotnie większych niż uran. Dlatego wykorzystanie toru umożliwiłoby ponad stukrotne zwiększenie ilości energii możliwej do wytworzenia z rozpoznanych i potencjalnych zasobów materiałów jądrowych.

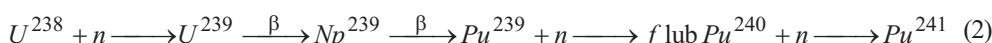
W niniejszym referacie przedstawiono zarówno zalety jak i wady zastosowań tego pierwiastka (w torze znajduje się 100% udział izotopu Th232) do wykorzystania w energetyce jądrowej.

## 1. Materiały paliworodne i procesy wytwarzania izotopów rozszczepialnych

Wykorzystanie toru do wytwarzania izotopu rozszczepialnego U233 wymaga napromienienia toru neutronami w reaktorze jądrowym. Wykorzystywana jest głównie następująca reakcja jądrowa:



Przedstawiona powyżej reakcja jest nazywana cyklem torowo-uranowym (Th-U). Podobna reakcja jądrowa wykorzystywana jest do wytwarzania rozszczepialnego izotopu Pu239 i Pu241 w naświetlaniu neutronami U238. Nazywana jest ona cyklem uranowo-plutonowym (U-Pu):



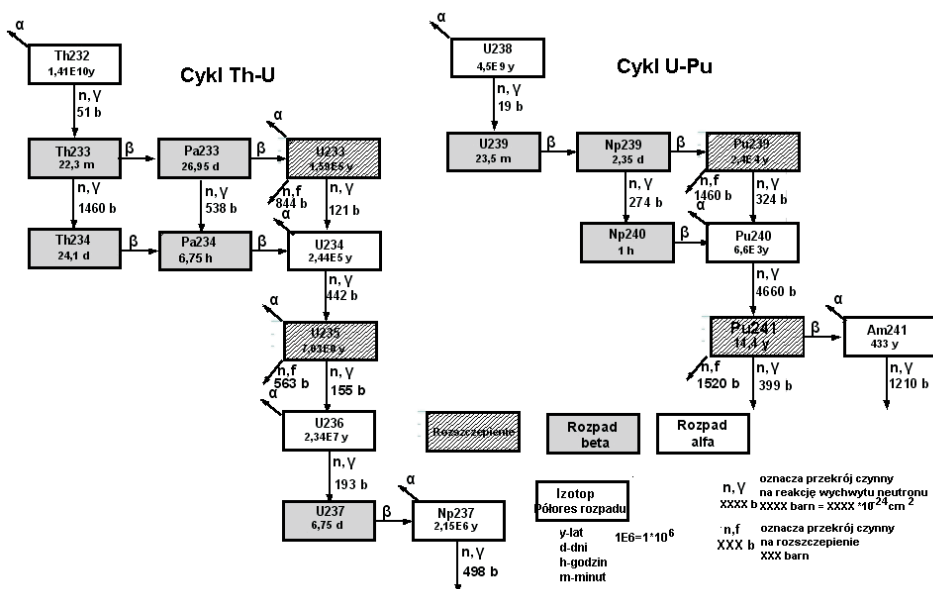
W cyklu U-Pu powstaje jeszcze jeden izotop rozszczepialny Pu241. Pochłonięcie neutronu przez izotop Pu239 nie zawsze prowadzi do rozszczepienia. Istnieje pewne prawdopodobieństwo przemiany izotopu Pu239 w nierozszczepialny izotop Pu240. Pochłonięcie następnego neutronu prowadzi do powstania izotopu rozszczepialnego Pu241.

Łańcuch przemian jądrowych, który prowadzi do wytwarzania izotopu rozszczepialnego, rozpoczyna się od pochłonięcia (absorpcji) neutronu przez jądro materiału paliworodnego, którymi są tor, posiadający w stanie naturalnym jeden izotop Th232 lub izotop uranu – U238, którego zawartość w uranie naturalnym przekracza 99%. Szybkość, z jaką zachodzi ta reakcja zależy oczywiście od gęstości strumienia neutronów oraz od przekroju czynnego na absorpcję neutronu przez jądro materiału paliworodnego.

Przekrój czynny na pochłonięcie neutronu przez tor jest kilkukrotnie większy od analogicznego przekroju czynnego dla izotopu U238. A więc prawdopodobieństwo absorpcji neutronu przez jądro Th232 jest kilkukrotnie większe niż w przypadku jądra U238 i efektywność procesu Th-U jest kilkukrotnie większa niż procesu U-Pu. Dodatkowo, zarówno

Th232 jak i U238 ulegają rozszczepieniu pod działaniem neutronów wysokich energii, a więc neutronów emitowanych bezpośrednio w procesie rozszczepienia. Zakres energii tych neutronów znajduje się w obszarze energii neutronów powodujących rozszczepienia w Th232, natomiast tylko niewielka część pokrywa zakres energii niezbędnych do spowodowania rozszczepienia U238.

Przedstawione przemiany jądrowe (1) i (2) są przemianami dominującymi, ale nie jedynymi. Na rysunku 2 przedstawiono schemat ważniejszych przemian jądrowych zachodzących w cyklu torowo-uranowym (Th-U) oraz w cyklu uranowo-plutonowym (U-Pu). W wyniku tych przemian powstaje szereg radioaktywnych izotopów nierozszczepialnych, które wychwytyują nieproduktywnie neutrony pogarszając tym samym bilans neutronów w reaktorze.



Rys. 2. Schematy ważniejszych przemian jądrowych w cyklu torowo-uranowym i uranowo-plutonowym w widmie neutronowym energetycznego reaktora lekkowodnego

Uwaga: Liczby przy oznaczeniach reakcji n, γ pochłonięcie neutronu) lub n,f (rozszczepienie) określają przekrój czynny tych reakcji w barnach ( $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ )

Fig. 2. Diagram of prior nuclear processes in the thorium-uranium cycle and uranium-plutonium cycle in light water reactor neutron spectrum

Dla zobrazowania procesów przekształceń jądrowych, zachodzących w materiałach paliworodnych, w cyklu uranowo-plutonowym ze zubożonym uranem (zawartość U235 – 0,2%) i w cyklu Th-U przeprowadzono obliczenia przy pomocy kodu ORIGEN [3]. Skład izotopowy 1 tony uranu zubożonego (U238 – 99,8%, U235 – 0,2%) oraz 1 tony toru poddanego napromienieniu strumieniem neutronów  $5 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{sek}$  w reaktorze lekkowodnym (określone widmo neutronów) przez 365 dni. Zestawienie wybranych izotopów nagromadzonych w tych materiałach w gramach jest podane w tabeli 1.

TABELA 1. Zestawienie zawartości izotopów w gramach w 1 tonie uranu zubożonego (kolumna U-Pu) i w 1 tonie toru (kolumna Th-U) poddanego napromienieniu w energetycznym reaktorze lekkowodnym w strumieniu neutronów  $5 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ sek}$  ( $5 \text{ E}13 \text{ n/cm}^2 \text{ sek}$ ) w czasie 365 dni. W tabeli nie uwzględniono izotopów, których zawartość w napromienionym materiale w cyklu U-Pu i Th-U jest mniejsza od 0,1 grama

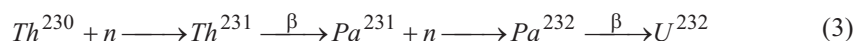
TABLE 1. List of isotope quantity in one tonne of depleted uranium (column U-Pu) and 1 tonne of thorium (column Th-U) irradiated by neutron (flux  $\cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ ) during 365 days. Isotopes, which quantity in both material are less than 0,1 grams are not included in table

Izotop	U-Pu	Th-U	Izotop	U-Pu	Th-U	Izotop	U-Pu	Th-U	Izotop	U-Pu	Th-U
Th228	1,06E-07	1,34E-01	Pa233	4,59E-06	7,50E+03	U238	9,64E+05	4,17E-11	Pu240	6,79E+02	4,22E-03
Th230	2,76E-07	1,70E+00	Pa234	2,29E-09	3,49E+00	U239	1,87E+00	8,08E-17	Pu241	1,29E+03	3,08E-03
Th231	3,67E-09	7,67E-01	U232	4,64E-05	4,25E+01	Np236	8,99E-06	4,41E-07	PuU242	2,78E+02	2,14E-04
Th232	4,32E-06	9,21E+05	U233	3,29E-04	3,50E+04	Np237	1,56E+02	7,66E+00	Pu243	2,29E-01	1,76E-07
Th233	2,13E-11	4,57E+00	U234	2,62E-01	7,37E+03	Np238	1,00E+00	4,90E-02	Am241	1,67E+01	1,47E-05
Th234	1,39E-05	1,01E+00	U235	6,44E+02	1,70E+03	Np239	2,68E+02	3,49E-04	Am242M	4,43E-01	2,49E-07
Pa231	8,52E-07	1,35E+02	U236	2,45E+02	1,26E+02	Pu238	5,00E+01	1,04E+00	Am243	6,08E+01	2,00E-05
Pa232	3,04E-09	4,90E-01	U237	6,73E+00	1,03E+00	Pu239	9,80E+03	1,11E-01			

Z powyższej tabeli wynika większa wydajność wytwarzania izotopu rozszczepialnego w cyklu Th-U w porównaniu do cyklu U-Pu. W cyklu Th-U wytworzono 35 kg U233, natomiast w cyklu U-Pu tylko 11 kg izotopów Pu239 i Pu241. Przy separacji chemicznej uranu w cyklu Th-U i plutonu z cyklu U-Pu otrzymujemy mieszaninę izotopów, w których stosunek przekroju czynnego na rozszczepienie do przekroju czynnego na absorpcję neutronu dla uranu w cyklu Th-U wynosi 6,09 natomiast dla plutonu w cyklu U-Pu - 2,48.

W cyklu Th-U wytwarzane jest znacząco mniej izotopów neptunu, plutonu i ameryku w porównaniu do cyklu U-Pu. Powoduje to znacznie mniejszą aktywność wypalonego paliwa wytwarzaną na jednostkę wytworzonej w reaktorze energii.

W cyklu Th-U pojawia się pewna ilość U232. Wbrew informacjom podanym w szeregu publikacji, np. [5] str. 68 izotop ten nie jest wytwarzany w reakcjach  $n,2n$ , które to reakcje są możliwe tylko z neutronami wysokich energii  $> 6 \text{ MeV}$ , ale w wyniku alfa rozpadu izotopu U234 prowadzącego do powstania izotopu Th230, a następnie w szeregu reakcji jądrowych:



jest wytwarzany U232. Okres półrozpadu tego izotopu wynosi 70 lat, a generuje on rodzinę izotopów promieniotwórczych, w której znajduje się Tl208. Izotop ten znamieny jest tym, że przy jego rozpadzie wytwarza wysokoenergetyczne promieniowanie gamma o energii 2.614 MeV. Promieniowanie to stanowi poważne utrudnienie w chemicznym rozdzielaniu uranu w cyklu Th-U, produkcji paliwa i operowaniu tym paliwem, lecz stanowi bardzo

dobry znacznik umożliwiający w prosty sposób identyfikację tego materiału przy próbach jego nielegalnego wykorzystania np. do celów terrorystycznych.

Reasumując, efektywność wytwarzania izotopów rozszczepialnych w procesie Th-U jest kilkukrotnie większa niż w procesie U-Pu. Dodatkowo, Th232 jest wydajniejszym materiałem rozszczepialnym pod działaniem neutronów rozszczepieniowych niż U238. Dlatego cykl Th-U może być wykorzystany do powielania materiałów rozszczepialnych w reaktorach na neutronach termicznych: LWR, PHWR(CANDU) i HTGR, natomiast do powielania paliwa w cyklu U-Pu muszą być wykorzystane reaktory na neutronach prędkich.

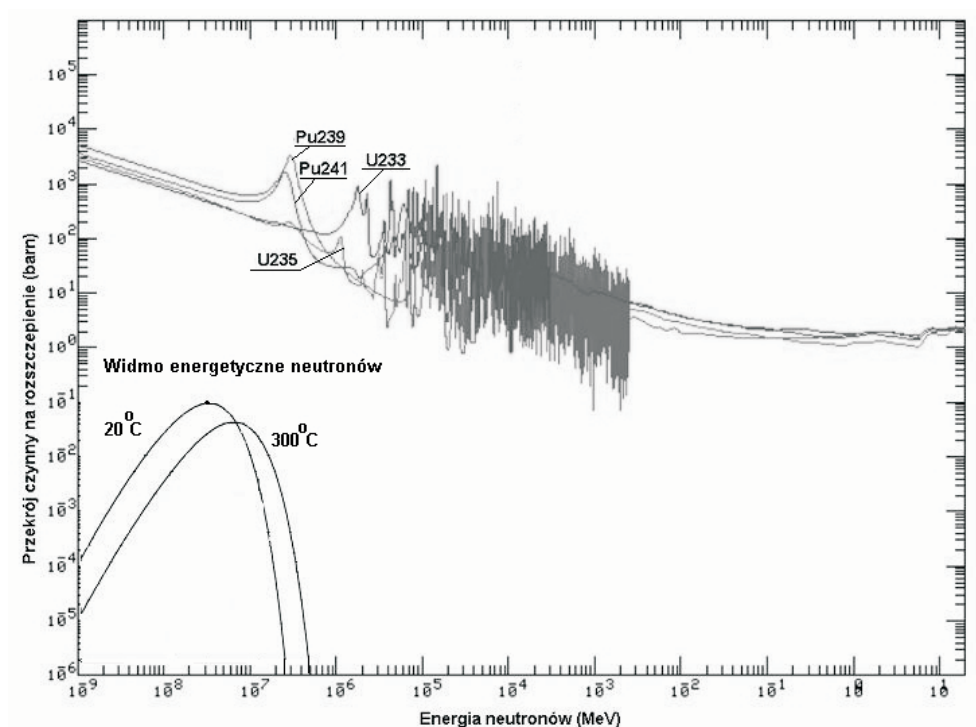
## 2. Izotopy rozszczepialne i ich charakterystyki

Podstawowymi pytaniami są korzyści i utrudnienia wynikające z zastosowań Th232 lub U238 do wytwarzania izotopów rozszczepialnych U233, Pu239 i Pu241 oraz wykorzystania tych materiałów w reaktorze energetycznym. Nie ulega wątpliwości, że w przypadku zwiększającego się wykorzystania energetyki jądrowej niezbędne będzie wykorzystanie wymienionych powyżej reakcji do wytwarzania paliwa jądrowego. Jakie więc są zalety cyklu paliwowego opartego na torze – cyklu Th-U – w porównaniu do cyklu paliwowego opartego na wytwarzaniu plutonu z U238 – cyklu U-Pu. Przede wszystkim jakie są własności rozszczepialnych izotopów U233, Pu239 i Pu241 jako paliwa jądrowego w zestawieniu z U235.

Jednym z ważnych parametrów izotopu rozszczepialnego jest wielkość przekroju czynnego na rozszczepienie – a w zasadzie jego zależność od energii neutronu. Zależność ta jest pokazana na rysunku 3 [4].

W zasadzie wszystkie izotopy rozszczepialne posiadają zbliżone wielkości przekroju czynnego na rozszczepienie. W przypadku izotopów Pu239 i Pu241 występują rezonanse w obszarze energii neutronów termicznych powodujące zależność wytwarzanej mocy w paliwie zawierającym te izotopy nie tylko od wielkości strumienia neutronów, lecz również od widma energetycznego neutronów. Efekt ten stwarza pewne kłopoty w prognozowaniu kampanii paliwowej reaktora wykorzystujące paliwo zawierające wymienione powyżej izotopy rozszczepialne. W przypadku U233, rezonans ten znajduje się znacznie powyżej energii neutronów w reaktorach na neutronach termicznych (LWR lub PHWR).

Następnym parametrem określającym własności izotopów rozszczepialnych jest udział procesów absorpcji neutronów prowadzących do rozszczepienia jądra izotopu rozszczepialnego w całkowitej absorpcji neutronów. Proces absorpcji neutronu nie wywołujący rozszczepienia prowadzi do powstania nowego, cięższego jądra, zazwyczaj radioaktywnego, ulegającego rozpadowi alfa, a więc izotopu radiotoksycznego. Proces ten powoduje nagromadzenie w wypalonym paliwie radioaktywnych izotopów o długich okresach rozpadu emitujących cząstki alfa. Czym prawdopodobieństwo rozszczepienia po absorpcji neutronu jest bliższe 1, tym mniej dany izotop wytwarza wysokoaktywnych, długożyłowych odpadów promieniotwórczych, pozostających w wypalonym paliwie. Zestawienie



Rys. 3. Zależność przekroju czynnego na rozszczepienie U233, U235, Pu239 i Pu241 od energii neutronów (barn= $10^{-24}\text{cm}^2$ )

Fig. 3. Fission cross section vs. neutron energy for U233, U235, Pu239 and Pu241 (barn= $10^{-24}\text{cm}^2$ )

prawdopodobieństwa rozszczepienia na pochłonięty neutron dla rozpatrywanych izotopów rozszczepialnych jest przedstawione w tabeli 2 [5].

TABELA 2. Prawdopodobieństwo reakcji rozszczepienia przy pochłonięciu neutronu dla izotopów U233, U235, Pu239 i Pu241

TABLE 2. Fission probability after neutron absorption for U233, U235, Pu239 and Pu241

Izotop	U233	U235	Pu239	Pu241
Prawdopodobieństwo reakcji rozszczepienia	0,912	0,854	0,665	0,751

Spośród rozpatrywanych izotopów rozszczepialnych najlepszymi własnościami oznacza się U233. Dodatkowo, w przypadku tego izotopu produkty przemian doprowadzają do powstania izotopu rozszczepialnego U235, a następnie Pu239 i Pu241. Izotopy te ulegają rozszczepieniu i w konsekwencji, przy wykorzystaniu cyklu Th-U powstaje mniej radioaktywnych izotopów w wypalonym paliwie.

Ważnym parametrem określającym wymagania w zakresie sterowania reaktorem jest udział neutronów opóźnionych w emisji neutronów z procesów rozszczepienia. Wielkość ta



oznacza margines bezpiecznego sterowania reaktorem. Przekroczenie poziomu współczynnika mnożenia o wielkość udziału neutronów opóźnionych sprawia, że reaktor osiąga krytyczność na neutronach natychmiastowych, co powoduje bardzo szybki wzrost strumienia neutronów oraz związanej z tym mocy reaktora. Sytuacja ta nie prowadzi do wybuchu jądrowego – działają tu ujemne sprzężenia temperaturowe, ale może doprowadzić do uszkodzenia paliwa. Udział neutronów opóźnionych w procesie rozszczepienia dla analizowanych izotopów rozszczepieniowych jest przedstawiony w tabeli 3 [5].

TABELA 3. Udział neutronów opóźnionych emitowanych w procesie rozszczepienia izotopów U233, U235, Pu239 i Pu241.

TABLE 3. Delayed neutron fraction from U233, U235, Pu239 and Pu241 fission.

Izotop	U233	U235	Pu239	Pu241
Udział neutronów opóźnionych	0,0031	0,0069	0,0026	0,0050

Ten parametr wybitnie preferuje U235. Jednakże wpływ tego parametru na sposób sterowania reaktorem energetycznym jest zmniejszany przez emisję fotonutronów z reakcji wywołanej promieniowaniem gamma na jądrach np. deuteru znajdującego się w wodzie chłodzącej rdzeń reaktora (w tonie wody znajduje się 156 gramów D<sub>2</sub>O). Fotoneutrony w tym przypadku odgrywają stabilizującą rolę w sterowaniu reaktorem energetycznym.

### 3. Charakterystyki materiałowe

Naświetlanie materiałów paliworodnych (Th lub Udep) wiąże się z powstawaniem zmian chemicznych w tych materiałach oraz z wytwarzaniem energii cieplnej w wyniku generacji w tych materiałach izotopów rozszczepieniowych oraz generacji energii przez promieniowanie gamma. Projektując układy reaktorowe wykorzystujące te materiały należy przeanalizować wpływ powstających w wyniku przemian jądrowych pierwiastków na charakterystyki materiału wyjściowego. W tabeli 4 przedstawione są podstawowe właściwości zarówno czystych pierwiastków Th, U i Pu jak i ich ThO<sub>2</sub>, UO<sub>2</sub> i PuO<sub>2</sub>. Niska temperatura topienia czystych pierwiastków – w szczególności plutonu w porównaniu do dwutlenków tych pierwiastków, znaczące różnice we współczynnikach rozszerzalności termicznej sugerują wykorzystanie dwutlenków tych pierwiastków w szczególności, że posiadają identyczną strukturę krystaliczną: F.C.C. (F.C.C. – *Face Centered Cubic* – Płasko centrowana sieć regularna) w zakresie temperatur ich pracy w reaktorze.

Jak wynika z przedstawionych powyżej parametrów, dwutlenek toru posiada wyższą temperaturę topnienia od dwutlenku uranu. Powoduje to konieczność prowadzenia procesu spiekania ThO<sub>2</sub> w temperaturach powyżej 2000°C (UO<sub>2</sub> – 1400°C) co wiąże się z większymi trudnościami technicznymi. Dodatkowo, ThO<sub>2</sub> jest bardziej stabilny chemicznie w porów-

TABELA 4. Podstawowe parametry materiałowe U, Pu i Th oraz dwutlenków tych pierwiastków

TABLE 4. Basic material parameters U, Pu and Th and dioxide of these elements

Parametr	U	UO <sub>2</sub>	Pu	PuO <sub>2</sub>	Th	ThO <sub>2</sub>
Struktura krystaliczna	Ortorombowa 298–935°K Tetragonalna 935–1045°K BCC <sup>2</sup> 1045–1405°K	F.C.C. <sup>1</sup>	6 faz Najważniejsze: Monokliniczna 298–392°K F.C.C. 583–723°K B.C.C. 745–913°K	F.C.C.	F.C.C. 298–1673°K B.C.C. 1673–2025°K	F.C.C.
Temperatura topnienia	1405°K	~3123°K	913°K	~2623°K	2025°K	~3643°K
Teoretyczna gęstość 298°K g/cm <sup>3</sup>	19,05	10,96	19,38	11,46	11,68	10,00
Przewodność cieplna W/mK 773°K 1773°K	30	4,80 2,40	30	4,48 1,97	43,1	6,20 2,40
Współczynnik rozszerzalności K <sup>-1</sup>	14,2 E-6	10 E-6	56E-6	11,4E-6	11,9 E-6	9,67 E-6

<sup>1</sup> F.C.C. – Face Centered Cubic – Płasko centrowana sieć regularna.

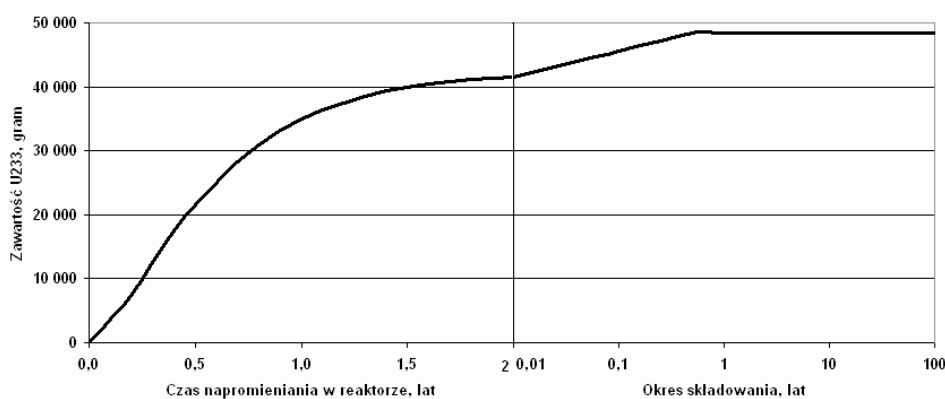
<sup>2</sup> B.C.C. – Body Centered Cubic – Przestrzennie centrowana sieć regularna.

naniu z UO<sub>2</sub> i przy procesach przerobu wypalonego paliwa nie ulega rozpuszczeniu w kwasie azotowym, tak jak ma to miejsce z UO<sub>2</sub>. Dodanie niewielkiej ilości kwasu fluorowodorowego pozwala na uniknięcie tych trudności, ale ten dodatek powoduje korodowanie elementów instalacji do przerobu wypalonego paliwa. Trudności te mogą być pokonane poprzez wykorzystanie reagentu THOREX: 13M HNO<sub>3</sub>+0,05HF+0,1M Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>.

#### 4. Cykl paliwowy z wykorzystaniem toru jako materiału paliworodnego

Zasadniczą różnicą cyklu paliwowego Th-U różniącą go od cyklu paliwowego U-Pu jest występowanie w łańcuchu przemian jądrowych tego pierwszego stosunkowo długożyłowego izotopu Pa233. Powoduje on znaczne opóźnienie w wytwarzaniu rozszczepialnego

izotopu U233. Stan „nasylenia” – równowagi pomiędzy wytwarzaniem izotopu rozszczepialnego a jego wypaleniem – jest osiągany dopiero po okresie ponad jednego roku napromieniowania w reaktorze. Po wyładowaniu napromieniowanego toru z reaktora, oprócz znacznej ilości rozszczepialnego izotopu U233, znajduje się w nim duża ilość Pa233, który w procesie rozpadu wytwarza dalej izotop rozszczepialny U233. Przerób napromienionego toru, po roku jego schładzania, pozwoli na wydobycie jeszcze większych ilości U233 niż znajdowałyby się w momencie wyładunku toru z reaktora. Dodatkowo, rozpad izotopu Pa233 jest skojarzony z dużą intensywnością promieniowania gamma znacznie utrudniającego proces przerobu. Na rysunku 4 przedstawiono przebieg narastania ilości U233 w tonie toru naświetlanego przez 2 lata strumieniem neutronów  $5 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>sek w energetycznym reaktorze lekkowodnym, a następnie składowanym przez okres 100 lat. Już po jednym roku składowania otrzymuje się około 68 kg uranu w tym 49 kg U233 i ponad 5 kg U235. Pozostałe izotopy uranu to: U232 w ilości 100 g, U234 – 13 kg i poniżej 1 kg U236. Bez separacji izotopowej otrzymujemy ponad 54 kg izotopów rozszczepialnych!



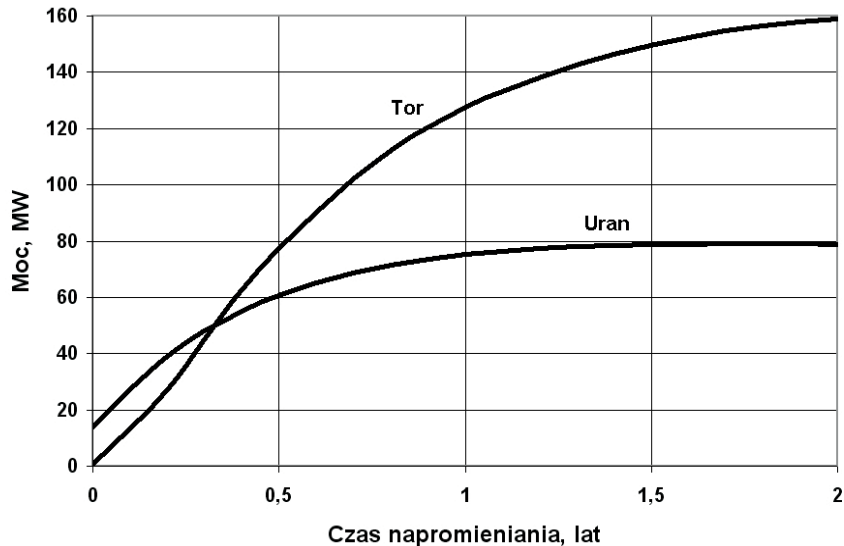
Rys. 4. Przebieg narastania ilości U233 w tonie toru naświetlanego strumieniem neutronów  $5 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>sek

Fig. 4. Time behaviour of U233 quantity in one tone of thorium irradiated in neutron flux  $5 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>s

Naświetlanie 1 tony uranu zubożonego (U235 0,2%) w tym samym strumieniu neutronów przez okres 2 lat umożliwi otrzymanie prawie 14 kg plutonu, w tym izotopów rozszczepialnych: ponad 10 kg Pu239 i 1,7 kg Pu241. Pozostałe izotopy plutonu to nierozszczepalne Pu240 i Pu242 w ilości po 750 gram.

W czasie napromieniania toru lub uranu (zubożonego) w reaktorze wytwarzane są izotopy rozszczepialne, których rozszczepienie powoduje wytwarzanie energii. Dynamika narastania mocy cieplnej wytwarzanej w tonie toru i w tonie uranu zubożonego poddanego napromienianiu w strumieniu neutronów  $5 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>sek jest przedstawiona na rysunku 5. W okresie napromieniania w tonie toru zostaje wytworzona energia cieplna 1932 GWh, natomiast w uranie zubożonym – 1180 GWh.

Jak wynika z przedstawionych wyników, tor jest bardziej efektywnym materiałem paliworodnym niż zubożony uran. W torze wytwarzana jest większa ilość materiałów rozszczepialnych oraz wytwarzana jest większa ilość energii w czasie napromieniania.



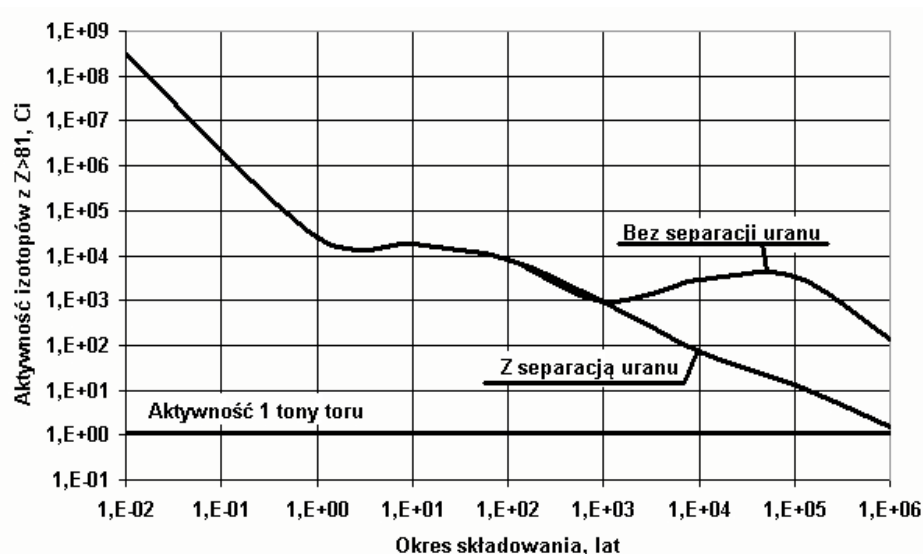
Rys. 5. Moc wytwarzana w jednej tonie toru i uranu zubożonego w czasie napromieniowania strumieniem neutronów  $5 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>sek

Fig. 5. Power generation in one tone of thorium and one tone depleted uranium in irradiation time in neutron flux  $5 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>s

Dodatkowo, w procesie chemicznego przerobu napromienionego toru wydzielany jest uran o składzie izotopowym bardziej przydatnym do wykorzystania jako paliwo jądrowe niż w przypadku wyodrębnienia plutonu w cyklu U-Pu.

Aktywność produktów rozszczepienia w wyładowanej z reaktora porcji toru i uranu zubożonego jest proporcjonalna do wytworzonej w tym materiale energii. Natomiast aktywność izotopów z liczbą atomową  $Z > 81$  (izotopów wytwarzanych w procesie przemian jądrowych w torze i uranie pod wpływem napromieniania neutronami oraz w wyniku ich rozpadu w okresie składowania) różni się między sobą. W wyładowanym materiale torowym nagromadzono 68 kg uranu, w tym 49 kg U233. Izotop ten z półokresem rozpadu 159 000 lat generuje rodzinę izotopów promieniotwórczych: Th229, Ac225, Ra225, Fr221, Po213 i Pb209. Po 1000 lat składowania następuje znaczny wzrost aktywności wyładowanego materiału. Obróbka chemiczna wyładowanego materiału z wydzieleniem izotopów uranu oraz produktów rozszczepienia zasadniczo zmniejsza aktywność wyładowanej substancji, której aktywność dąży do poziomu aktywności toru w środowisku naturalnym. Na rysunku 6 przedstawiono zanik aktywności izotopów z  $Z > 81$  w okresie składowania bez separacji izotopów uranu oraz po ich separacji. Na rysunku tym przedstawiono również aktywność 1 tony toru w równowadze z produktami rozpadu.

Jak wynika z przedstawionego wykresu, po okresie składowania 10 000 lat, aktywność tego materiału po wydzieleniu izotopów uranu (które są cennym materiałem rozszczepialnym) dąży do poziomu aktywności naturalnego środowiska. Podobnie, aktywność produktów rozszczepień powstałych w procesie napromieniania toru w reaktorze, dąży do poziomu aktywności środowiska naturalnego po składowaniu w okresie około 1000 lat.



Rys. 6. Zanik aktywności 1 tony toru naświetlanego przez 2 lata w strumieniu neutronów  $5 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ sek}$

Fig. 6. Activity decay in 1 tone thorium irradiated in neutron flux  $5 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$  during 2 years

## 5. Dotychczasowe zastosowania toru w reaktorach energetycznych [5, 6, 7]

W ogromnej większości prób wykorzystania toru w reaktorach energetycznych, tor wykorzystywano jako materiał paliworodny wydłużający kampanię paliwową reaktora, eliminując konieczność załadunku do reaktora znacznej ilości rozszczepialnego izotopu U235, który wystarczyłby na eksploatację reaktora w dostatecznie długim okresie czasu. Ten nadmiar rozszczepialnego paliwa nazwany „wbudowaną reaktywnością” musiał być skompensowany wprowadzeniem do reaktora substancji pochłaniającej neutrony, bądź to w roztworze kwasu borowego w wodzie chłodzącej rdzeń, bądź to w postaci wypalających się substancji pochłaniających neutrony. To podejście stwarzało poważne problemy eksploatacyjne. Rozwiązanie tego problemu upatrywano w wykorzystaniu toru stosowanego w mieszaninie z uranem lub w postaci oddzielnych elementów paliwowych. W początkowym okresie tor stanowił pochłaniacz neutronów, ale w trakcie eksploatacji pojawił się izotop rozszczepialny, kompensujący wypalanie U235. Takie próby podejmowano od 1963 roku w reaktorach PWR i BWR, w USA (Elk River, Shippingport i Indian Point) w Niemczech (Lingen). Osobnym kierunkiem zastosowań było wykorzystanie toru w paliwie reaktorów wysokotemperaturowych: w reaktorze DRAGON (Anglia), w reaktorach Peach Bottom i Fort St Vrain (USA) oraz AVR i THTR (Niemcy). We wszystkich wymienionych powyżej zastosowaniach, nie przewidywano przerobu wypalonego paliwa celem wyodrębnienia powstałych w nim izotopów rozszczepialnych.

Zupełnie nowatorskim podejściem do zagadnień wykorzystania toru i uranu do wytwarzania energii jest koncepcja reaktora na stopionych solach (fluorkach) uranu i toru. W reaktorze tym paliwem i chłodziwem są stopione fluorki uranu naturalnego i toru z ciągłym oczyszczaniem tej substancji z produktów rozszczepienia w czasie, gdy ta substancja znajduje się poza reaktorem. Cechą charakterystyczną tego reaktora jest prawie 100% wykorzystanie zarówno toru jak i uranu (w tym U238) do wytwarzania energii. Jeśli do wytworzenia 1 TWh energii elektrycznej, w wykorzystywanych obecnie reaktorach, potrzebne jest wydobycie ze środowiska około 23 tony uranu naturalnego, to w reaktorze na stopionych solach, taką ilość energii elektrycznej wytwarza się kosztem 50 kg toru i 50 kg uranu naturalnego!

Doświadczalny reaktor tego typu został uruchomiony w USA w ORNL i był eksploatowany w latach 1964–1969. Problemy techniczne oraz problemy związane z oczyszczaniem wysokoaktywnych fluorków uranu i toru od produktów rozszczepienia, były przyczyną porzucenia tej technologii. Tym niemniej, w spisie perspektywicznych technologii reaktorów tzw. IV generacji taka technologia figuruje. Dodatkowo, przykład technologii reaktorów energetycznych na stopionych solach pokazuje możliwości pełnego wykorzystania uranu i toru do wytwarzania energii.

W Federacji Rosyjskiej prowadzone są prace nad wykorzystaniem toru w reaktorach WWER. Wykorzystywany jest do wydłużenia kampanii paliwowej reaktora oraz do spalania plutonu militarnego w mieszaninie  $\text{ThO}_2 - \text{PuO}_2$ .

Krajem, który zamierza wykorzystać w pełni cykl paliwowy Th-U, z wydobyciem z wypalonego paliwa izotopów rozszczepialnych uranu, są Indie. Posiadając znaczne zasoby toru i skromne zasoby uranu, kraj ten zamierza wykorzystać właśnie cykl Th-U do wytwarzania energii. W trzech reaktorach badawczych prowadzone są testy paliw na bazie toru. W siedmiu eksploatowanych reaktorach energetycznych typu PHWR (CANDU) pręty z toru są stosowane do spłaszczenia rozkładu wytwarzanej mocy. W reaktorze powielającym FBTR o mocy 40 MWt zastosowano dwutlenek toru w płaszczu powielającym i przeprowadzono przerób materiału tego płaszcza wyodrębniając z niego U233. W budowie jest reaktor powielający PFBR o mocy 500 MWe, który będzie również wykorzystany do wytwarzania U233.

## Podsumowanie

Przedstawione powyżej informacje potwierdzają możliwość wykorzystania toru jako materiału do wytwarzania rozszczepialnego paliwa jądrowego w reaktorach energetycznych. Oprócz niewątpliwych zalet stosowanie toru w energetyce jądrowej niesie za sobą nowe wyzwania: znacznie wyższa aktywność napromieniowanego toru bezpośrednio po jego wyładowaniu z reaktora, większe trudności technologiczne przy przerobie wypalonego paliwa oraz znaczna aktywność wydobytego z toru uranu. Chociaż ta ostatnia właściwość utrudnia stosowanie wydobytego z naświetlonego toru paliwa uranowego do celów „poza

energetycznych”. Dodatkowo, dane jądrowe związane z procesami zachodzącymi w trakcie realizacji cyklu Th-U nie są poznane z dokładnością wymaganą do precyzyjnego zaprojektowania pracy reaktora.

Wykorzystanie toru w energetyce jądrowej wymaga jeszcze przeprowadzenia prac badawczych i budowy zupełnie nowej infrastruktury technicznej: wytwarzania toru i paliwa z zawartością toru, przystosowania reaktorów do naświetlania toru, linii technologicznych przerobu naświetlonego toru, wytwarzania paliwa na bazie aktywnego uranu i toru oraz konstrukcji nowych reaktorów wykorzystujących paliwo na bazie Th-U233.

## Literatura

- [1] World Energy Council: 2004 Survey of Energy Resources 20 Edition, ELSEVIER.
- [2] A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy System. U.S. DOE Nuclear Energy Research Advisory Committee and the Generation IV International Forum. December 2002.
- [3] BELL M.J., 1983 — ORIGEN – the ORNL Isotope Generation and Depletion Code. ORNL 4628, May 1973’, G. Croff,:*ORIGEN 2* A Versatile Computer Code for Calculating the Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials. Nuclear Technology V. 62 September 1983 str. 335
- [4] ENDFPLOT – program prezentujący wykresy danych jądrowych z bibliotek MCNP i/lub bibliotek ENDF – <http://atom.kaeri.re.kr/cgi-bin/endlplot.pl>
- [5] Thorium fuel cycle – potential benefits and challenges. IAEA TECDOC 1450. Vienna 2005.
- [6] Thorium fuel utilization: Options and trends: IAEA TECDOC 1319 Vienna 2002.
- [7] Thorium based fuel options for the generation of electricity: IAEA TECDOC 1155, Vienna 2000.

Stefan CHWASZCZEWSKI, Stanisław KILIM, Magdalena MAŁY

## Application of thorium in the nuclear power

### Abstract

Present-day nuclear power reactors are based mainly on U235 fission for power generation. The abundance of this isotope is only 0,72% in natural uranium, the rest is U238 isotope, non fissionable by thermal neutrons. The small amount of fission takes place in fissionable isotope Pu239 which was created during irradiation of U238 by neutrons. Finally, only about 1% of uranium extracted from environment is used in fission processes and is used for energy generation. The remains go to wastes.

This way most of nuclear material is dissipated. Possibility of effective use of non fissionable isotope U238 to generate fissionable isotopes Pu239 and Pu241 will enlarge world energy resources of the uranium over fifty times. Much greater energy-resources are contained in thorium. Irradiation of

thorium with neutrons leads to fissionable U233 production. Application of these processes for energy generation will enlarge the world nuclear energy resources more than hundredfold.

The utilization both U238 and/or Th232 in the nuclear power generation demands use of new technologies of power reactors – reactors in which the “fertile” materials as U238 or Th232 can be transformed into fissile isotopes Pu239, Pu241 and U233. In case of U238 use for plutonium generation the breeder reactor with high energy neutrons FBR (Fast breeder reactor) can be used. In case of thorium fuel cycle, in which U233 isotope created is, the slightly modified power reactors (e.g. PWR, BWR, CANDU) can be used.

The presented paper gives the basic information about nuclear reactions which lead to generation of fissionable isotopes by irradiation of thorium or depleted uranium (uranium with lower concentration of U235 – mostly 0,2%) with neutrons in power reactors, properties of these isotopes as a nuclear fuel, experience with up to date use of thorium in power reactors and benefits and challenges of such technology.

KEY WORDS: thorium, uranium, nuclear reactor, nuclear fuel