

В. А. Старков¹, С. В. Майнсков¹, А. Л. Ижутов², В. В. Пименов²¹ Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Москва, Россия² ОАО «Государственный научный центр – Научно-исследовательский институт атомных реакторов», Димитровград-10, Россия**ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТЕЙ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ НИЗКОБОГАЩЕННОГО УРАНА В РЕАКТОРНОЙ ТЕХНОЛОГИИ НАКОПЛЕНИЯ ⁹⁹Mo В ОАО «ГНЦ НИИАР»**

Описаны характеристики мишеней двух типов с высокообогащенным ураном и облучательных устройств, которые в настоящее время используются в ОАО «ГНЦ НИИАР» для накопления осколочного ⁹⁹Mo. Приведены параметры накопления ⁹⁹Mo в реакторах бассейнового типа (РБТ). Выполнены исследования возможности перевода производства ⁹⁹Mo на низкообогащенный уран с использованием существующего типа мишеней. Показано, что при достигнутых значениях плотности топлива в мишенях производительность накопления ⁹⁹Mo снизится примерно в два раза.

Ключевые слова: молибден, реактор бассейнового типа, мишень, облучательное устройство.

Введение

В ОАО «ГНЦ НИИАР» в качестве базовой технологии переработки облученного топлива для выделения из него осколочного ⁹⁹Mo принята технология ROMOL-99, разработчиком которой является фирма Isotope Technology Dresden GmbH [1].

В этом технологическом процессе перерабатывается облученное интерметаллидное топливо (UAl₃ и UAl₄). Ограничивающими факторами процесса ROMOL-99 являются:

масса алюминия в облученных топливных мишенях не должна превышать 200 г;

длина мишени не должна превышать 200 мм.

Реализован следующий режим производства ⁹⁹Mo, при котором технологический выход готового продукта составляет 70 %:

облучение в реакторе, сут	6;
расхолаживание облученных мишеней, ч	24;
переработка, фасовка готового продукта, ч	32;
оформление документов, транспортировка, ч	12.

На первом этапе развития производства ⁹⁹Mo в ОАО «ГНЦ НИИАР» предполагается, что еженедельно будет нарабатываться до 300 Ки продукта с шестидневной калибровкой (через 6 сут после поставки заказчику). Для этого необходимо, чтобы на момент окончания облучения было наработано примерно 4000 Ки ⁹⁹Mo (с учетом технологического выхода готового продукта).

Скорость наработки нуклида ⁹⁹Mo, являющегося продуктом деления ядер ²³⁵U, однозначно связана с выделяемой при делении тепловой мощностью. При условии постоянства мощности мишеней в течение всего времени облучения накопление 4000 Ки ⁹⁹Mo на момент окончания облучения эквивалентно требованию обеспечения мощности мишеней примерно 100 кВт.

К конструкции мишеней для наработки ⁹⁹Mo и к режимам их работы предъявляются следующие основные требования:

технология изготовления мишеней должна базироваться на известных и отработанных в мировой и отечественной практике операциях и обеспечивать требуемую производительность производства;

геометрия мишеней должна позволять устанавливать их в существующие облучательные каналы реактора;

мишени должны содержать требуемое количество ²³⁵U, чтобы обеспечить выход желаемого количества ⁹⁹Mo, т.е. мощность облучательного устройства должна быть не менее 100 кВт (или два устройства по 50 кВт);

количество алюминия в одной загрузке мишеней в облучательное устройство не должно превышать 200 г.

В результате сравнительного анализа различных конструкций мишеней и облучательных устройств по теплогидравлическим параметрам и с учетом освоенности технологии изготовления в ОАО «ГНЦ НИИАР» мишеней для наработки радионуклидной продукции на первом этапе организации производства ⁹⁹Mo оптимальной была признана цилиндрическая конструкция мишени стержневого типа [2, 3]. Данный тип мишеней был успешно использован в ОАО «ГНЦ НИИАР» в 2011 - 2012 гг.

Однако цилиндрические мишени стержневого типа обладают такими недостатками, как повышенное содержание алюминия и технологические сложности в обеспечении плотного контакта между сердечником и оболочкой.

В связи с этим в ОАО «ГНЦ НИИАР» была освоена технология реакторного облучения мишеней квадратного профиля, изготавливаемых на

Новосибирском заводе химконцентратов по отработанной технологии массового производства, в которых уменьшено содержание алюминия и обеспечено диффузионное сцепление сердечника с оболочкой [4].

В мишенях обоих типов используется высокообогащенный уран (ВОУ). В настоящее время в ведущих странах-потребителях формируются национальное законодательство и нормативная база, стимулирующие потребление ⁹⁹Mo, произведенного без использования ВОУ [5]. Это может значительно усложнить продвижение продукции ОАО «ГНЦ НИИАР» на крупные международные рынки ⁹⁹Mo. В связи с этим в ОАО «ГНЦ НИИАР» проводятся исследования по разработке мишеней на основе низкообогащенного урана (НОУ).

В данной работе рассмотрены нейтронно-физические аспекты процесса реакторного накопления ⁹⁹Mo в мишенях с ВОУ и НОУ.

Краткое описание реакторных установок

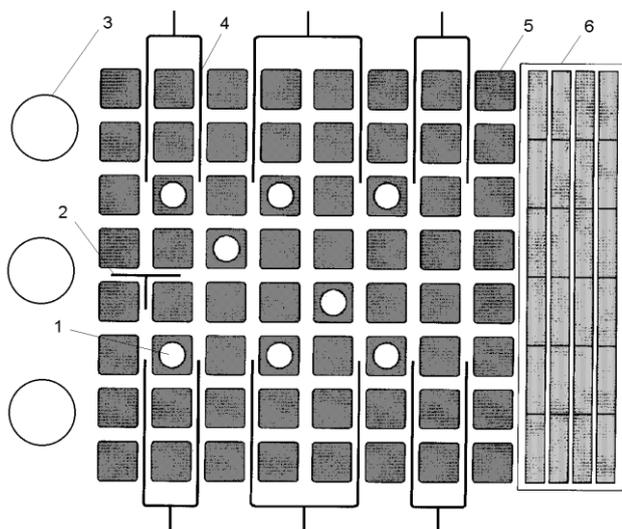
В ОАО «ГНЦ НИИАР» наиболее подходящими по нейтронно-физическим характеристикам, доступности каналов для облучения (возможность оперативной перегрузки мишеней) и длительности работы без перегрузок активной зоны (для обеспечения ритмичного графика поставки

продукции) являются бассейновые реакторы РБТ-6 и РБТ-10/2 [6, 7]. Один из этих реакторов может рассматриваться как базовый, а другой – как замещающий в случае планово-предупредительного ремонта (или технических проблем) базового реактора.

Исследовательские ядерные установки РБТ представляют собой бассейновые реакторы на тепловых нейтронах, в которых вода используется в качестве теплоносителя и отражателя. Реакторы предназначены для проведения экспериментов по изучению свойств материалов в процессе облучения и наработки радионуклидных продуктов. Испытания проводятся при плотности нейтронного потока $10^{13} \div 10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ в вертикальных каналах активной зоны и отражателя.

В качестве топлива в реакторах РБТ используют ТВС реактора СМ [7]. Активную зону реактора РБТ-6 набирают из ТВС, отработавших в реакторе СМ до выгорания 10÷30 % (но не более 47 %). Активную зону реактора РБТ-10/2 набирают из ТВС, отработавших в реакторе СМ до выгорания 20÷40 % (но не более 53 %).

Высота активной части ТВС равна 350 мм. В поперечном сечении ТВС имеет квадратную форму, сторона квадрата равна 69 мм. Шаг размещения ТВС в активных зонах реакторов РБТ равен 78 мм.



- 1 - испытательные каналы
- 2 - стержень автоматического регулирования
- 3 - испытательные каналы в отражателе
- 4 - компенсирующий орган
- 5 - рабочие ТВС
- 6 - стенд «КОРПУС»

Рис. 1. Картограмма активной зоны реактора РБТ-6.

Активная зона реактора РБТ-6 состоит из 56 ТВС, шести совмещенных рабочих органов аварийной защиты и компенсации реактивности (РО

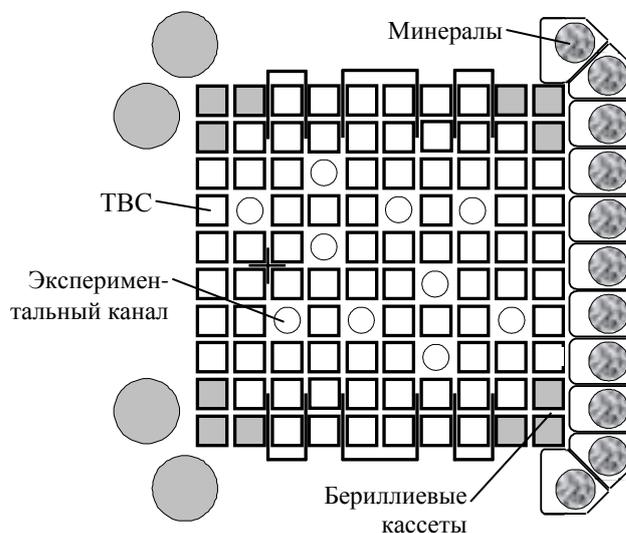


Рис. 2. Картограмма активной зоны реактора РБТ-10/2.

АЗ-КО), одного рабочего органа автоматического регулирования (АР) и восьми экспериментальных каналов (рис. 1). В отражателе реактора

кроме вертикальных каналов имеется экспериментальное облучательное устройство (ОУ) «Корпус», предназначенное для испытания корпусных стелей реакторов типа ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 в условиях, моделирующих в широком диапазоне режимы работы элементов корпусов по плотности и энергетическому спектру нейтронов, температуре облучения, градиентам этих параметров, режимам их изменения в процессе эксплуатации. Номинальная мощность реактора РБТ-6 равна 6 МВт.

Активная зона реактора РБТ-10/2 состоит из 78 ТВС, шести совмещенных РО АЗ-КО, одного РО АР и 10 экспериментальных каналов (рис. 2). Кроме воды отражателем служат 12 бериллиевых кассет, расположенных по углам активной зоны. Номинальная мощность реактора РБТ-10/2 равна 10 МВт.

Характеристики ОУ и мишеней стержневого типа на основе ВОУ

В мишени стержневого типа с поперечным сечением в форме круга (мишень первого типа) сердечник состоит из интерметаллидной композиции ($UAl_3 + Al$). Оболочка мишени, изготовленная из алюминиевого сплава, имеет плотный механический контакт с сердечником. Толщина оболочки равна 0,5 мм. С обоих концов мишень



Рис. 3. Внешний вид ОУ первого типа.

ОУ второго типа состоит из вытеснителя потока, к которому крепятся дистанционирующие элементы для фиксации мишеней (рис. 4). Все детали ОУ изготовлены из алюминиевого сплава. Мишени в количестве 52 штук размещают в два

герметизируется приваркой торцевых заглушек к оболочке.

ОУ первого типа состоит из вытеснителя потока, к которому крепятся решетки для фиксации мишеней (рис. 3). Все детали ОУ изготовлены из алюминиевого сплава. Мишени размещают в один ряд вокруг вытеснителя. Всего в ОУ может быть размещено 20 мишеней, однако из-за ограничения по массе алюминия размещают 15 мишеней. ОУ загружают в предварительно установленный в активную зону реактора проточный ампульный канал.

Мощность ОУ зависит от места его размещения в активной зоне, распределения топлива в активной зоне, положения РО АЗ-КО, содержания других каналов облучения. В зависимости от перечисленных факторов мощность ОУ, эффективность использования топлива (определенная как отношение мощности мишени к массе делящегося изотопа) и активность ^{99}Mo , нарабатываемого в ОУ в течение 6 сут, находятся в различных пределах.

В мишени стержневого типа с поперечным сечением в форме квадрата (мишень второго типа) сердечник состоит из интерметаллидной композиции ($UAl_4 + Al$). Оболочка мишени, изготовленная из алюминиевого сплава, имеет диффузионное сцепление с сердечником. Толщина оболочки находится в пределах $0,15 \div 0,2$ мм.



Рис. 4. Внешний вид ОУ второго типа.

ряда вокруг вытеснителя. ОУ загружается в предварительно установленный в активную зону реактора проточный ампульный канал.

В табл. 1 представлены сравнительные характеристики мишеней обоих типов.

Таблица 1. Параметры ОУ и мишеней с НОУ

Параметр	Мишень (тип 1)	Мишень (тип 2)
Общая длина, мм	192	200
Длина активной части, мм	168 - 172	185 - 195
Наружный размер, мм	5,9 (диаметр)	2,6 (под «ключ»)
Плотность ^{235}U в сердечнике, г/см ³	0,49	1,47
Объемная доля интерметаллида в сердечнике, %	10,6	40,6
Масса ^{235}U , г	1,5 - 1,55	1,05 - 1,1
Обогащение по ^{235}U , %	90	90
Содержание алюминия, г	13,1	3,8

Параметр	Мишень (тип 1)	Мишень (тип 2)
Мощность ОУ, кВт: в реакторе РБТ-6 в реакторе РБТ-10/2	30 - 40 35 - 45	60 - 80 70 - 95
Эффективность используемого топлива, кВт/г	1,55 - 1,95	1,3-1,65
Активность в конце облучения, Ки: в реакторе РБТ-6 в реакторе РБТ-10/2	1200 - 1600 1400 - 1800	2400 - 3200 2800 - 3800

Существенное различие в значениях мощности ОУ разного типа обусловлено тем, что масса ^{235}U в ОУ первого типа равна примерно 22,5 г, а в ОУ второго типа – 56 г. При этом эффективность использования топлива в обоих ОУ примерно одинакова.

Характеристики ОУ и мишеней стержневого типа на основе НОУ

При прямой замене ВОУ на НОУ (с обогащением не более 20 %) в рассмотренных выше мишенях масса ^{235}U уменьшится в 4,5 раза, а производство ^{99}Mo в одном ОУ снизится примерно в 4 раза. Для восстановления производительности реакторного накопления ^{99}Mo необходимо увеличить массу облучаемого ^{235}U за счет увеличения общей массы урана. Существуют три стратегии увеличения массы урана: увеличение числа облучаемых мишеней; увеличение размеров мишеней (возможно вместе с формой); увеличение плотности сердечника мишени по урану.

Увеличение количества мишеней и ОУ приведет к значительному росту удельных затрат на производство ^{99}Mo и почти к пятикратному увеличению количества отходов. Увеличение размеров мишеней позволит сократить число мишеней, но количество отходов при этом не сократится. При увеличении плотности топливной композиции мишени по урану можно сохранить требуемое количество мишеней, увеличив массу перерабатываемого материала только за счет массы урана.

В рассмотренных выше стержневых мишенях первого типа имеется значительный запас по возможности увеличения плотности урана, в то время как в мишенях второго типа запаса практически нет. Далее приведены результаты нейтронно-физических расчетов параметров облучения в реакторе РБТ-6 мишеней первого типа с разной плотностью урана в сердечнике. Основные характеристики мишеней с НОУ и ОУ первого типа, принятые в расчетах, приведены в табл. 2.

Таблица 2. Характеристики мишеней с НОУ и ОУ первого типа, принятые в расчетах

Параметр	Вариант расчета					
	1	2	3	4	5	6
Общая длина мишени, мм	192					
Длина активной части мишени, мм	170					
Наружный диаметр мишени, мм	5,9					
Толщина оболочки мишени, мм	0,5					
Объемная доля интерметаллида в сердечнике, %	10,6	20	30	40	50	50
Масса ^{235}U в мишени, г	1,55	0,64	0,96	1,28	1,60	1,60
Обогащение по ^{235}U , %	90	19,7	19,7	19,7	19,7	19,7
Число мишеней в ОУ	15	15	15	15	15	16
Масса ^{235}U в ОУ	23,5	9,6	14,4	19,2	24,0	25,6
Суммарная масса алюминия в мишенях, г	200,0	196,4	192,7	189,0	185,2	197,6

Во всех расчетах параметры активной зоны (распределение топлива, положение РО АЗ-КО, содержимое других каналов облучения) и место расположения ОУ были одинаковыми. Мощность реактора полагалась равной 6 МВт. Расчеты выполнялись с помощью кода MCU [8]. Результаты расчетов представлены на рис. 5 и 6.

Зависимость мощности ОУ с НОУ с удовлетворительной точностью аппроксимируется выражением

$$W_{ov} = \frac{2,815 \cdot M}{(1+0,03 \cdot M)}, \quad (1)$$

где W_{ov} – мощность ОУ, кВт; M – масса ^{235}U в ОУ, г.

При объемной доле интерметаллида в сердечнике мишени 40 % (такая доля реализована, например, в мишенях второго типа) масса ^{235}U в ОУ будет равна 19,2 г, а мощность ОУ, в соот-

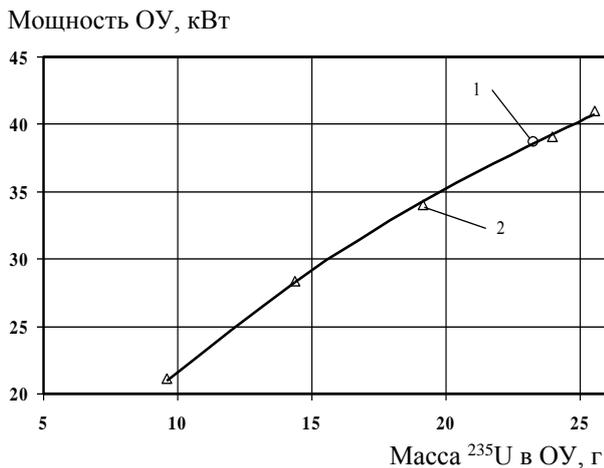


Рис. 5. Зависимость мощности ОУ от массы ^{235}U в ОУ:
1 - мишени с ВОУ; 2 - мишени с НОУ.

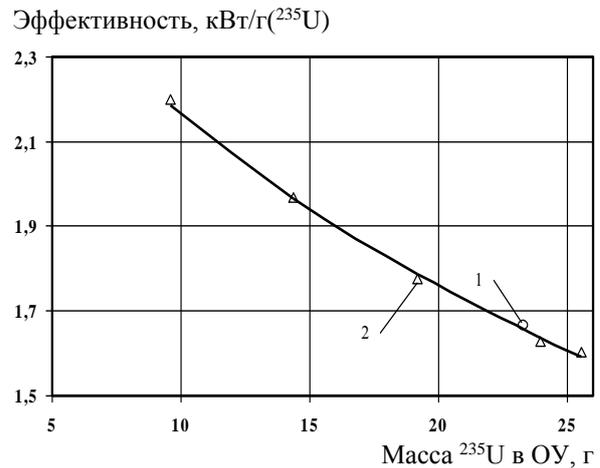


Рис. 6. Зависимость эффективности использования топлива от массы ^{235}U в ОУ:
1 - мишени с ВОУ; 2 - мишени с НОУ.

ветствии с формулой (1), будет равна 34,3 кВт. Это в 1,13 раза меньше, чем мощность ОУ с ВОУ первого типа (38,8 кВт), и в 1,75 ÷ 2,35 раза меньше, чем мощность ОУ с ВОУ второго типа (60 ÷ 80 кВт, см. табл. 1). Следовательно, для того чтобы при переходе с ВОУ на НОУ сохранить на достигнутом уровне производительность реакторного накопления ^{99}Mo (2800 - 3800 Ки/неделю), необходимо будет использовать примерно в два раза больше ОУ.

В пределе, если сердечник мишени первого типа будет изготовлен из чистого интерметаллида UAl_3 , то в ОУ можно будет разместить 18 мишеней (масса алюминия 199,8 г), а его мощность будет равна примерно 60 кВт. В этом гипотетическом случае производительность реакторного накопления ^{99}Mo в мишенях с НОУ будет близка к достигнутой в настоящее время производительности при использовании ОУ второго типа с мишенями с ВОУ.

Заключение

В результате проведенных исследований показана принципиальная возможность перевода производства ^{99}Mo на НОУ с использованием освоённой в ОАО «ГНЦ НИИАР» реакторной технологии накопления ^{99}Mo в мишенях с круглым поперечным сечением. Однако чтобы получить на этих мишенях такую же производительность накопления ^{99}Mo , как на мишенях с квадратным сечением в настоящее время, нужно изготовить сердечник мишени из чистого интерметаллида урана и, возможно, увеличить число используемых ОУ на 20 ÷ 30 %.

Перспективы разработки технологии изготовления таких мишеней неясны, поэтому в настоящее время ведутся поисковые исследования по использованию других типов мишеней с НОУ.

Результаты исследований, представленных в работе, выполнены в ДИТИ НИЯУ МИФИ при финансовой поддержке по проекту Министерства образования и науки РФ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Beyer G. J., Muenze R., Novotny D. et al. ROMOL-99 - a new innovative small-scale LEU-based Mo-99 production process // Proc. of the 6-th Intern. Conf. on Isotopes. - Seoul, Republic of Korea, 2008.
2. Юрченко А.Д., Казаков Л.Л., Табакин Е.М. и др. Разработка технологии и изготовление опытных партий мишеней с интерметаллидом урана (Al + U) // Отчет об основных исследовательских работах, выполненных в 2010 г. - Димитровград: ОАО «ГНЦ НИИАР», 2011. - С. 128 - 131.
3. Ижutow А.Л., Петелин А.Л., Старков В.А. и др. Освоение реакторной технологии наработки ^{99}Mo // Отчет об основных исследовательских работах, выполненных в 2010 г. - Там же. - С. 30 - 33.
4. Святкин М.Н., Ижutow А.Л., Клинов А.В. и др. Исследовательские ядерные реакторы // Отчет об основных исследовательских работах, выполненных в 2011 г. - Димитровград: ОАО «ГНЦ НИИАР», 2012. - С. 5 - 13.
5. Хлопков А.В., Помпер М., Чекина В.В. Прекращение использования ВОУ в производстве медицинских изотопов: возможности для сотрудничества России и США. Центр энергетики и безопасности: [Электронный ресурс]. URL: http://ceness-russia.org/data/doc/14-02-24%20HEU_Mo-99%20Report%20-%20RUS%20-%20Final.pdf. (Дата обращения 01.02.2015).
6. Цыканов В.А., Аверьянов П.Г., Бурукин В.П. и др. Исследовательский реактор РБТ-6 // Атомная энергия. - 1977. - Т. 43, вып. 1. - С. 1 - 10.
7. Цыканов В.А. Исследовательские реакторы НИИАР и их экспериментальные возможности. - Димитровград: НИИАР, 1991.
8. Гомин Е.А. Статус МСУ-4 // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов - 2006. - Вып. 1. - С. 6 - 32.

В. А. Старков¹, С. В. Майнсков¹, А. Л. Ижutow², В. В. Піменов²

¹ Національний дослідницький ядерний університет «МФІ», Москва, Росія

² ВАТ «Державний науковий центр –
Науково-дослідний інститут атомних реакторів», Дмитровград-10, Росія

ДОСЛІДЖЕННЯ МОЖЛИВОСТІ ВИКОРИСТАННЯ НИЗЬКОЗБАГАЧЕНОГО УРАНУ В РЕАКТОРНИЙ ТЕХНОЛОГІЇ НАКОПИЧЕННЯ ⁹⁹Mo У ВАТ «ДНЦ НДІАР»

Описано характеристики мішеней двох типів із високозбагаченим ураном та опромінювальних пристроїв, які в даний час використовуються у ВАТ «ДНЦ НДІАР» для накопичення уламкового ⁹⁹Mo. Наведено параметри накопичення ⁹⁹Mo в реакторах басейнового типу. Виконано дослідження можливості переведення виробництва ⁹⁹Mo на низькозбагачений уран із використанням існуючого типу мішеней. Показано, що при досягнутих значеннях щільності палива в мішенях продуктивність накопичення ⁹⁹Mo знизиться приблизно в два рази.

Ключові слова: молібден, реактор басейнового типу, мішень, випромінювальний пристрій.

V. A. Starkov¹, S. V. Majnskov¹, A. L. Izhutov², V. V. Pimenov²

¹ National Research Nuclear University "Moscow Engineering Physics Institute", Moscow, Russia

² JSC "State Scientific Center –
Research Institute of Atomic Reactors", Dimitrovgrad-10, Russia

STUDY OF THE POSSIBILITIES OF USING LOW-ENRICHED URANIUM IN REACTOR TECHNOLOGY OF ⁹⁹Mo ACCUMULATION AT JSC "SSC RIAR"

Characteristics of the highly-enriched uranium targets of two types and irradiation tools currently used at JSC "SSC RIAR" to accumulate fission ⁹⁹Mo are described. The parameters for ⁹⁹Mo accumulation in the pool-type reactors are presented. Studies have been performed on possibility to convert ⁹⁹Mo production to low-enriched uranium using the existing type targets. It is shown that at the achieved fuel density values of ⁹⁹Mo accumulation yield decreases approximately by two times.

Keywords: molybdenum, pool-type reactor, target, irradiation device.

REFERENCES

1. Beyer G.J., Muenze R., Novotny D. et al. ROMOL-99 - a new innovative small-scale LEU-based Mo-99 production process // Proc. of the 6-th Intern. Conf. on Isotopes. - Seoul, Republic of Korea, 2008.
2. Yurchenko A.D., Kazakov L.L., Tabakin E.M. et al. Development of technology and production of experimental batches of uranium targets with intermetallic compounds (Al + U) // Report on the main research work carried out in 2010. - Dimitrovgrad: JSC "RIAR", 2011. - P. 128 - 131. (Rus)
3. Izhutov A.L., Petelin A.L., Starkov V.A. et al. The development of reactor technology developments of ⁹⁹Mo // Ibid. - P. 30 - 33. (Rus)
4. Svyatkin M.N., Izhutov A.L., Klinov A.V. et al. Nuclear research reactors // Report on the main research work carried out in 2011. - Dimitrovgrad: JSC "RIAR", 2012. - P. 5 - 13. (Rus)
5. Khlopkov A.V., Pomper M., Chekina V.V. HEU stop using in the production of medical isotopes: opportunities for cooperation of Russia and the United States. Center for Energy and Security: [Electronic resource]. URL: http://ceness-russia.org/data/doc/14-02-24%20HEU_Mo-99%20Report%20-%20RUS%20-%20Final.pdf. (Rus)
6. Tsykanov V.A., Aver'yanov P.G., Burukin V.P. et al. // Atomnaya energiya. - 1977. - Vol. 43, Iss. 1. - P. 1 - 10. (Rus)
7. Tsykanov V.A. Research reactors of RIAR and their experimental possibilities. - Dimitrovgrad: "RIAR", 1991. (Rus)
8. Gomin E.A. // Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Ser. Fizika yadernykh reaktorov - 2006. - Iss. 1. - P. 6 - 32. (Rus)

Надійшла 09.02.2015

Received 09.02.2015