

КРИТЕРИИ ОПТИМИЗАЦИИ И ПЛАНИРОВАНИЕ МАСШТАБНОГО РЕАКТОРНОГО ПРОИЗВОДСТВА ^{252}Cf

© 2013 А.В. Куприянов¹, Е.Г. Романов², В.А. Тарасов²¹

¹ Филиал НИЯУ «МИФИ» «Димитровградский инженерно-технологический институт»,
Ульяновская обл., г. Димитровград

² ОАО «ГНЦ НИИАР», Ульяновская область, Димитровград-10

Поступила в редакцию 26.11.2013

Изложены методы планирования производства ^{252}Cf , приведены результаты численного моделирования. Определены начальные условия, исходные ресурсы, требования и ограничения. Исходя из требуемой годовой производительности по ^{252}Cf , продемонстрированы варианты долгосрочных планов облучения мишеней. Показана возможность получения стартовых композиций улучшенного изотопного состава для производства калифорния.

Ключевые слова: реактор СМ, реакторное облучение, калифорний-252, оптимизация

В НИИАР реализуется полный цикл производства ^{252}Cf : изготовление реакторных мишеней, облучение в реакторе, радиохимическое выделение и изготовление нейтронных источников широкой номенклатуры [1]. Планирование производства калифорния учитывает рыночный спрос, наличие стартовых препаратов трасплутониевых элементов, а также возможности реакторных установок (количество свободных ячеек, требования безопасности и др.).

Непрерывное облучение реакторных мишеней, содержащих стартовый плутоний, с целью получения ^{252}Cf сложно осуществить практически (из-за образования газообразных продуктов деления, распухания сердечника и вероятного разрушения мишени) и неэффективно вследствие превращения полезных «попутных» продуктов (амерция, изотопов кюрия) в осколки деления. В НИИАР достаточно давно разработан многоступенчатый процесс облучения мишеней с трансплутониевыми элементами (ТПЭ) включающий промежуточные этапы радиохимической переработки, необходимые для отделения осколков деления и выделения промежуточных полезных изотопов – ^{242}Pu , ^{243}Am , изотопов кюрия, ^{249}Bk . Полный цикл получения значимых количеств ^{252}Cf весьма длителен и занимает 6-7 лет с момента начала облучения первой мишени с плутонием. Согласно обычной схеме производства [2], в качестве первичного сырья для получения

^{252}Cf используется плутоний, содержащий значительную долю ^{239}Pu (до 10-12%). Изотоп ^{239}Pu обладает высокой способностью к делению под действием нейтронного облучения, содержание этого изотопа определяет энерговыделение в мишени. Для снижения удельного энерговыделения за счет деления, облучение исходного плутония производится в относительно низкопоточных облучательных позициях (например, в реакторе МИР) в течение 3-3,5 лет. В результате, после радиохимической переработки облученных мишеней получают тяжелые изотопы плутония (ТИП) с содержанием ^{242}Pu около 20... 30%. Данный стартовый материал уже можно облучать в высокопоточных устройствах реактора СМ.

Таким образом, весь цикл производства ^{252}Cf включает следующие этапы:

- изготовление мишеней с ТИП;
- двухстадийное реакторное облучение: ТИП → препарат ^{242}Pu → препарат ^{244}Cm ;
- промежуточная радиохимическая переработка: отделение осколков деления, получение препаратов ^{242}Pu , ^{243}Am , ^{244}Cm ;
- изготовление мишеней с ^{244}Cm ;
- реакторное облучение мишеней с ^{244}Cm ;
- промежуточная радиохимическая переработка: отделение осколков деления, получение препаратов тяжелых изотопов кюрия (ТИК с содержанием ^{246}Cm более 30%), ^{249}Bk , ^{252}Cf ;
- реакторное облучение мишеней с ТИК;
- финальная радиохимическая переработка: отделение осколков деления, получение препаратов ТИК, ^{249}Bk , ^{252}Cf .

Скорость трансмутации ядер ТПЭ определяется нейтронно-физическими характеристиками реакторного устройства, в котором реализуется тот или иной этап облучения. Для определения этих характеристик использовалась программа

Куприянов Алексей Владимирович, аспирант, научный сотрудник. E-mail: orip@niiar.ru

Романов Евгений Геннадьевич, кандидат технических наук, начальник лаборатории Отделения радионуклидных источников и препаратов. E-mail: orip@niiar.ru

Тарасов Валерий Анатольевич, заместитель директора Отделения радионуклидных источников и препаратов. E-mail: orip@niiar.ru

МСНР [3]. Состав материальных зон расчетной модели соответствовал стандартно задаваемой модели реактора с уровнем выгорания топлива в активной зоне около 15%. Положение компенсирующих и регулирующих органов системы управления и защиты соответствует среднему по кампании реактора. Во всех ячейках центральной нейтронной ловушки реактора СМ, кроме ячеек с ТПЭ, задавались имитаторы мишеней. В качестве основных регистрируемых нейтронных функционалов были выбраны следующие: плотность потока нейтронов для групп с верхними границами энергий 0,5 эВ, 100 эВ, 0,1 МэВ, 20 МэВ и скорость реакции (n, γ) на ^{59}Co для определения температуры нейтронного газа. В табл.1 приведены результаты расчета для различных стартовых композиций и облучательных позиций

Для расчетов показателей накопления изотопов ТПЭ использовалась программа ChainSolver [4], которая позволяет учитывать самоэкранирование резонансов сечения поглощения изотопов, депрессию потока тепловых нейтронов в мишени, а также график работы реактора и перестановки облучаемой мишени в позиции с различным спектром нейтронов.

При планировании производства ^{252}Cf необходимо определить начальные условия или исходный ресурс, требования и ограничения, а также целевую функцию. Исходный ресурс определяется количеством стартовых материалов на складе, в пер-

вую очередь, ТИП, ^{244}Cm и ТИК различного изотопного состава. Ограничения задачи планирования вытекают из кинетики процесса накопления целевых радионуклидов, а также из требований безопасной эксплуатации мишеней при облучении в реакторе. В качестве целевой функции рассматривается требуемая годовая производительность по ^{252}Cf . Воспроизводство и улучшение качества стартовых композиций (в первую очередь, ТИК) являются, по сути, дополнительными требованиями, обеспечивающими стабильность и долгосрочность производства ^{252}Cf . Далее этапы производства рассматриваются более детально.

Величина загрузки ТИП и ^{244}Cm в одну мишень ограничена по условиям теплосъема допустимым значением линейной тепловой мощности (не более 120 кВт/м в ячейках центральной ловушки). Энерговыделение в мишени определяется скоростью деления ядер в объеме стартового материала и меняется в процессе облучения. На рис.1 приведена временная зависимость величины линейной тепловой мощности мишени с ТИП для двухстадийного облучения. Поскольку на старте в ТИП велико содержание интенсивно делящихся изотопов ^{239}Pu и ^{241}Pu , первая стадия облучения проводится в канале отражателя реактора СМ (где поток нейтронов существенно ниже, чем в центральной ловушке), вторая – в центральной ловушке.

На первом этапе облучения в канале отражателя реактора примерно в течение года содержа-

Таблица 1. Нейтронно-физические характеристики мишеней с ТПЭ

Место облучения	Стартовый препарат в мишени	Плотность потока нейтронов, $\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$		Температура нейтронного газа, К
		$E \leq 0.5 \text{ эВ}$	$0,5 \text{ эВ} < E \leq 100 \text{ эВ}^*$	
Канал отражателя	ТИП	4,10E+14	2,81E+13	482
Малая ловушка	ТИП	4,32E+14	7,81E+13	578
Центр. ловушка, яч. 13	Pu-242	1,49E+15	1,11E+14	467
Центр. ловушка, яч. 19	Cm-244	1,54E+15	1,12E+14	457
Центр. ловушка, яч. 22	ТИК	1,55E+15	1,09E+14	467

*на единицу летаргии

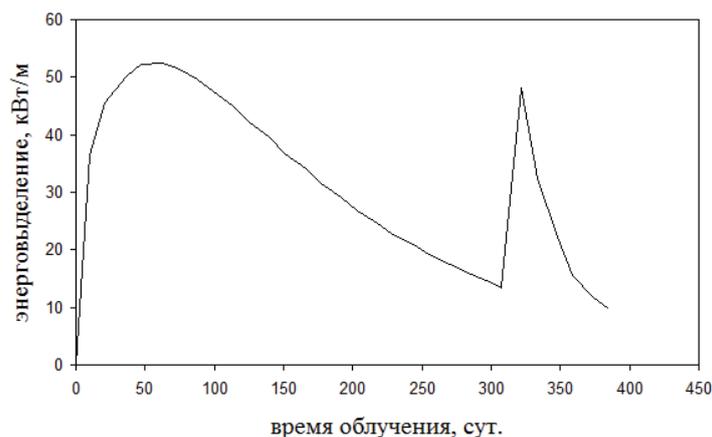


Рис. 1. Зависимость линейной мощности мишени с ТИП от времени облучения

ние ^{242}Pu в ТИП растет, далее, для интенсификации накопления ^{244}Cm , мишень целесообразно перегрузить в более высокопоточное облучательное устройство – центральную ловушку. Максимум концентрации ^{244}Cm достигается примерно через год облучения, дальнейшее облучение мишени с ТИП нецелесообразно.

В последнее время в связи с востребованностью ближних к активной зоне каналов отражателя (в том числе Д8 и Д10) под накопление высокоактивного ^{60}Co и ^{192}Ir часть мишеней с ТИП облучается по одностадийной схеме в новом облучательном объеме, расположенном в активной зоне – малой ловушке [5].

Цель следующего, второго этапа – получение ТИК. На рис. 2 приведена динамика изменения содержания изотопов кюрия при облучении препарата ^{244}Cm в центральной ловушке реактора СМ. Рост массы ^{246}Cm не велик, но за счет выгорания ^{244}Cm происходит быстрое увеличение его содержания в смеси изотопов. Выбор сроков облучения для этого этапа не столь очевиден, и варьируется от одного до двух лет (фактически время облучения выбирается в зависимости от требуемого качества ТИК, которое определяется содержанием ^{246}Cm и ^{248}Cm).

На третьем этапе мишени с ТИК облучаются в центральной ловушке с целью получения целевого калифорния. Динамика роста массы ^{252}Cf показана на рис. 3. Примерно через год после начала облучения рост замедляется, поэтому мишень выгружается для переработки.

При анализе накопления изотопа ^{252}Cf необходимо учитывать тот факт, что при радиохимической переработке и изготовлении новых мишеней масса целевых изотопов ТПЭ снижается вследствие технологических потерь, величина которых суммарно достигает до 15-20% на каждом этапе.

Таким образом, ограничения и оптимизационные критерии для рассматриваемых задач могут быть сформулированы следующим образом:

- значение предельной линейной тепловой мощности определяет максимальную загрузку препаратов ТПЭ в одну мишень;
- загрузка ТИК в одну мишень выбирается исходя из требуемого годового объема производства ^{252}Cf ;
- максимум выхода ^{244}Cm достигается при последовательном облучении в течение одного года в отражателе и последующего года облучения в центральной ловушке реактора СМ (допустимое время перестановки мишени определяется исходя из сопоставления значений предельно допустимой

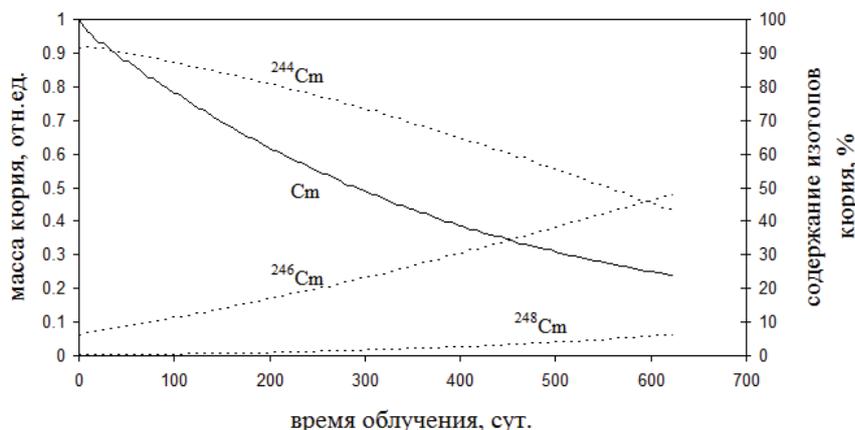


Рис. 2. Масса кюрия в мишени и изотопный состав в зависимости от времени облучения на втором этапе (этап получения ТИК из ^{244}Cm)

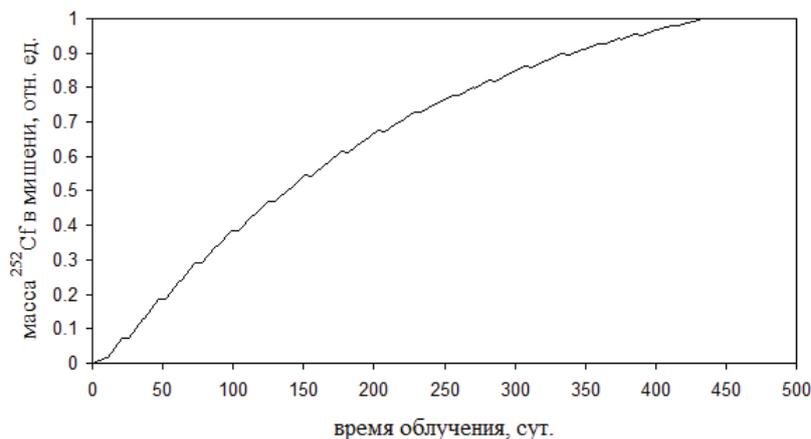


Рис. 3. Зависимость массы ^{252}Cf от времени облучения мишени с ТИК

тепловой мощности и ожидаемого всплеска энерговыделения за счет увеличения скорости деления);

- длительность реакторного облучения препарата ^{244}Cm определяется требуемым для конкретного варианта планирования производства ^{252}Cf изотопным составом ТИК (содержанием изотопов ^{246}Cm и ^{248}Cm);

- время облучения мишени с ТИК определяется исходя из требуемого годового объема производства ^{252}Cf с учетом, что скорость накопления ^{252}Cf существенно уменьшается после годового облучения в центральной ловушке;

- на всех этапах облучения мишеней следует учитывать ограниченность реакторного ресурса (количества доступных облучательных ячеек);

- в качестве основной цели рассматривается обеспечение требуемой годовой производительности ^{252}Cf , а в качестве дополнительных – обеспечение расширенного воспроизводства и улучшения качества стартовых композиций, в первую очередь ТИК.

Используя сформулированные выше критерии и ограничения, а также результаты детального анализа кинетики накопления, рассмотрим две различные концепции долгосрочного производства ^{252}Cf . Понятно, что реализация обеих концепций должна обеспечить выполнения основной цели, а именно требуемого годового производства ^{252}Cf на долгосрочную перспективу.

Для наиболее полного отражения нюансов предлагаемых схем разделим ТИК на три вида – по содержанию ^{248}Cm :

ТИК-1 – содержание ^{248}Cm более 10 % (получаем, наряду с ^{252}Cf , облучая ТИК-2 в течение 1 года);

ТИК-2 – содержание ^{248}Cm в диапазоне 5-10 % (получаем, облучая препарат ^{244}Cm в течение двух лет);

ТИК-3 – содержание ^{248}Cm менее 5 % (получаем, облучая ^{244}Cm в течение 1 года).

Очевидно, что наиболее ценным продуктом является ТИК-1, позволяющий оперативно получать требуемое количество ^{252}Cf .

Суть первой концепции заключается в следующем:

- Для обеспечения производства ^{252}Cf в первые три года облучаем мишени с имеющимся ТИК-2. Попутно получаем некоторое количество ТИК-1, меньшее по сравнению с первоначальной массой ТИК-2 на величину выгорания.

- Следующая задача состоит в том, чтобы восполнить потери ТИК-2 получив такое количество ТИК-3 из ТИП, чтобы, смешав его с ТИК-1, получить исходный ТИК-2 той же массы. Расчетным путем определяется количество мишеней с ^{244}Cm , облучив которые в течение года можно получить необходимое количество ТИК-3.

- Затем определяется необходимое количество ТИП, облучив которое получаем ^{244}Cm . Определено, что для получения ^{244}Cm в количестве,

необходимом для изготовления одной мишени, требуется последовательно облучить 3 мишени с ТИП, сначала 1 год в отражателе, затем 1 год в центральной ловушке.

Таким образом, получая ^{252}Cf в нужных количествах, одновременно обеспечиваем нулевой баланс ТИК-2 на складе (расход равен прибыли). Достоинство данной схемы – сравнительно малое число занимаемых облучательных позиций и быстрый выход на стационарный уровень производства ^{252}Cf . Недостаток – данная схема не обеспечивает расширенного воспроизводства препаратов ТИК и улучшения их качества.

Основная идея второй концепции производства (рис.4) – перевести имеющиеся на складе препараты ТИП и ТИК-2 в препараты ТИК-2 и ТИК-1 соответственно. Для этого, облучая каждый год в течение 3-х лет по одной мишени с ТИК-2, получаем ТИК-1 и требуемое количество ^{252}Cf . Параллельно стартует процесс наработки ТИК-2 из ТИП. Начиная облучение с 12 мишеней с ТИП, после двух лет облучения получаем количество препарата, необходимое для изготовления 3-х мишеней с препаратом ^{244}Cm . При облучении трех мишеней с ^{244}Cm в течение двух лет получаем требуемое количество ^{252}Cf и количество ТИК-2, необходимое для изготовления одной мишени.

Достоинство этой схемы – расширенное воспроизводство препаратов ТИК и улучшение их изотопного состава. Основной недостаток – потребность в большом количестве облучательных ячеек, продолжительный выход на стационарный уровень производства.

Таким образом, применительно к высокопоточному реактору СМ:

- сформулированы критерии оптимизации реакторного производства ^{252}Cf при долгосрочном планировании;

- приведены результаты расчетов нейтронно-физических характеристик мишеней с ТПЭ при варьировании состава стартовой композиции и облучательных позиций;

- построена модель трансмутации ядер от плутония до калифорния, включающая цепочку превращений и набор ядерно-физических констант нуклидов. Модель трансмутации отлажена по результатам анализа облученных в 2000-2005 годах мишеней с ТПЭ;

- изучены основные закономерности ядерной трансмутации при различных вариантах построения реакторного процесса;

- продемонстрированы варианты долгосрочных планов облучения мишеней с ТПЭ, учитывающие конкретные требования к производству ^{252}Cf и отвечающие сформулированным оптимизационным критериям.

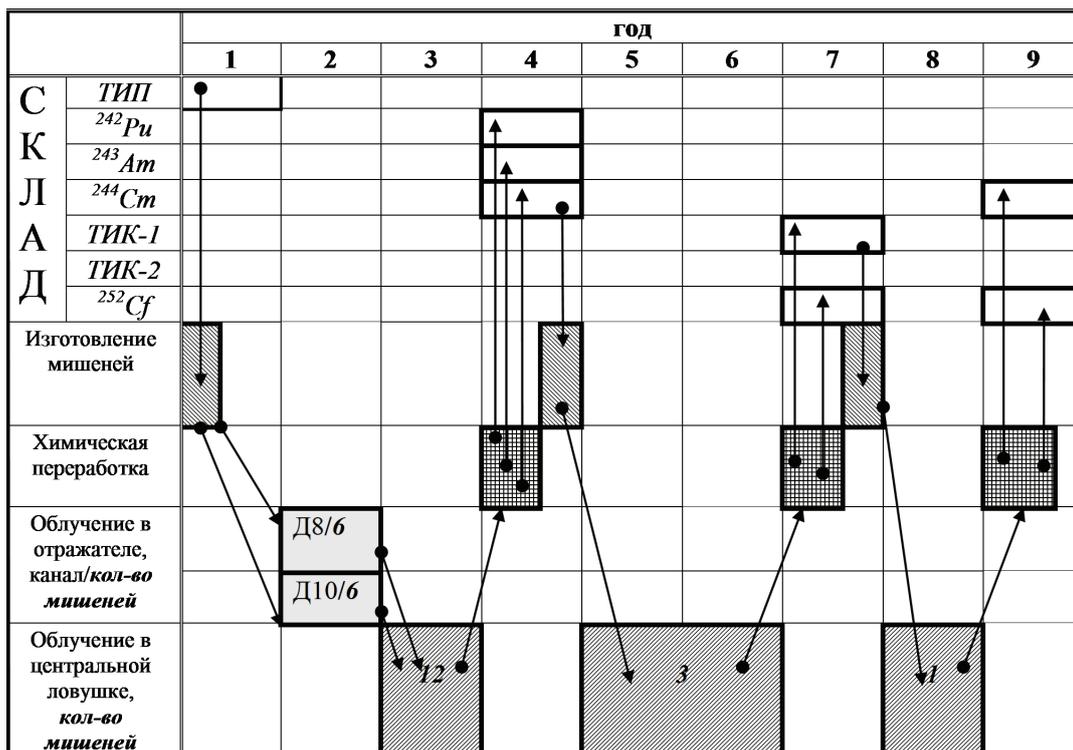


Рис. 4. Долгосрочный план производства ²⁵²Cf (вторая концепция производства)

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Круглов А.К., Рудик А.П. Реакторное производство радиоактивных нуклидов. М.: Энергоатомиздат, 1985.
2. Технология трансплутониевых элементов / В.М. Николаев, Е.А. Карелин, Р.А. Кузнецов, Ю.Г. Топоров. Димитровград, 2000.
3. Briesmeister J.F., Ed., "MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C," LA-13709-M, April 2000.
4. Radiation Safety Information Computational Center Newsletters, Oak Ridge National Laboratory, USA, No.492, January 2006. URL: <http://www.rsicc.ornl.gov/Newsletters/news.06/news06jan.pdf> (дата обращения 23.10.2013)
5. Куприянов А.В., Малков А.П., Романов Е.Г. и др. Использование дополнительных облучательных объемов в активной зоне реактора СМ для производства ²⁴⁴Cm // Тезисы докладов международной научной конференции «Исследовательские реакторы в разработке ядерных технологий нового поколения и фундаментальных исследованиях». ОАО ГНЦ НИИАР, 2011.

THE CRITERIA FOR OPTIMIZATION AND SCHEDULING OF REACTOR LARGE-SCALE ²⁵²CF PRODUCTION

© 2013 A.V. Kupriyanov¹, E.G. Romanov², V.A. Tarasov²

¹ Branch of National Research Nuclear University "MEPhI" "Dimitrovgrad Engineering Institute of Technology", Ulyanovsk Region, Dimitrovgrad
² JSC "SSC RIAR", Dimitrovgrad, Russia

Methods for production scheduling of ²⁵²Cf are described, the results of numerical modeling are given. Initial conditions, the resources, requirements and limitations are defined. Based on the required annual ²⁵²Cf production amounts, variants of long-term scheduling of target irradiation are demonstrated. Possibility of obtaining starting compositions with improved isotope composition for production of californium is shown.

Keywords: reactor SM, irradiation, californium-252, scheduling.

Aleksey Kupriyanov, Graduate Student, Researcher of Isotope Production Laboratory.
 Valery Tarasov, Deputy Director of Isotope Department.
 E-mail: orip@niiar.ru
 Evgeny Romanov, Candidate of Technics, Head of Isotope Production Laboratory. E-mail: orip@niiar.ru