

ИЗУЧЕНИЕ НАКОПЛЕНИЯ УРАНА-233 ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ТОРИЯ В РЕАКТОРАХ С РАЗЛИЧНЫМИ НЕЙТРОННЫМИ СПЕКТРАМИ

Г.И. Гаджиев, В.Н. Сюзёв, В.М. Чистяков

*ГНЦ РФ Научно-исследовательский институт атомных реакторов,
г. Димитровград*



В ГНЦ РФ НИИАР проведены комплексные исследования, включающие отработку технологии изготовления твэлов с различными композициями на основе тория и проверку накопления ^{233}U и других тяжелых нуклидов при облучении образцов с ThO_2 в реакторах с различным спектром нейтронов.

Проблемой вовлечения тория в топливный цикл ядерных реакторов занимаются многие развитые страны, начиная с 60-х годов прошлого столетия. Решение ее позволит расширить топливную базу и обеспечить устойчивое долговременное развитие ядерной энергетики, благодаря большим доступным природным запасам тория (в 3–4 раза больше, чем урана) и его уникальным ядерно-физическим свойствам [1].

Для России коммерческий топливный цикл с полномасштабным использованием тория является пока далекой перспективой, поскольку оцененные запасы урана еще достаточно велики и в топливный цикл вовлекается избыточный оружейный и энергетический плутоний. Однако в последнее время интерес к ториевой проблеме возрос и у российских специалистов ядерной энергетики благодаря некоторым результатам общей исследовательской деятельности, имеющим в настоящее время актуальное практическое значение:

- реакторное сжигание плутония с использованием тория гораздо более эффективно, чем в составе уран-плутониевого топлива;
- использование тория возможно в существующих типах реакторов: ЛВР, ТВР, ВТГР, РБН без серьезной модификации их конструкции и дополнительных средств обеспечения безопасности;
- топливные материалы на основе тория и ториевый топливный цикл имеют внутренне присущую устойчивость к распространению, благодаря присутствию изотопа ^{232}U вместе с делящимся ^{233}U .

В этой связи предлагаемый сценарий вовлечения тория в двухкомпонентную ядерно-энергетическую систему с применением быстрых реакторов типа БН-800 с ториевым экраном и тепловых реакторов типа ВВЭР-1000, использующих наработанный в быстрых реакторах ^{233}U , представляет интерес.

Вместе с тем нужно отметить дефицит экспериментальных данных по выходам нуклидов при облучении топлива на основе тория нейтронами различных энергий. С

целью проверки накопления ^{233}U и других тяжелых нуклидов при облучении образцов тория в реакторах с различными спектрами нейтронов проведен ряд экспериментов. Были изготовлены несколько экспериментальных сборок для облучения ториевых образцов в различных реакторах ГНЦ РФ НИИАР. Характеристики образцов приведены в табл. 1.

Характеристика образцов

Таблица 1

№ п/п	Испытываемая композиция	Характеристика облучения
1	Таблетки $\text{ThO}_2\text{--Al}$	Активная зона реактора МИР
2	Таблетки ThO_2	9-й ряд бокового экрана реактора БОР-60
3	Таблетки ThO_2	8-й ряд бокового экрана реактора БОР-60

Для испытаний в реакторе МИР были изготовлены таблеточные твэлы с металло-керамической $\text{ThO}_2\text{--Al}$ композицией. Этот тип топлива был использован в связи с тем, что при низкой температуре теплоносителя необходима высокая теплопроводность сердечника. В качестве ториевой составляющей использован товарный (в состоянии поставки) порошок оксида тория. Для комплектования твэлов из смеси порошков оксида тория и алюминия на гидравлическом прессе производили таблетки диаметром 9,0 мм.

Для реактора БОР-60 изготавливали твэлы с керамическим сердечником. В штатной 7-твэльной ТВС бокового экрана центральный твэл с таблетками UO_2 заменили на аналогичный твэл с таблетками ThO_2 . Оболочка твэла из стали ОХ16Н15МЗБ, $\varnothing 14,5 \times 0,4$ мм, диаметр таблеток $\varnothing 13,2\text{--}13,25$ мм. В последующих экспериментах для испытаний использовали специальное облучательное устройство, устанавливаемое в ячейку бокового экрана реактора БОР-60 и содержащее один опытный твэл длиной 625 мм, с диаметром оболочки $\varnothing 10 \times 0,3$ мм и длиной активной части 500 мм.

Изготовление таблеток проводили по традиционной керамической технологии [2], включающей подготовку со связкой порошковой рабочей смеси, прессование таблеток на гидравлическом прессе, спекание таблеток при температуре 1700°C . Плотность готовых таблеток 85–90% от теоретической плотности.

Опытные твэлы испытывались в реакторах в течение одной кампании для накопления значимых количеств урана-233. Облученные твэлы после минимальной выдержки направляли на участок резки для приготовления образцов, которые затем направляли для химического растворения и подготовки навесок для анализа.

Анализируемые навески облученных образцов ^{232}Th подвергали растворению в два этапа. Сначала воздействовали смесью концентрированных соляной и азотной кислот. Затем раствор упаривали до влажных солей и продолжали растворение в азотной кислоте с добавлением плавиковой кислоты. Полученный раствор вновь упаривали до влажных солей для улетучивания плавиковой кислоты. Сухой остаток растворяли в азотной кислоте. От полученного раствора отбирали аликвоту и снимали α -спектр для расчета выхода ^{233}U ; раствор пропускали через колонку, заполненную анионитом Дауэкс 1 \times 8 (зернистостью 200 меш.), для разделения тория и урана.

На стадии фильтрации раствора торий и уран сорбируются на колонке, а в фильтрат проходят части протактиния и продуктов деления. Промывкой колонки азотной кислотой проводили десорбцию урана, при этом торий остается на колонке, а очистка урана от тория достигается более чем в 10^7 раз. Полученную фракцию урана упаривали досуха, растворяли в азотной кислоте и осадок подвергали дополнительной

Таблица 2

Результаты анализа

Твэл		Навеска (ThO ₂), г	Σα, Бк	Выход ²³³ U, % на 1г исх. Th	Масс- спектр, %	α-спектр, %	²³² U / ²³³ U	γ-спектр, Бк/г	Выход ²³³ Pa, %
Реактор	Образец								
МИР	Центр а.з.	0,17	7,0·10 ⁵	0,88-0,92	²³³ U – 99,02 ²³⁴ U – 0,98	²³³ U – 85 ²³² U – 15	80·10 ⁻⁶	²³³ Pa-2,2·10 ¹² ²³⁵ Zr-3,2·10 ⁹ ⁹⁵ Nb-3,2·10 ⁹ ¹⁴⁰ La-1,2·10 ¹⁰	0,28
	Верх а.з.	0,17	4,9·10 ⁵	0,80	²³³ U – 99,24 ²³⁴ U – 0,76	²³³ U – 87,4 ²³² U – 12,0	57·10 ⁻⁶	³³ Pa-1,6·10 ¹² ⁹⁵ Zr-5·10 ⁹ ⁹⁵ Nb-2,4·10 ⁹ ⁵¹ Cr-1,7·10 ¹¹	0,20
БОР-60, твэл ТВС бок. экрана	Низ а.з.	4,8	2,3·10 ⁶	0,14	²³³ U – 99,3 ²³⁴ U – 0,70	²³³ U – 99,8 ²³² U – (0,1±0,3)	(0,45±1,4)·10 ⁻⁶	²³³ Pa-1,5·10 ¹¹ ²³⁵ Zr-1,6·10 ⁸ ⁹⁵ Nb-1·10 ⁸	0,02
	Центр а.з.	4,8	8,0·10 ⁶	0,46	²³³ U – 98,25 ²³⁴ U – 1,75	²³³ U – 99,7 ²³² U – (0,5±1)	(2,3±5)·10 ⁻⁶	²³³ Pa-1,7·10 ¹¹ ²³⁵ Zr-2,0·10 ⁸ ⁹⁵ Nb-1·10 ⁸	0,02
	Верх а.з.	4,8	2,1·10 ⁶	0,12	²³³ U – 99,48 ²³⁴ U – 0,52	²³³ U – 98,5 ²³² U – (1,2±1,8)	(5,5±8,2)·10 ⁻⁶	²³³ Pa-7,5·10 ¹⁰ ²³⁵ Zr-1,6·10 ⁸ ⁹⁵ Nb-1·10 ⁸	0,01
БОР-60, п. 3, табл. 1	Центр а.з.	5,0668	–	0,18	–	–	12 ·10 ⁻⁶		
	Верх а.з.	3,3468		0,16			11·10 ⁻⁶		

очистке от следов тория, продуктов деления и инертных примесей экстракционно-хроматографическим методом на колонке, заполненной Д2ЭГФК, нанесенной на тефлон. Десорбцию урана с колонки осуществляли соляной кислотой. Полученную фракцию урана анализировали на содержание ^{232}U , ^{233}U , ^{234}U α -, γ -спектрометрическими методами для расчетов изотопного состава урана, выхода ^{233}U и отношения $^{232}\text{U}/^{233}\text{U}$. Результаты расчетов приведены в табл. 2

Таким образом, было установлено, что технология изготовления твэлов с торий-содержащими композициями не отличается от изготовления урановых твэлов и процесс изготовления не вызывает затруднений.

Определенные трудности возникали при растворении таблеток в процессе приготовления образцов для спектрометрических исследований.

Качество конечного продукта свидетельствует, что примеси ^{232}U могут затруднять работу и будут влиять на организацию технологического процесса. В то же время следует отметить, что продукт, полученный в боковом экране реактора на быстрых нейтронах, имеет более высокое качество – обладает значительным преимуществом по чистоте (выше на порядок).

Литература

1. Алексеев П.Н., Глушков Е.С., Морозов А.Г., Пономарев-Степной Н.Н., С.А. Субботин, Цуриков Д.Ф. Концепция возможного вовлечения тория в ядерно-энергетический сектор//Известия вузов. Ядерная энергетика. – 1999. – № 1.
2. Решетников Ф.Г. и др. Разработка, производство и эксплуатация тепловыделяющих элементов энергетических реакторов (в 2 кн./Под ред. Ф.Г. Решетникова). – М.: Энергоатомиздат, 1995.

Поступила в редакцию 21.08.2006