

УДК 621.039.526:621.039.516.4

ИССЛЕДОВАНИЕ ТОРИЯ, ОБЛУЧЕННОГО В БОКОВОМ ЭКРАНЕ БЫСТРОГО РЕАКТОРА, И В ТЕПЛОВОМ СПЕКТРЕ ГРАФИТОВОГО РЕАКТОРА*

А.В.Звонарев, Б.Я.Зильберман, В.И.Иванов, Н.А.Нерозин, В.Б.Павлович, Б.А.Петрухин, Ф.П.Раскач, Э.Я.Сметанин, Л.В.Сытник, М.Ф.Троянов, Ю.С.Хомяков, Л.А.Чернов, И.Г.Шейнкер
 ГНЦ РФ - Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского, г. Обнинск



Для определения возможностей накопления урана-232 ниже 10ppm ФЭИ организовал облучение образцов тория в боковом экране быстрого реактора БН-350 и в тепловом графито-водном реакторе с последующим радиохимическим анализом облученных образцов.

Основные результаты этих работ представлены в статье.

ВВЕДЕНИЕ

Одной из проблем ториевого цикла является образование урана-232, продукты распада которого - жесткие гамма-излучатели. Уран-232 сопровождает уран-233 на всех этапах технологии изготовления топлива и уже примерно через 1.5÷2 мес. определяет радиационную обстановку на рабочих местах.

На первой стадии освоения топлива на основе урана-233 было бы полезно не осложнять поисковые работы по технологии нового топлива и иметь уран-233 (хотя бы в небольших количествах) с низким содержанием урана-232 [1,2].

В ФЭИ условно принято, что при содержании урана-232 в уране-233 менее 10ppm ($<10^{-3}$ %) возможно использование перчаточных боксов. При содержании более 10ppm необходимо защитное оборудование, манипуляторы.

ОБЛУЧЕНИЕ ТОРИЯ В ЭКРАНЕ РЕАКТОРА БН-350

Цель данных исследований состояла в изучении изменений в нуклидном составе ториевых образцов, облучающихся в экране быстрого реактора, в зависимости от места и продолжительности облучения и, в частности, в исследовании возможности получения урана-233 с малым содержанием урана-232 (рис.1).

Предварительные оценки и анализ спектров нейтронов в различных зонах реактора БН-350 позволили предположить, что возможным перспективным местом для прямой наработки урана-233 с низким содержанием урана-232 могут быть

© А.В.Звонарев, Б.Я.Зильберман, В.И.Иванов, Н.А.Нерозин, В.Б.Павлович, Б.А.Петрухин, Ф.П.Раскач, Э.Я.Сметанин, Л.В.Сытник, М.Ф.Троянов, Ю.С.Хомяков, Л.А.Чернов, И.Г.Шейнкер, 1999

* Доклад с российско-индийского семинара по ториевому топливному циклу (Обнинск, 17-19 ноября 1998 г.)

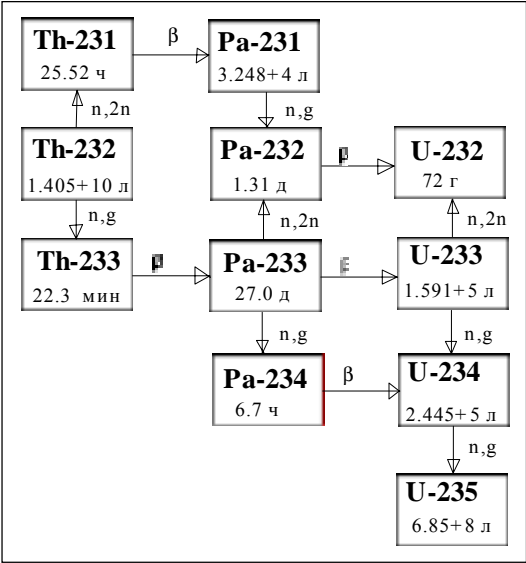


Рис.1. Схема взаимных превращений нуклидов Th-U

образцы содержали металлический торий. Образцы-свидетели размещались в межтвэльном пространстве ТВС бокового экрана и фиксировались с помощью специального держателя.

Образцы облучались в ячейках 619, 639, 656, и 672 (рис.2) в первом эксперименте в течение одной микрокампании, во втором- трех микрокампаний. После облучения ТВС поступала в бассейн выдержки, где из сборки извлекался образец-свидетель, который затем разделялся на отдельные капилляры. Последние были доставлены в ФЭИ для радиохимических исследований.

Технология исследований включила следующие операции: растворение капилляров при кипении в азотной кислоте с плавиковой кислотой, анализ растворов на содержание Th, U-233, радионуклидов Ce-144, Cs-137 (мониторы выгорания). С помощью экстракционно-хроматографических и сорбционных методов выделялась фракция U-233, проводилась глубокая очистка урана от тория, продуктов деления, химических примесей. После этого проводился альфа- и масс-спектрометрический анализы. В результате измерений были получены относительные накопления следующих вторичных нуклидов: Pa-233, U-232, U-233, U-234. В табл.1 приведены результаты сравнения экспериментальных и расчетных данных.

ОБЛУЧЕНИЕ ТОРИЯ В ТЕПЛОМ ГРАФИТОВОМ РЕАКТОРЕ

В ФЭИ были также проведены радиохимические исследования Th, облученного в уран-графитовом реакторе.

Таблица 1

Сравнение результатов расчета и эксперимента в реакторе БН-350

Изотоп	Ячейка 619 (Р-Э)/Р, %	Ячейка 639 (Р-Э)/Р, %	Ячейка 656 (Р-Э)/Р, %	Ячейка 672 (Р-Э)/Р, %
Pa ²³³	+1	+5	+22	+41
U ²³³	0	+3	+22	+40
U ²³²	+63	+41	+65	+89
U ²³⁴	-23	-23	-25	-36

Примечание: Р- результаты расчета, Э- эксперимента

Таблица 2

Характеристика облучения образцов в графитовом реакторе

№ образца п/п	Время облучения,эфф. сут., τ	Расстояние образца от центральной плоскости АЗ отн. ед.
1	152	0.91
2	230	0.39
3	75	0.055
4	152	0.36
5	230	0.39

Были исследованы три партии образцов, облучавшихся в течение 75, 152 и 230 эфф. сут. в различных местах реактора, характеристика которых представлена в табл.2.

Технология исследований аналогична вышеописанной и состояла из следующих операций:

- снятие алюминиевой оболочки растворением в натриевой щелочи с добавлением нитрата натрия до 0.8М/л;

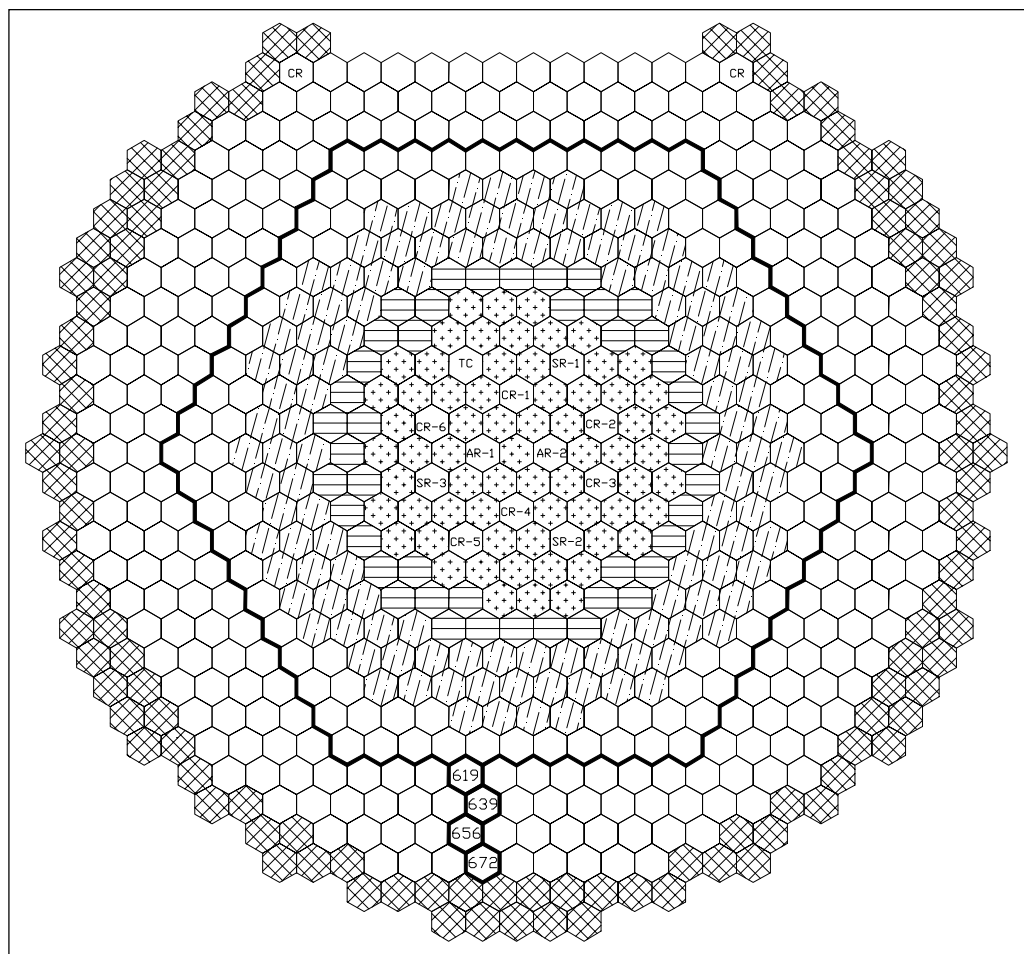


Рис. 2. Картограмма реактора БН-350

- растворение Th в 8М азотной кислоты с добавлением до 0.1М плавиковой кислоты при кипении и при постоянной кислотности раствора не выше 8М;
- проведение анализа на содержание тория (комплексометрически), урана (комплексометрически), церия-144 и цезия-137 (гамма-радиометрическим методом);
- экстракционное выделение фракции урана 5% ТБФ в толуоле;
- сорбционная доочистка урана с целью проведения альфа- и масс-спектрометрического анализов.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

По итогам проведенных исследований были сделаны следующие основные выводы:

1. Накопление урана-233 и содержание в нем урана-232 существенно зависит от места и продолжительности облучения ториевых образцов.

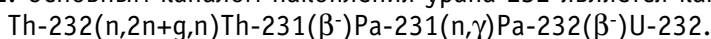
1.1. В реакторе БН-350 за один интервал между перегрузками накопление основного изотопа - урана-233 составляет величину от ≈ 4 мг/г - для первого ряда до ≈ 0.5 мг/г - для четвертого ряда бокового экрана. При этом уран-233 содержит от ≈ 11 ppm урана-232 (первый ряд БЭ) до ≈ 2 ppm урана-232 (третий и четвертый ряды).

1.2. При облучении тория в экране реактора БН-350 в течение трех микрокампаний содержание урана-232 увеличивается до величины от ≈ 40 ppm - в первом ряду НЭ до ≈ 6 ppm - в третьем и четвертом рядах. При этом накопление основного изотопа-урана-233 составляет от ≈ 15 мг/г (первый ряд БЭ) до ≈ 3 мг/г (четвертый ряд НЭ).

1.3. В тепловом графитовом реакторе получены следующие данные по накоплению урана и его чистоте: для образцов 1 и 2 - 0.5 и 1.7г U на кг Th, при чистоте 2.3 и 10.2ppm по U-232; для образцов 3÷5 - от 0.63 до 1.97г U на кг Th при чистоте от 1.7 до 10.3ppm по U-232. Содержание U-234 во фракции U составляло от 0.43 до 1.26% масс.

На основании полученных результатов можно сделать вывод о том, что при облучении металлического тория в графитовом реакторе можно нарабатывать U-233 с чистотой по U-232 лучше 10ppm при накоплении 1.5÷1.7г U на кг Th.

2. Основным каналом накопления урана-232 является канал:



3. Сравнение результатов измерения количества образовавшегося топлива с расчетом показали хорошее согласие данных для внутренних ячеек бокового экрана. Различие с расчетом для ячеек, непосредственно граничащих с внутриреакторным хранилищем, объясняется неадекватностью расчетной модели по действительной загрузке хранилища.

4. Сравнение результатов измерений содержания урана-232 в накопившемся топливе с расчетом показали существенное завышение в расчете. Указанное расхождение связывается с неопределенностью сечения реакции захвата на протактинии-231. Данный эксперимент указывает на необходимость снижения сечения на примерно 50%.

5. Аналогичное расхождение по содержанию урана-234 связывается с сечением реакции захвата на протактинии-233. Данный эксперимент указывает на необходимость снижения данного сечения на примерно 20%.

6. Вывод по сечению захвата на протактинии-231 подтверждается результатами прямых измерений отношения среднего сечения данной реакции к сечению деления урана-235, выполненных на малой мощности реактора БН-350.

В заключение можно отметить, что имеется еще одна партия образцов тория-232, а также образцов урана-233 и урана-234, облученных в активной зоне реактора БН-350 в течение 5 микрокампаний. Образцы доставлены в ФЭИ и подготовлены для радиохимических исследований.

Список литературы

1. Казанцев. Г.Н., Мурогов В.М., Раскач Ф.П. и др. Ядерный топливный цикл на основе тория и урана-233: Препринт ФЭИ-2183. - Обнинск, 1991.
2. Мурогов В.М., Дубинин А.А., Зяблицев Д.Н. и др. Уран-ториевый топливный цикл - его преимущества и перспектива развития ядерной энергетики на его основе: Препринт ФЭИ-2448. - Обнинск, 1995.
3. Матвеев Л.В., Цендер Э.М. Уран-232 и его влияние на радиационную обстановку в ядерном топливном цикле. - М., 1985.

Поступила в редакцию 27.12.98.

The developed fuel cycle with the large-scale utilization of thorium is a long-way outlook for Russia. However the useful features of thorium use in light water and fast reactors can be related in near future. These useful features relate to the safety improvement, less actinide accumulation and the better resistance to non-sanctioned use of fissionable materials.

The article is devoted to the parameters and problems of reactors which can help to start the thorium involvement in nuclear industry.

УДК 621.039.526:621.039.516.4

Integral Experiments on Critical Facilities and Reactors for Basing of Uranium-Thorium Cycle \ V.I.Golubev, A.V.Zvonarev, G.N.Manturov, Yu.S.Khomyakov, A.M.Tsiboulia; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 5 pages, 5 tables, 2 illustrations.

The uranium-thorium compositions with different moderator amount were studied on six critical facilities (KBR 18-23). The KBR-18..21 were created as the central subcritical cylindrical core made from enriched uranium oxide and metal thorium surrounded by igniter zone of enriched uranium. The material of central zone was to provide K_f value about 1. The hydrogen was added in the form of thin CH_2 foils and the $H/^{235}U$ nuclei ratio was from 0 up to ~70. The fuel enrichment was varied from 10 to 2.5%.

The KBR-22..23 were real critical systems with uranium-thorium core.

The criticality of system and K_f of central zone were measured in the experiments. In addition, ratio of ^{232}Th and ^{238}U capture and fission cross-sections to ^{235}U fission cross-section were measured in the central zone. The relative cross-sections of some transuranium elements were measured.

The experiments were made in the BN-350 reactor for thorium sample irradiation to define the intensity of ^{233}U accumulation and ^{232}U content. In addition the relative fission, capture and $(n,2n)$ cross-sections were measured in different zones of the reactor for ^{232}Th , ^{233}U and ^{231}Pa .

УДК 621.039.526:621.039.516.4.

Investigation of Thorium Irradiated in Lateral Blanket of Fast Reactor and in Thermal Spectrum of Graphite Reactor \ A.V.Zvonarev, B.Ya.Zil'berman, V.I.Ivanov, N.A.Nerozin, V.B.Pavlovich, B.A.Petrukhin, F.P.Raskach, E.Ya.Smetanin, L.V.Sytnik, M.F.Troyanov, Yu.S.Khomyakov, L.A.Chernov, I.G.Sheyner; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 5 pages, 2 tables, 2 illustrations.

To find the possibility for ^{232}U accumulation lower than 10 ppm, the IPPE had organized the irradiation of thorium samples in the lateral blanket of the BN-350 fast reactor and in the thermal graphite-water reactor with subsequent radiochemical analysis of irradiated samples. The main results of these works are presented in the article.

УДК 621.039.58

On the Problem of Estimation of Model Uncertainties During Probabilistic Analysis Providing Nuclear Power Plant Unit's Safety \ A.V. Antonov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 6 pages, 1 table, 1 illustration. - References, 6 titles.

The problem of analysis of uncertainties, which are caused by sufficient discrepancies of conceptual and mathematical models as well as by numerical approximation, errors in codes and limitations of calculation process is considered. Methods of the statistic resemblance theory are proposed as a method of analysis. The Fisher criterion is considered which is a particular case of models obtained in the frame of the resemblance theory. A numerical example is given to illustrate the application of proposed method.