

УДК 621.039.531

## ОБОСНОВАНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ НОВЫХ ОБЛУЧАТЕЛЬНЫХ ОБЪЕМОВ В АКТИВНОЙ ЗОНЕ РЕАКТОРА СМ ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ИЗОТОПОВ ТРАНСПЛУТОНИЕВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ

© 2013 А.В. Куприянов<sup>1</sup>, А.П. Малков<sup>2</sup>, Е.Г. Романов<sup>2</sup>, В.А. Тарасов<sup>21</sup>

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

<sup>2</sup> ОАО «ГНЦ НИИАР», Ульяновская область, Димитровград-10

Поступила в редакцию 26.11.2013

С применением методов численного моделирования проведена оценка эффективности накопления трансплутониевых элементов в облучательных объемах исследовательского реактора СМ. Показано, что за счёт более жесткого спектра нейтронов накопление целевого <sup>244</sup>Cm происходит интенсивнее в новых облучательных объемах активной зоны реактора.

Ключевые слова: реактор СМ, трансплутониевые элементы, нейтронная ловушка.

Реактор СМ – один из двух действующих реакторов мира с рекордно высокой плотностью потока (до  $5 \cdot 10^{19} \text{ м}^{-2} \text{ с}^{-1}$ ) тепловых нейтронов в центральной нейтронной ловушке. Высокая плотность потока нейтронов позволяет получать в таких реакторах изотопы трансурановых элементов в значимых количествах. В условиях дефицита облучательных ячеек в высокопоточных устройствах реактора и необходимости реализации программы производства трансплутониевых элементов актуально исследование альтернативных облучательных объемов. В цепочке ядерных превращений, реализуемых на этапе получения <sup>244</sup>Cm, присутствуют изотопы с большим резонансным интегралом захвата (более  $10^3$  барн), поэтому предполагается, что более интенсивное накопление кюрия должно происходить в активной зоне реактора, характеризующейся большими значениями плотности потока тепловых нейтронов.

Для высокопоточного реактора СМ разработана тепловыделяющая сборка (ТВС) типа 184.10 с экспериментальным каналом диаметра 24,5 мм, расположенным в ее угловой части [1]. В таком канале возможно проведение облучений, как образцов конструкционных материалов, так и стартовых композиций для наработки радионуклидов. Облучение мишеней в активной зоне проводится также в ТВС типа 184.09, в которых организованы 4 канала диаметром 11,9 мм. Осо-

бенностью ячеек активной зоны, расположенных в тепловыделяющих сборках, является жесткий спектр нейтронов, поэтому в них производятся, преимущественно, радионуклиды, которые образуются в результате пороговых реакций, например <sup>33</sup>P, <sup>58</sup>Ni. Экспериментальный канал увеличенного диаметра в ТВС типа 184.10 позволяет в значительной мере изменить нейтронно-физические характеристики облучаемых объемов, а именно – смягчить жесткий спектр нейтронов за счёт увеличения содержания замедлителя. Это представляет интерес для изучения особенностей наработки радионуклидов в новых условиях, в частности изотопов трансплутониевых элементов (ТПЭ), которые могут достаточно эффективно нарабатываться в спектре с высокой долей резонансных нейтронов.

Действующая программа производства ТПЭ в ОАО ГНЦ НИИАР состоит из трех этапов [2]:

1. Накопление <sup>242</sup>Pu, <sup>243</sup>Am и <sup>244</sup>Cm из тяжелых изотопов плутония (ТИП). Этот этап является самым масштабным с точки зрения количества одновременно загружаемых в реактор мишеней. Штатный вариант предусматривает облучение в специальных каналах Д8 и Д10 отражателя реактора СМ, обеспечивающих требуемое охлаждение мишеней. Цепочка трансмутации, реализуемая на первом этапе, показана на рис. 1.

2. Накопление тяжелых изотопов кюрия (ТИК) облучением <sup>244</sup>Cm в центральной нейтронной ловушке реактора СМ (рис. 2).

3. Накопление берклия, калифорния и эйнштейния облучением ТИК, так же производится в центральной нейтронной ловушке.

Каналы отражателя Д8 и Д10 в последнее время задействованы под накопление высокоактивного <sup>60</sup>Co и <sup>192</sup>Ir, поэтому реализация штатной схемы получения <sup>244</sup>Cm приведет к снижению

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

Малков Андрей Павлович, доктор технических наук, начальник отдела ядерной безопасности. E-mail: talkovap@mail.ru

Романов Евгений Геннадьевич, кандидат технических наук, начальник лаборатории. E-mail: oip@niiar.ru

Тарасов Валерий Анатольевич, заместитель директора отделения. E-mail: oip@niiar.ru

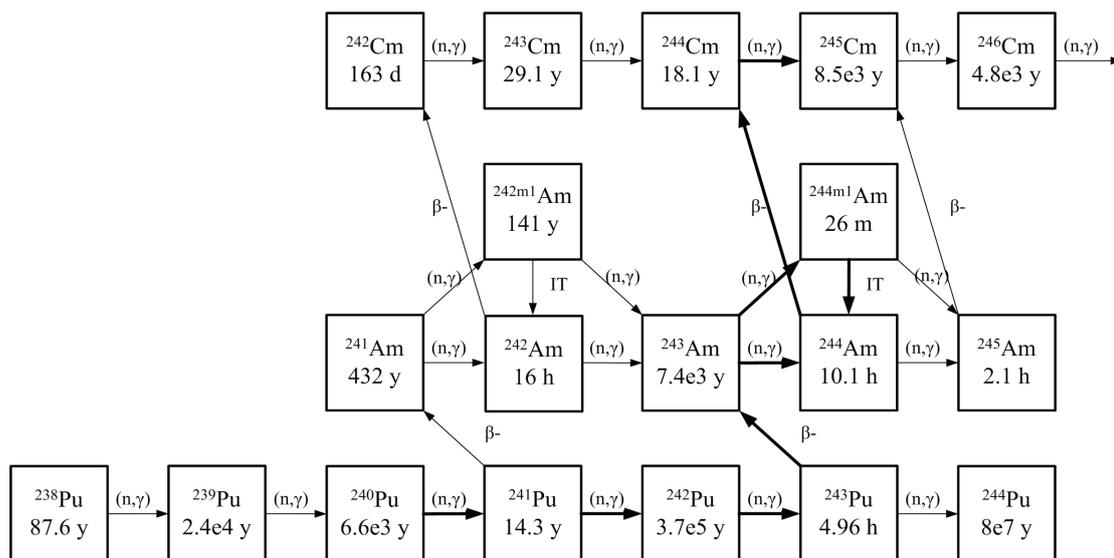


Рис. 1. Цепочка ядерных превращений, реализуемая на этапе получения <sup>244</sup>Cm из тяжелых изотопов плутония

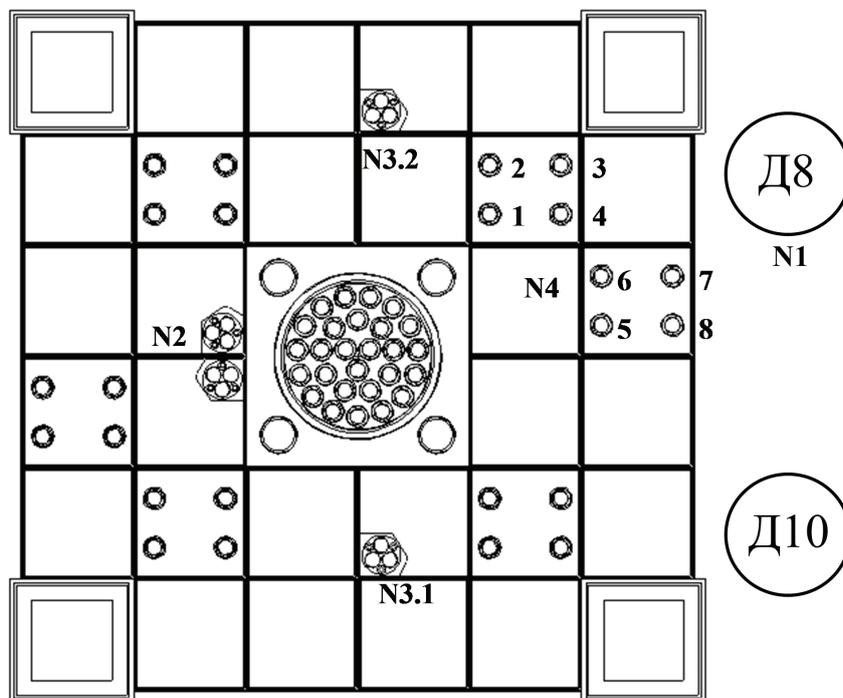


Рис. 2. Расчетные варианты загрузки мишеней с ТПЭ в активной зоне реактора СМ

объемов производства этих востребованных радионуклидов, и поиск альтернативных вариантов реализации первого этапа программы становится особенно актуальным. Наличие ТВС типа 184.10. позволяет создавать дополнительные облучательные объемы с высокой плотностью потока нейтронов. Например, если две сборки такого типа разместить на границе центральной замедляющей полости, как показано ниже на рис.2, то расположенные в них каналы образуют дополнительные облучательные объёмы – «малую нейтронную ловушку» [3, 4].

В облучательных ячейках активной зоны реактора (в том числе, «малой ловушке») можно ре-

ализовать приемлемую скорость трансмутации (плотность потока нейтронов достаточно велика) и требуемые условия охлаждения мишеней.

Определяющими каналами превращений ядер (рис. 1) при облучении нейтронами являются следующие:

нейтронно-захватные реакции на ядрах плутония, вследствие чего происходит накопление <sup>242</sup>Pu. Из него по (n,γ) реакции образуется <sup>243</sup>Pu, из которого β-распадом получается <sup>243</sup>Am;

нейтронно-захватная реакция на <sup>243</sup>Am, из которого получается стабильный и метастабильный <sup>244</sup>Am, из которого, в свою очередь, β-распадом получается <sup>244</sup>Cm;

**Таблица 1.** Константы, определяющие скорости реакций превращения ядер для получения  $^{244}\text{Cm}$

| Изотоп            | $\sigma_c$ , барн | $RI_c$ , барн | $\sigma_f$ , барн | $RI_f$ , барн |
|-------------------|-------------------|---------------|-------------------|---------------|
| $^{240}\text{Pu}$ | 289,5             | 8100          | 0,056             | 8,8           |
| $^{241}\text{Pu}$ | 358,2             | 162           | 1011,1            | 570           |
| $^{242}\text{Pu}$ | 18,5              | 1115          | 0,2               | 5             |
| $^{243}\text{Am}$ | 75,1              | 1820          | 0,1983            | 9             |
| $^{244}\text{Cm}$ | 15,2              | 650           | 1,04              | 12,5          |

деление ядер  $^{241}\text{Pu}$  и  $^{245}\text{Cm}$  тепловыми и резонансными нейтронами, которое дает основной вклад в энерговыделение, и является лимитирующим фактором для максимальной массы стартового материала в одной мишени.

Скорости перечисленных выше реакций определяются характеристиками нейтронного поля (в отличие от скоростей радиоактивного распада) и поэтому зависят от вариантов облучения. В табл. 1 представлены значения сечений ( $\sigma$ ) и резонансных интегралов ( $RI$ ) нейтронных реакций захвата (индекс  $c$ ) и деления ( $f$ ) [5].

Для  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  и  $^{243}\text{Am}$  резонансный интеграл захвата ( $RI_c$ ) существенно превышает сечение захвата тепловых нейтронов ( $\sigma_c$ ). Следовательно, увеличение доли резонансных нейтронов должно положительно сказываться на динамике накопления кюрия. Для подтверждения этого предположения был произведен ряд расчетов нейтронно-физических характеристик условий облучения в исследуемых объемах при различных компоновках активной зоны и моделирование трансмутации нуклидов при облучении в них мишеней с ТПЭ. Допустимые варианты расположения ТВС с экспериментальными каналами показаны на рис. 2, где:

N1 – 10 мишеней в канале Д8, штатный вариант;

N2 – 6 мишеней в малой нейтронной ловушке;

N3.1 и N3.2 – по три мишени в составе ТВС 184.10 в ячейках активной зоны (различаются расположением ТВС относительно центра активной зоны);

N4 – по четыре мишени в составе ТВС 184.09 в ячейках активной зоны.

Для определения нейтронно-физических характеристик облучательных объемов используется программа MCNP 4C [6], моделирующая трехмерный транспорт нейтронов. 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 все ячейки центральной нейтронной ловушки были помещены имитаторы мишеней. В качестве основных регистрируемых нейтронных функци-

оналов были выбраны плотность потока нейтронов и скорость реакции ( $n, g$ ) на  $^{59}\text{Co}$  для определения температуры нейтронного газа (Тн.г.). Плотности потока нейтронов рассчитывались для групп с верхними границами энергий 0,5 эВ, 100 эВ, 0,1 МэВ, 20 МэВ.

Для прогнозных расчетов показателей накопления ТПЭ использовалась программа ChainSolver [7]. Программа позволяет учитывать самоэкранирование резонансов сечения поглощения изотопов, депрессию потока тепловых нейтронов в мишени, а также реальный график облучения (график работы реактора и перестановки облучаемой мишени в позиции с различными потоком и спектром нейтронов).

Сердечник мишени представляет собой алюминиевую матрицу, содержащую 6 грамм плутония следующего состава:  $^{238}\text{Pu}$  – 4,1%,  $^{239}\text{Pu}$  – 5,0%,  $^{240}\text{Pu}$  – 58,8%,  $^{241}\text{Pu}$  – 5,7%,

$^{242}\text{Pu}$  – 26,4% (типичный изотопный состав).

Масса плутония определена исходя из условий охлаждения для штатного варианта. Результаты расчета НФХ представлены в табл. 2.

Из данных, представленных в табл. 2, следует ряд важных для дальнейших вариантных расчетов трансмутации выводов:

1. Плотность потока тепловых нейтронов (Е0,5 эВ) максимальна в канале отражателя (N1) и малой нейтронной ловушке (N2) реактора. В остальных рассматриваемых ячейках эта величина в 23 раза меньше.

2. Плотность потока резонансных нейтронов (0,5 < Е < 100 эВ) минимальна в канале отражателя (N1) и существенно больше во всех ячейках активной зоны (N2N4).

3. Жесткость спектра нейтронов (отношение плотности потока резонансных нейтронов к плотности потока тепловых) минимальна в канале отражателя (N1), выше в малой ловушке (N2) и достигает максимума в ячейках ТВС 184.09.

Удельный выход кюрия при облучении плутония возрастает для любого варианта с использованием ячеек активной зоны (в сравнении со штатным вариантом N1) и достигает максимума для малой ловушки реактора CM (N2), что показано на рис. 3. Важной характеристикой получаемого кюрия является относительное содержание  $^{245}\text{Cm}$ , деление которого определяет энерговыде-

Таблица 2. Нейтронно-физические характеристики объемов облучаемых мишеней

| № варианта | Плотность потока нейтронов с энергиями               |  | Т <sub>н.г.</sub> , К | Жесткость спектра $\Phi_{res}/\Phi_{th}$ |
|------------|--|--|-----------------------|--|
|            | менее 0,5 эВ, $10^{14} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$ | от 0,5 до 100 эВ, $10^{13} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1} *$ |                       |  |
| N1         | 4,50   | 3,30   | 490                   | 0,073                                    |
| N2         | 4,32   | 7,81   | 578                   | 0,181                                    |
| N3.1       | 1,88   | 8,13   | 788                   | 0,433                                    |
| N3.2       | 1,71   | 7,35   | 776                   | 0,429                                    |
| N4.1       | 1,30   | 8,04   | 1012                  | 0,617                                    |
| N4.2       | 1,21   | 7,70   | 1069                  | 0,637                                    |
| N4.3       | 1,04   | 7,07   | 1069                  | 0,680                                    |
| N4.4       | 1,22   | 7,74   | 1047                  | 0,633                                    |
| N4.5       | 1,30   | 8,32   | 1036                  | 0,641                                    |
| N4.6       | 1,20   | 7,69   | 1016                  | 0,641                                    |
| N4.7       | 1,49   | 6,78   | 855                   | 0,455                                    |
| N4.8       | 1,59   | 7,16   | 870                   | 0,450                                    |

\*на единичный интервал летаргии

ление в мишени и ограничивает допустимую массу стартового плутония. По сути, доля  $^{245}\text{Cm}$  является характеристикой качества препарата.

Относительное содержание  $^{245}\text{Cm}$  в кюриии определяется жесткостью спектра нейтронов, в котором происходило облучение – оно тем выше, чем выше жесткость. Необходимость в минимизации содержания этого изотопа продиктована тем, что при дальнейшем облучении кюриевых мишеней в центральной нейтронной ловушке (второй этап – получение ТИК) доля  $^{245}\text{Cm}$  определяет максимум энерговыделения. Исходя из условий охлаждения максимальная мощность мишеней с ТПЭ, облучаемых в центральной нейтронной ловушке, не должна превышать 30 кВт/

мишень. Высокое содержание  $^{245}\text{Cm}$  для вариантов N3 – N4 не позволяет продолжить облучение кюриии в центральной нейтронной ловушке. Поэтому стартовая масса кюриии для продолжения облучения должна быть снижена, или, что более рационально с точки зрения использования облучательных объемов, доля  $^{245}\text{Cm}$  в полученной смеси должна быть уменьшена до ~3%. Для этого необходимо дооблучить мишени в канале отражателя Д8 или Д10 с более мягким спектром, “сжигая” тем самым вредный  $^{245}\text{Cm}$ .

На рис. 4 и 5 представлены результаты расчетов содержания  $^{245}\text{Cm}$  и энерговыделения в мишени при двухэтапном облучении. Всплеск энерговыделения, реализуемый в мишенях, облучен-

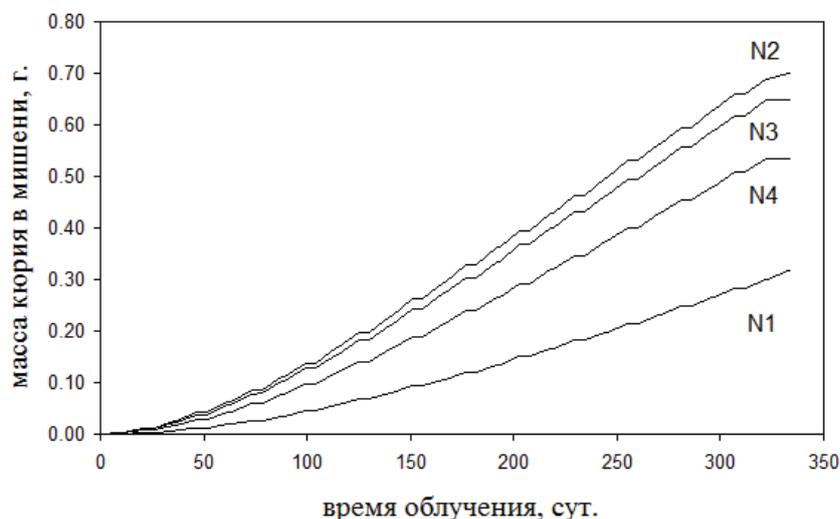


Рис. 3. Масса кюриии в мишени в различных вариантах облучения

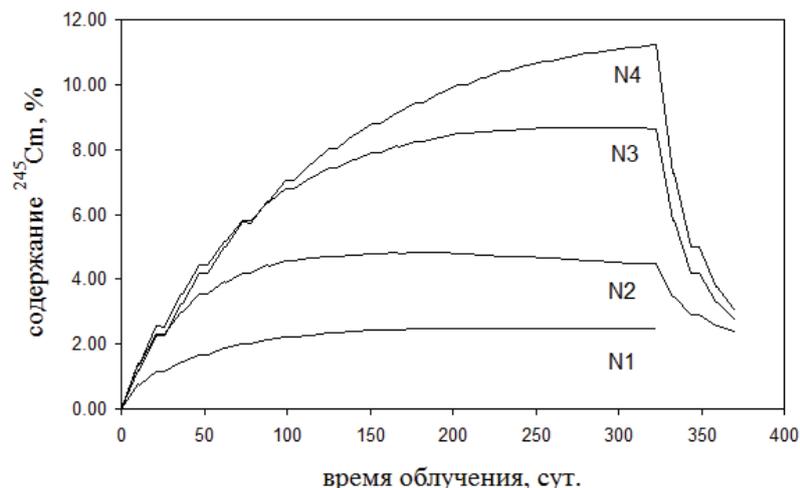


Рис. 4. Относительное содержание <sup>245</sup>Cm в различных вариантах облучения

ных в ТВС 184.09 (варианты N4) превышает допустимую для каналов отражателя Д8 или Д10 величину (20 кВт/мишень), поэтому первоначальная загрузка плутония при такой схеме должна быть снижена на 30%.

В табл. 3 представлены обобщенные характеристики накапливаемых продуктов трансплутониевых элементов (ТПЭ) для рассматриваемых вариантов.

Для двухступенчатых вариантов число кампаний дооблучения (длительностью 10-11 суток) в каналах отражателя выбрано исходя из допустимого содержания <sup>245</sup>Cm – около 3%. Соответственно, чем выше была начальная жесткость спектра (сравниваем N2, N3 и N4), тем более длительное дооблучение требуется. Для оценки эффективности наработки целевого про-

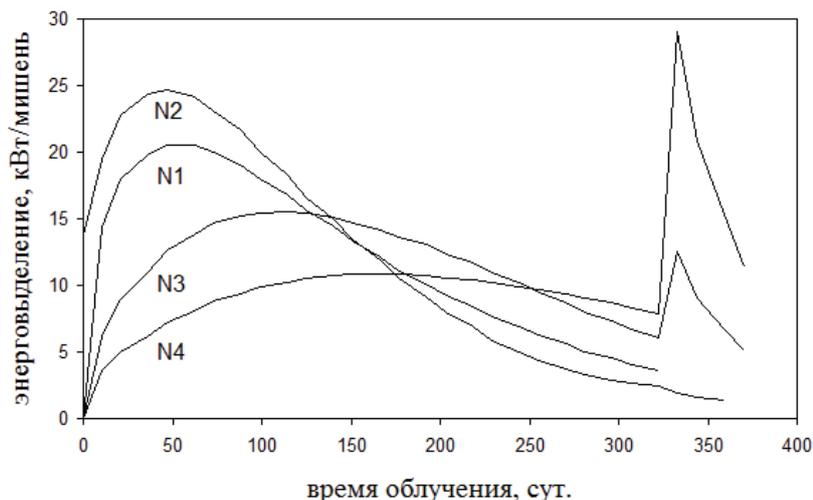


Рис. 5. Энерговыделение в мишени в различных вариантах облучения

Таблица 3. Массы элементов и изотопный состав при различных вариантах облучения.

| Характеристика            | 1 год N1 | 1 год N2 -><br>1 камп. N1 | 1 год N3 -><br>3 камп. N1 | 1 год N4 -><br>4 камп. N1 |
|---------------------------|----------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|
| Масса Am, г               | 0,41     | 0,44                      | 0,42                      | 0,41                      |
| Масса Cm, г               | 0,34     | 0,65                      | 0,67                      | 0,58                      |
| Доля <sup>244</sup> Cm, % | 86,04    | 88,58                     | 87,16                     | 85,47                     |
| Доля <sup>245</sup> Cm, % | 2,28     | 3,22                      | 3,06                      | 2,84                      |
| Доля <sup>246</sup> Cm, % | 1,87     | 3,66                      | 4,00                      | 3,50                      |
| Масса Pu, г               | 2,01     | 1,33                      | 1,40                      | 1,70                      |
| Доля <sup>241</sup> Pu, % | 5,01     | 2,07                      | 7,63                      | 13,05                     |
| Доля <sup>242</sup> Pu, % | 87,95    | 94,41                     | 83,63                     | 75,63                     |
| $m_{Cm}/m_{FP}^*$         | 0,104    | 0,183                     | 0,192                     | 0,174                     |

\* $m_{Cm}/m_{FP}$  – отношение массы кюрия к массе осколков деления

дукта на единицу массы стартового плутония в табл. 3 приведено отношение массы накапливаемого кюрия к массе производимых при этом осколков деления.

Таким образом, использование облучательных объемов в активной зоне реактора СМ (варианты N2 – N4) является реальной альтернативой каналам отражателя (штатный вариант N1). По скорости накопления целевого продукта и эффективности, выраженной отношением массы накопленного кюрия к массе произведенных при этом продуктов деления, варианты (N2 – N4) превосходят вариант (N1) в ~2 раза.

Вариант с «малой ловушкой» (N2), реализуемый на практике [3], имеет ограничения при формировании картограммы активной зоны. Создаваемая при этом полость замедления асимметрична и вносит неравномерность в распределение нейтронного потока. В ТВС, формирующей малую нейтронную ловушку, граничные твэлы эксплуатируются на пределе допустимых режимов по энерговыделению [4].

С точки зрения практической реализации, вариант с использованием ТВС 184.10 (N3) также приемлем, так как допускает одновременное нахождение четырех таких ТВС в активной зоне, что позволяет загружать суммарно до 12 мишеней. Скорость накопления целевой смеси изотопов кюрия в периферийной ТВС (N3.2) будет несколько меньше (не более чем на 10%) чем в ТВС, граничащей с центральной нейтронной ловушкой (N3.1). В сравнении с вариантом (N4) при двухэтапном облучении всплеск энерговыделения после перестановки в отражатель не превышает допустимые 20 кВт/мишень.

Для реализации варианта N4 необходимо сни-

зить начальную загрузку плутония более чем на 30% по причине значительного превышения допустимого энерговыделения при дооблучении в отражателе. Этот вариант характеризуется наилучшим качеством получаемого плутония – доля интенсивно делящегося  $^{241}\text{Pu}$  на момент окончания облучения превышает 13%,  $^{241}\text{Pu}$  в плутонии нежелателен (как и  $^{245}\text{Cm}$  в смеси изотопов кюрия).

*Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации.*

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Цыканов В.А., Клинов А.В., Старков В.А. и др. Основные итоги первого этапа модернизации активной зоны СМ // Атомная энергия. 2007. Т. 102. Вып. 2. С. 86-92.
2. Курьянов А.В., Романов Е.Г., Тарасов В.А. Планирование реакторного производства  $^{252}\text{Cf}$  // Сборник трудов НИИАР, 2008.
3. Малков А.П., Петелин А.Л., Романов Е.Г. Способ формирования активной зоны исследовательского ядерного реактора. Пат. № 2400838 РФ G21C (05.08.09), БИ № 27, 2010.
4. Малков А.П., Краснов Ю.А., Пименов В.В., и др. Создание дополнительных облучательных объемов с высокой плотностью нейтронного потока в активной зоне реактора СМ. // Известия высших учебных заведений. Ядерная энергетика. 2010. № 4. С.36-44.
5. Mughabghab S.F. National Nuclear Data Center BNL Upton, USA, Atlas of Neutron Resonances, Resonance Parameters and Thermal Cross Sections Z=1-100, 5th Edition, 2006.
6. Briesmeister J.F., Ed., "MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C," LA-13709-M, April 2000.
7. 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 24.10.2013).

## NEW CORE IRRADIATION VOLUMES IN SM REACTOR FOR TRANS-PLUTONIUM ISOTOPES PRODUCTION

© 2013 A.V. Kupriyanov<sup>1</sup>, A.P. Malkov<sup>2</sup>, E.G. Romanov<sup>2</sup>, V.A. Tarasov<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Branch of National Research Nuclear University "MEPhI"  
"Dimitrovgrad Engineering Institute of Technology", Ulyanovsk Region., Dimitrovgrad  
<sup>2</sup> JSC "SSC RIAR", Dimitrovgrad

The possibilities of trans-plutonium isotopes production under neutron irradiation in new positions in the core of research reactor SM were numerically investigated. It is shown that because of more rigid neutron spectra accumulation of  $^{244}\text{Cm}$  is more intense in new irradiation devices.

Keywords: Reactor SM, trans-plutonium elements, neutron trap

*Aleksey Kupriyanov, Graduate Student, Research Fellow of Isotope Production Laboratory. E-mail: orip@niiar.ru*

*Andrei Malkov, Doctor of Technics, Head of Nuclear Safety Department. E-mail: malkovap@mail.ru*

*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*