

УДК 621.039.8.002:621.039.554

ФИЗИЧЕСКАЯ ОПТИМИЗАЦИЯ ОБЛУЧАТЕЛЬНОГО УСТРОЙСТВА ДЛЯ НАКОПЛЕНИЯ КОБАЛЬТА-60 ВЫСОКОЙ УДЕЛЬНОЙ АКТИВНОСТИ В РЕАКТОРЕ БН-600

© 2014 А.В. Варивцев¹, И.Ю. Жемков¹, Е.Г. Романов¹, М.Ю. Тихончев², Ю.Г. Топоров¹

¹ ОАО “ГНЦ НИИАР”, г.Димитровград

² Научно-исследовательский технологический институт им. С.П. Капицы
Ульяновского государственного университета

Поступила в редакцию 16.12.2014

В статье приведены результаты расчётных исследований по физической оптимизации конструкции облучательного устройства, предназначенного для накопления кобальта-60 высокой удельной активности в реакторе БН-600.

Ключевые слова: облучательное устройство, кобальт-60, мишень, активность, замедлитель, гидрид циркония.

В настоящее время в мире наблюдается высокий спрос на гамма-источники на основе кобальта-60 (^{60}Co) с высокой удельной активностью (более 200 Ки/г). ^{60}Co с такими характеристиками широко используется в ядерной медицине, например, в установках “гамма-нож” для телетерапии опухолей, ведущим российским изготовителем источников для которых является ОАО “ГНЦ НИИАР” (г. Димитровград).

Большое количество ячеек бокового экрана (БЭ) в реакторах типа БН (БН-600, БН-800) позволяет разместить значительное число облучательных устройств (ОУ) для наработки целевого радионуклида ^{60}Co . В ранних экспериментах в БЭ реактора БН-600 облучалось несколько опытных ОУ, в которых нарабатывался ^{60}Co с удельной активностью на уровне 90-110 Ки/г для изготовления гамма-источников для технических нужд [1]. Помимо мишеней с кобальтом, ОУ содержало элементы с замедлителем нейтронов гидридом циркония ($\text{ZrH}_{1,85}$) и поглотителем нейтронов – оксидом европия (Eu_2O_3). Замедлитель необходим для повышения скорости захвата нейтронов в сырьевом материале за счёт смягчения спектра нейтронов. Поглотитель, размещённый на периферии ОУ, применялся для снижения утечки тепловых нейтронов за пределы ОУ, ко-

торая могла привести к увеличению энерговыделения в ближайших к ячейке с ОУ ТВС и воспроизводящих сборках бокового экрана.

Для накопления в приемлемые сроки ^{60}Co с удельной активностью более 200 Ки/г в БЭ реактора БН-600 необходимо оптимизировать конструкцию ОУ. Принято решение исключить из конструкции ОУ элементы с поглотителем нейтронов, что позволяет увеличить плотность потока нейтронов и освободить дополнительный объём для размещения замедлителя.

Ниже приведен анализ результатов расчётных исследований по физической оптимизации конструкции экспериментального облучательного устройства для накопления ^{60}Co высокой удельной активности в БЭ реактора БН-600. Учитывая наличие неравномерностей скорости накопления ^{60}Co по высоте и азимуту, в качестве критерия оптимизации использовали достижение значения средней удельной активности ^{60}Co равного ≥ 250 Ки/г. Кроме того, по экономическим соображениям, срок облучения не должен превышать 3-х лет, а суммарная активность ^{60}Co в ОУ должна быть максимальной.

Расчеты нейтронно-физических характеристик (НФХ) ОУ, содержащего мишени с кобальтом, проведены по прецизионному коду MCU-RR [2]. Комплекс программ MCU-RR предназначен для расчёта НФХ ядерных реакторов методом Монте-Карло в произвольной трёхмерной геометрии с детальным учётом энергетической зависимости сечений взаимодействия нейтронов и гамма-квантов с веществом. Рассчитывались распределения плотности потока нейтронов по высоте мишеней, а также скоростей реакций $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ и $^{60}\text{Co}(n, \gamma)^{61}\text{Co}$ и их эффективных сечений, которые затем использовались для расчётов изменения изотопного состава стартового материала под облучением.

Варивцев Артем Владимирович, старший научный сотрудник. E-mail: var3@niiar.ru

Жемков Игорь Юрьевич, кандидат технических наук, начальник лаборатории. E-mail: ziu@niiar.ru

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

Тихончев Михаил Юрьевич, кандидат физико-математических наук, начальник лаборатории. E-mail: tikhonchev@svulsu.ru

Топоров Юрий Геннадьевич, кандидат технических наук, директор Центра Ответственности “Развитие и координация изотопной деятельности”. E-mail: orip@niiar.ru

Для расчёта накопления ^{60}Co использовалась упрощённая цепочка превращений, не учитывающая образование и распад ядер $^{60\text{m}}\text{Co}$, поскольку период полураспада ядер $^{60\text{m}}\text{Co}$ значительно меньше рассматриваемых временных интервалов. Цепочка превращений приведена на рис. 1.

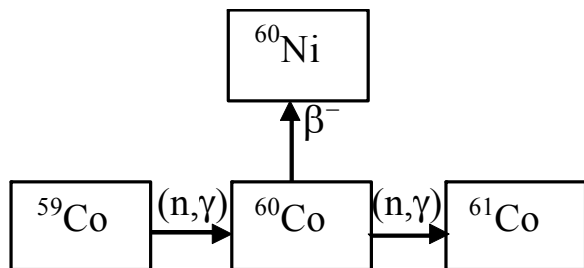


Рис. 1. Цепочка превращений

При моделировании трансмутации использовался следующий график работы реактора: 120

суток на мощности $W = 1470$ МВт (тепловых), остановка 25 суток ($W = 0$ МВт), затем 160 суток на мощности $W = 1470$ МВт (тепловых), остановка 60 суток ($W = 0$ МВт), затем цикл повторяется. Таким образом, КИУМ составляет $\sim 0,77$.

Расчётная модель (РМ) реактора БН-600 для кода MSU была создана на основе бенчмарк модели реактора БН-600 с гибридной активной зоной (а.з.), описанной в работе [3]. Моделировался сектор симметрии (60 градусов), на границах сектора задавались зеркальные граничные условия.

Поскольку переход реактора БН-600 на гибридную а.з. не осуществлён, в РМ сборки с МОХ-топливом заменены на сборки среднего и большого обогащения, а стальные сборки БЭ заменены на воспроизводящие. На рис. 2 приведена схема РМ реактора БН-600.

Поперечное сечение ОУ без элементов с поглотителем, приведено на рис. 3.

Мишени со стартовым материалом (^{59}Co)

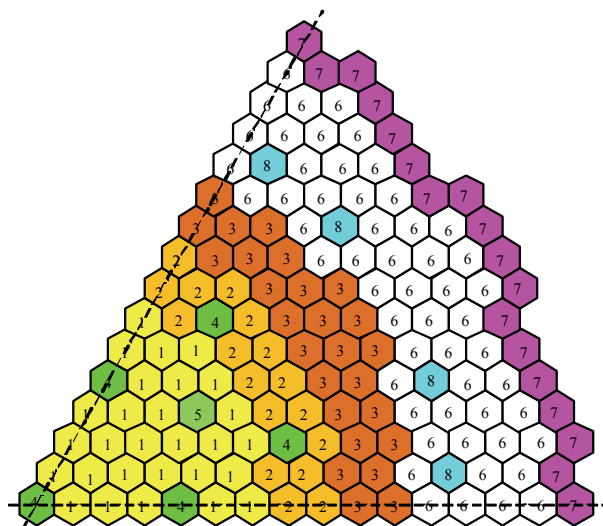


Рис. 2. Схема РМ реактора БН-600:

1 – ТВС зоны малого обогащения, 2 – ТВС зоны среднего обогащения, 3 – ТВС зоны большого обогащения, 4 – компенсирующий стержень СУЗ, 5 – стержень аварийной защиты СУЗ, 6 – сборки боковой зоны воспроизводства, 7 – радиальная периферия (отрагатель), 8 – облучательные устройства для наработки кобальта-60

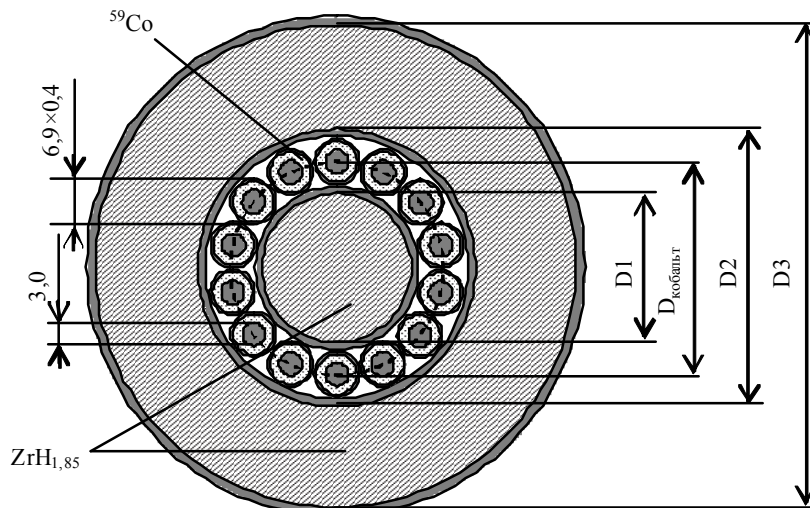


Рис. 3. Поперечное сечение ОУ для наработки ^{60}Co

представляют собой стальную оболочку диаметром 6,9x0,4 мм с расположенным на её оси стальным вытеснителем диаметром 3 мм. В кольцевом зазоре между оболочкой и вытеснителем засыпан кобальт либо в виде кубиков 1x1x1 мм, либо в виде цилиндров диаметром и высотой 1 мм с эффективной плотностью ~4,24 г/см³. Поскольку на торцах а.з. плотность потока и скорость реакции ⁵⁹Co(п, γ)⁶⁰Co ниже, чем в центральной части а.з., стартовый материал располагается так, чтобы его торцы лежали в пределах высоты а.з. Так, моделировалась засыпка на высоту ~90 см (при высоте а.з. ~105 см в “горячем” состоянии). Мишени расположены так, что их центры лежат на окружности диаметром D_{кобальт}. Между мишенями предусмотрен зазор ~2 мм для протечки натрия и снижения самоэкранирования стартового материала. Внутри и снаружи кольца, образованного мишенями размещены элементы с замедлителем – стержневой и кольцевой, соответственно. Внешний диаметр кольцевого элемента с замедлителем принят равным 86 мм (с учётом толщины оболочки), т.к. не должен превышать внутреннего размера “под ключ” шестигранного чехла сборки реактора БН-600 (92 мм). В качестве замедлителя рассматривался гидрид циркония (ZrH_{1,85}), плотность которого варьировалась в расчётах. Толщина стальных оболочек элементов с замедлителем принята равной 1 мм. Для протечек натрия между мишенями с кобальтом и оболочками элементов с замедлителем предусмотрен зазор ~0,8 мм.

На первом этапе расчётов варьировался диаметр окружности для расположения мишеней с кобальтом (D_{кобальт}) от 20 мм до 80 мм включительно, при этом изменяется число мишеней. При D_{кобальт} = 80 мм в ОУ размещается 28 мишеней, а внешний кольцевой элемент с замедлителем отсутствует, как показано на рис. 4. В расчётах рас-

считывался таблеточный гидрид циркония с плотностью 5,4 г/см³.

На рис. 5 приведены зависимости средней удельной активности ⁶⁰Co от времени для различных вариантов исполнения ОУ по числу и расположению мишеней с кобальтом.

На рисунке прямоугольником выделена область значений, удовлетворяющая исходным требованиям: накопление ⁶⁰Co со средней удельной активностью не менее 250 Ки/г за время не более 3х лет. В эту область попадают значения трёх рассмотренных вариантов исполнения ОУ – с 7-ю, 11-ю и 14-ю мишенями.

На рис. 6 приведены зависимости суммарной активности ⁶⁰Co от времени для различных вариантов исполнения ОУ. Вертикальная линия соответствует ограничению по времени для процесса накопления ⁶⁰Co в реакторе БН-600 (3 года).

Из представленного рисунка видно, что с ростом числа мишеней растёт и суммарная активность.

Основные параметры ОУ и результаты расчётов средней удельной (Ки/г) и суммарной (кКи) активности ⁶⁰Co, накопленного за 3 года облучения, приведены в табл. 1. Удельная активность приведена на 1 грамм стартового материала.

Из представленных данных видно, что оптимальным вариантом является вариант с 14-ю мишенями, т.к. он позволяет в течение 3-х лет достичь средней удельной активности выше 250 Ки/г при суммарной активности более 300 кКи.

Результаты расчётов, приведённые в табл. 1, соответствуют плотности гидрида циркония 5,4 г/см³ (плотность таблетки). При этом не учитывались зазоры между гидридом циркония и оболочками элементов с замедлителем, наличие которых несколько снизит общую загрузку замедлителя в ОУ. Кроме того, в конструкции ОУ возможно применение засыпного гранулированного гидрида циркония, плотность которого значительно ниже

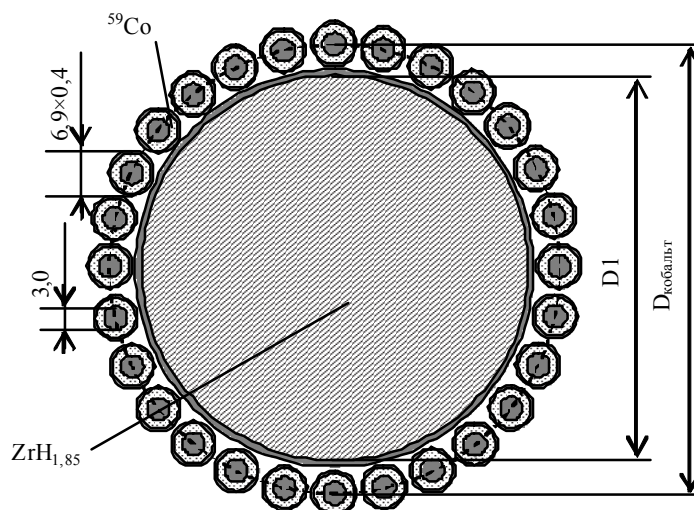


Рис. 4. Поперечное сечение ОУ для наработки ⁶⁰Co (28 мишеней)

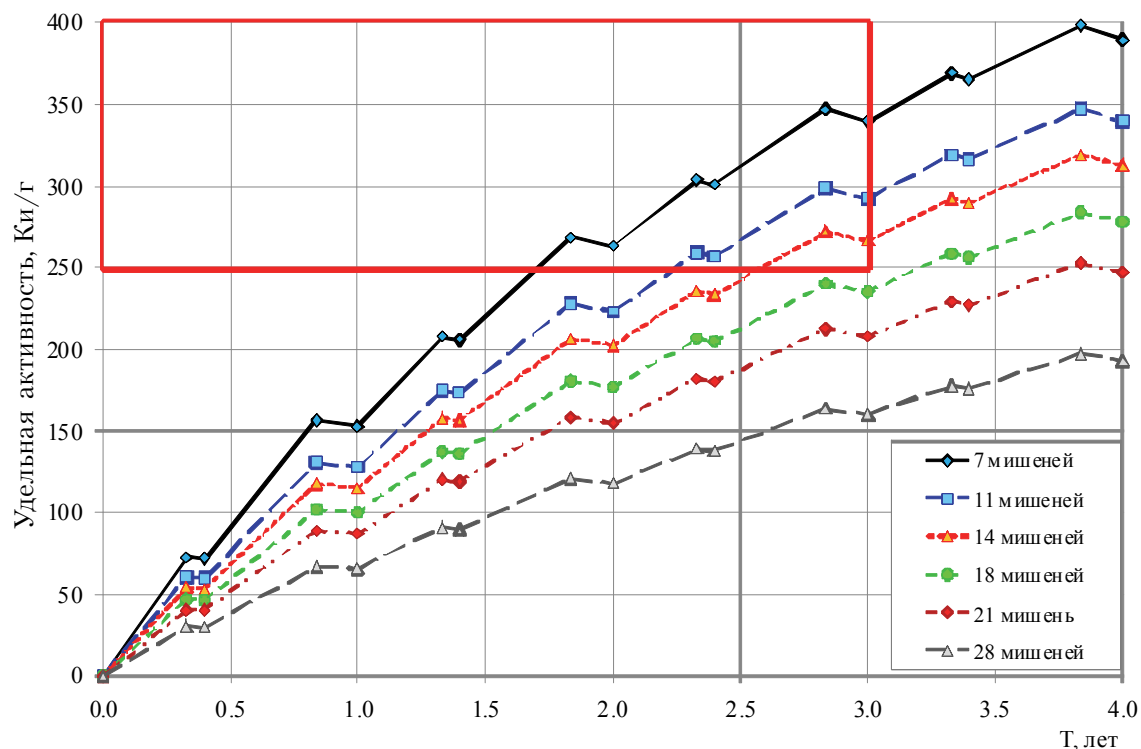


Рис. 5. Средняя удельная активность ^{60}Co в ОУ в зависимости от времени (плотность гидрида циркония $5,4 \text{ г/см}^3$)

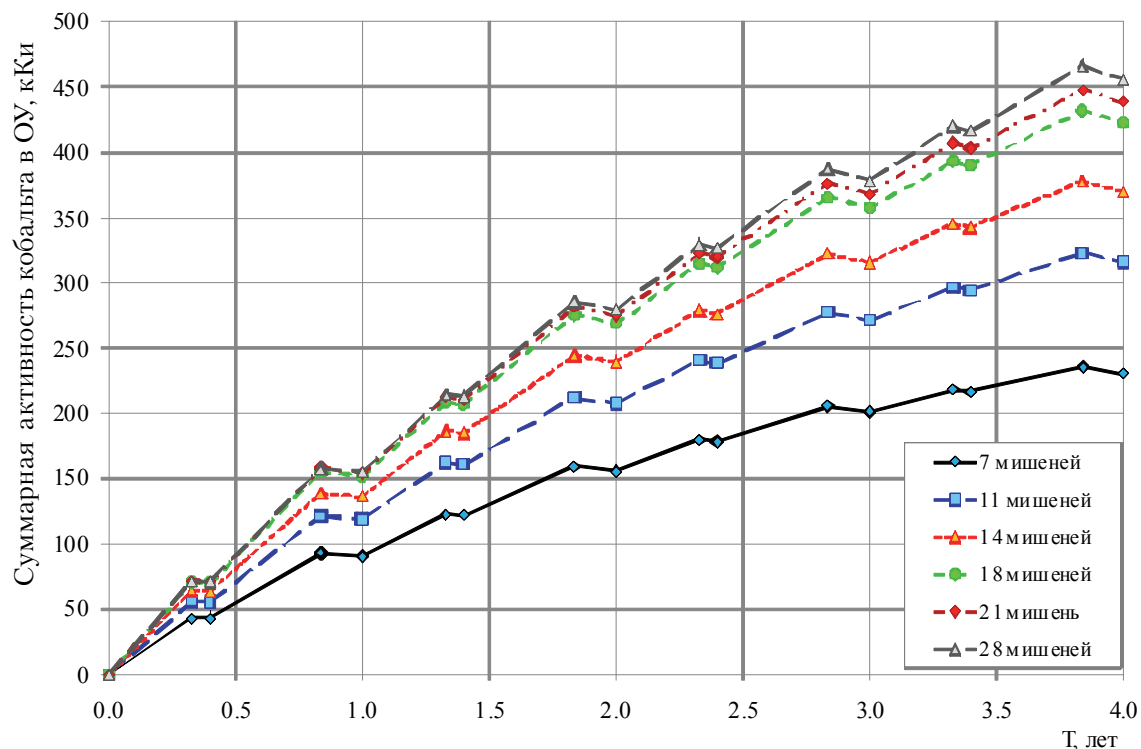


Рис. 6. Суммарная активность ^{60}Co в ОУ в зависимости от времени (плотность гидрида циркония $5,4 \text{ г/см}^3$)

плотности таблетки. Следует отметить, что имеется положительный опыт применения засыпного гранулированного гидрида циркония плотностью $4,1 \text{ г/см}^3$ в реакторе БОР-60 [4].

Проведены варианты расчёты ОУ с 14-ю мишенями, в которых моделировался гидрид цирко-

ния различной плотности. Параметры ОУ с 14-ю мишенями (размеры и массы) приведены в табл. 1.

На рис. 7 приведены зависимости средней удельной активности ^{60}Co от времени в ОУ с 14-ю мишенями для различных значений плотности гидрида циркония.

Таблица 1. Основные параметры ОУ и результаты расчётов (плотность $ZrH_{1,85} - 5,4 \text{ г/см}^3$)

Число мишеней, шт	7	11	14	18	21	28
$D_{\text{ко балт}}, \text{ мм}$	20	30	40	50	60	80
$D1, \text{ мм}$	9.5	19.5	29.0	39.5	49.5	69.5
$D2, \text{ мм}$	30.5	40.5	50.0	60.5	70.5	-
$D3, \text{ мм}$	84.0	84.0	84.0	84.0	84.0	-
Масса $ZrH_{1,85}, \text{ кг}$	26.4	24.6	22.9	21.0	19.2	20.5
Масса $Co, \text{ г}$	592	930	1184	1522	1775	2367
Удельная активность, Ки/г	340	292	267	235	208	160
Активность, кКи	201	272	315	358	369	379

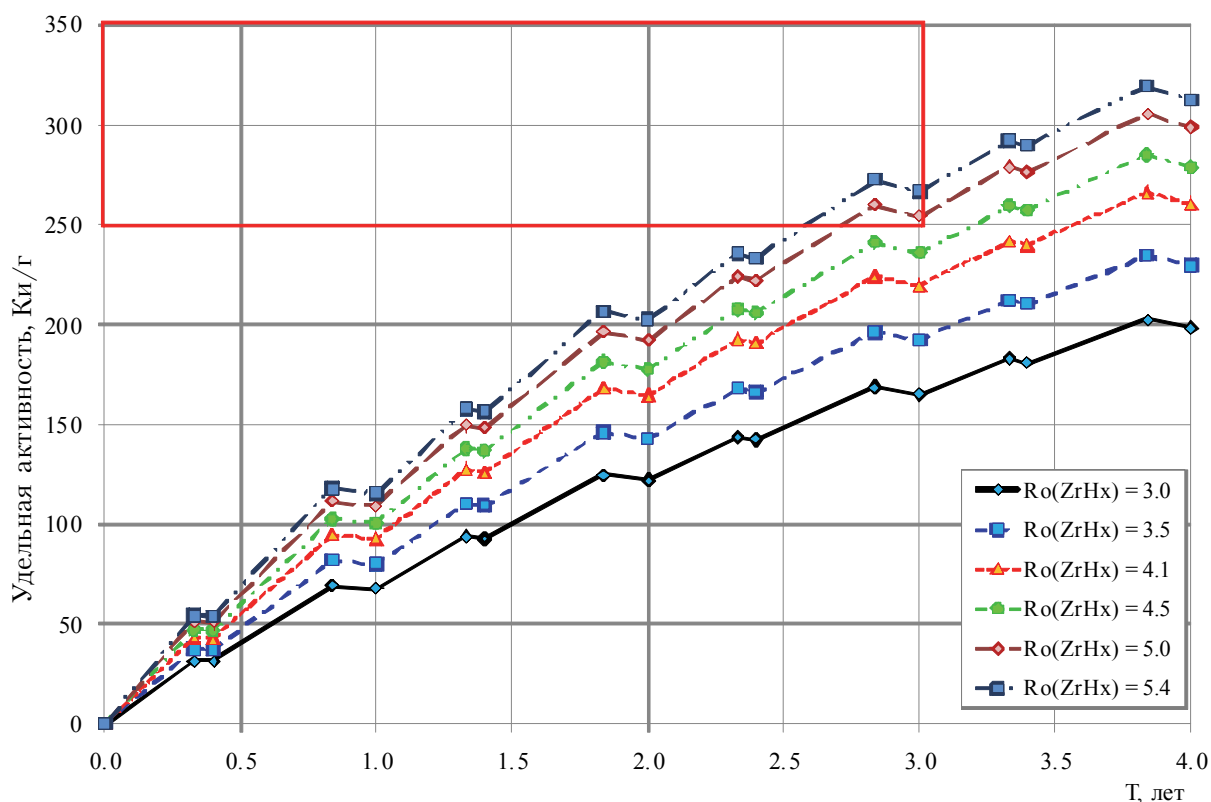


Рис. 7. Средняя удельная активность ^{60}Co в ОУ в зависимости от времени

На рисунке прямоугольником выделена область значений, удовлетворяющая исходным требованиям: накопление ^{60}Co со средней удельной активностью не менее 250 Ки/г за время не более 3х лет. Как видно, в эту область попадают значения двух рассмотренных вариантов плотности гидрида циркония – $5,0$ и $5,4 \text{ г/см}^3$. При применении гранулированного $ZrH_{1,85}$ плотностью $4,1 \text{ г/см}^3$ для достижения средней удельной активности более 250 Ки/г понадобится более 3,5 лет.

На рис. 8 приведены зависимости суммарной активности ^{60}Co от времени для различных значений плотности гидрида циркония. Вертикальная линия соответствует ограничению по времени для процесса накопления ^{60}Co в реакторе БН-600 (3 года).

Поскольку масса стартового материала во всех рассмотренных случаях одинакова, то графики

изменения суммарной активности полностью повторяют графики изменения средней удельной активности. Как и ожидалось, удельная и суммарная активность тем выше, чем выше плотность и, соответственно, масса замедлителя в ОУ.

Основные параметры ОУ и результаты расчётов средней удельной (Ки/г) и суммарной (кКи) активности ^{60}Co , накопленного за 3 года облучения, приведены в табл. 2. Удельная активность приведена на 1 грамм стартового материала.

Из представленных данных видно, что параметры накопления ^{60}Co в составе ОУ с 14-ю мишенями остаются приемлемыми при эффективной плотности гидрида циркония не ниже $5,0 \text{ г/см}^3$. Так, в течение 3-х лет достигается средняя удельная активность $\sim 250 \text{ Ки/г}$ при суммарной активности около 300 кКи .

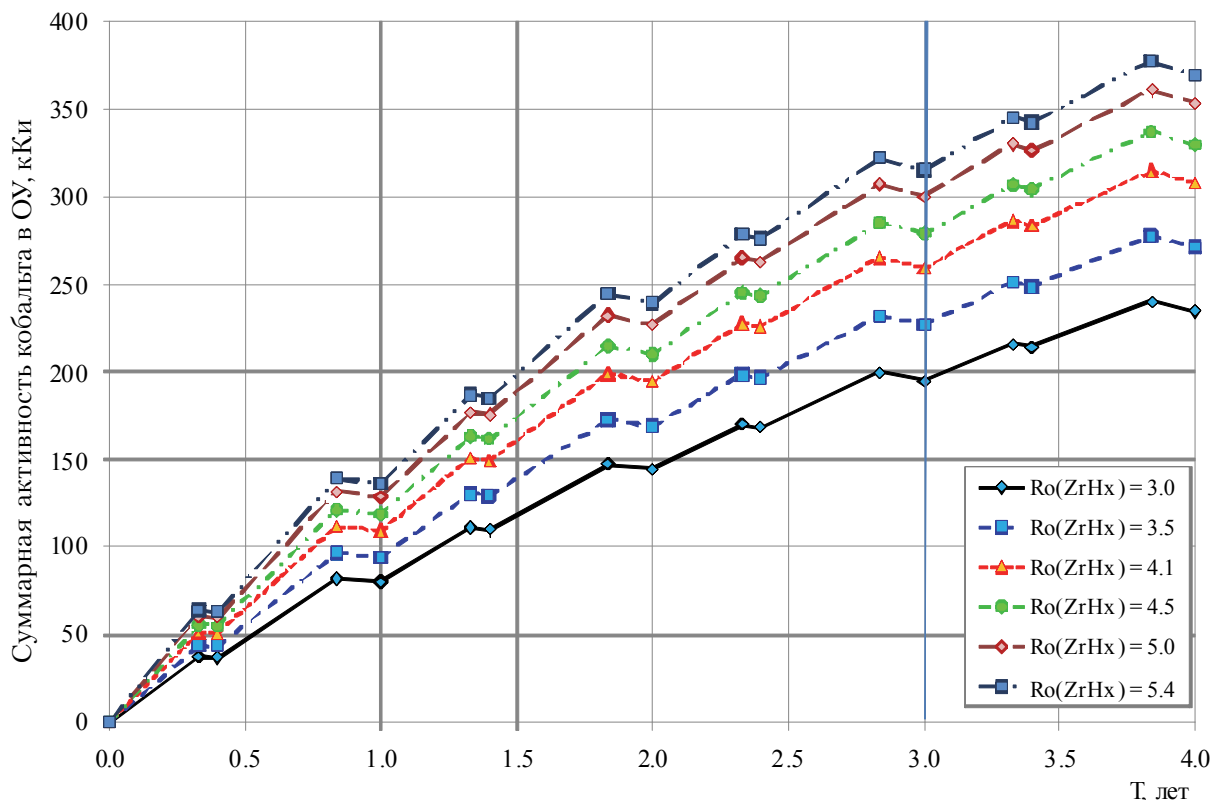
Рис. 8. Суммарная активность ^{60}Co в ОУ в зависимости от времени

Таблица 2. Основные параметры ОУ и результаты расчётов

Плотность $\text{ZrH}_{1,85}$, г/см ³	3.0	3.5	4.1	4.5	5.0	5.4
Масса $\text{ZrH}_{1,85}$, кг	12.7	14.8	17.4	19.1	21.2	22.9
Масса Co , г	1184	1184	1184	1184	1184	1184
Удельная активность, Ки/г	165	192	219	236	254	267
Активность, кКи	195	227	260	279	301	315

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены расчёты накопления нуклида ^{60}Co при облучении стартового материала (^{59}Co) во втором ряду воспроизводящего бокового экрана реактора БН-600.

Рассмотрены различные варианты исполнения ОУ по количеству мишеней и их расположению относительно центральной оси ОУ. Показано, что оптимальным вариантом является вариант с 14-ю мишенями, т.к. он позволяет в течение 3-х лет достичь средней удельной активности выше 250 Ки/г при суммарной активности более 300 кКи.

Для ОУ с 14-ю мишенями проведены расчёты, в которых варьировалась плотность гидрида циркония. В результате расчётов установлено, что приемлемые параметры накопления ^{60}Co могут быть достигнуты при эффективной плотности гидрида циркония не ниже 5,0 г/см³. Так, в течение 3-х лет достигается средняя удельная ак-

тивность ~250 Ки/г при суммарной активности около 300 кКи. При применении гранулированного $\text{ZrH}_{1,85}$ плотностью 4,1 г/см³ для достижения средней удельной активности более 250 Ки/г понадобится не менее 3,5 лет.

Кобальт с такими характеристиками может использоваться при производстве источников ионизирующего излучения в ОАО "ГНЦ НИИАР".

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки России (договор от "12" февраля 2013 г. № 02.G25.31.0015).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Опыт наработки ^{60}Co в БН-600 / В.В. Мальцев, А.И. Карпенко, И.А. Чернов, В.В. Головин // Атомная энергия. 1999. Т. 86. Вып. 3. С. 216-219.
2. Gomin E., Maiorov L. The MCU Monte Carlo Code for 3D Depletion Calculation // Proc. of Intern. Conf. on Mathem. and Comput., React. Phys., and Envir. Analyses in Nucl Applications, Sept. 27-30 1999. Spain: Madrid, 1999. V. 2. P. 997-1006.

3. BN-600 Hybrid Core Benchmark Analyses // IAEA-TECDOC-1623 / IAEA, VIENNA, 2009.
4. *Варивцев А.В., Жемков И.Ю.* Расчетные исследования характеристик ячейки реактора БОР-60 со "смягченным" спектром нейтронов // Сборник трудов ФГУП "ГНЦ РФ НИИАР". 2007. Вып. 3. С. 34-39.

PHYSICAL OPTIMIZATION OF THE IRRADIATION RIG FOR ACCUMULATION OF HIGH SPECIFIC ACTIVITY COBALT-60 IN BN-600 REACTOR

© 2014 A.V. Varivtcev¹, I.Yu. Zhemkov¹, E.G. Romanov¹, M.Yu. Tikhonchev², Yu.G. Toporov¹

¹ Joint Stock Company "State Scientific Center – Research Institute of Atomic Reactors", Dimitrovgrad

² Research Institute of Technology named after S.P. Kapitsa of Ulyanovsk State Technical University

The paper presents the results of calculations performed with a purpose to optimize the design of irradiation rig for accumulation of high specific activity cobalt-60 in BN-600 reactor.

Key words: irradiation rig, cobalt-60, target, activity, moderator, zirconium hydride.

Artem Varivtcev, Senior Researcher of Physics and Engineering Laboratory. E-mail: vav3@niiar.ru

Igor Zhemkov, Candidate of Technics, Head of Physics and Engineering Laboratory. E-mail: ziu@niiar.ru

Evgenii Romanov, Candidate of Technics, Head of Isotope Production Laboratory. E-mail: orip@niiar.ru

Mikhail Tikhonchev, Candidate of Physics and Mathematics, Head at the Non-Organic Materials Behaviour Modelling Laboratory. E-mail: tikhonchev@sv.ulsu.ru

Yury Toporov, Candidate of Technics, Director of Center for Responsibility "Development and Coordination of Isotope Management". E-mail: orip@niiar.ru