

В. А. Старков¹, С. В. Майнсков¹, А. Л. Ижutow², В. В. Пименов²¹ Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Москва, Россия² ОАО «Государственный научный центр – Научно-исследовательский институт атомных реакторов», Димитровград-10, Россия**ОПТИМИЗАЦИЯ ПАРАМЕТРОВ МИШЕНИ ДЛЯ НАКОПЛЕНИЯ ⁹⁹Mo С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ НИЗКООБОГАЩЕННОГО УРАНА**

Приведены результаты поисковых расчетных исследований характеристик мишеней трубной конструкции на основе низкообогащенного урана (НОУ) для накопления ⁹⁹Mo в активных зонах реакторов бассейнового типа (РБТ). На материальный состав мишеней и размеры наложены ограничения, обусловленные технологией радиохимической переработки облученных мишеней. Результаты исследований показали, что нейтронно-физические и теплогидравлические характеристики такой мишени с оптимальными параметрами обеспечивают производительность реакторной наработки ⁹⁹Mo 4000 Ки в неделю на одну облучательную позицию в активной зоне.

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

Введение

Главные проблемы производства ⁹⁹Mo при переходе на низкообогащенный уран (до 20 %) следующие:

уменьшение выхода целевого радионуклида при снижении обогащения – в 4,5 раза (с 90 % до 20 %) и, соответственно, уменьшение производительности действующих процессов (производств);

увеличение выхода альфа-излучающих радионуклидов трансурановых элементов (в первую очередь ²³⁹Pu) в десятки раз, за счет чего существенно возрастает риск снижения качества конечного продукта и возникает необходимость модификации технологии выделения (очистки) целевого радионуклида.

Основная компенсационная мера по уменьшению потерь в производительности реакторного накопления ⁹⁹Mo – увеличение общей массы урана в мишенях для увеличения массы ²³⁵U. Это приводит к необходимости использования большего количества мишеней и возрастанию затрат на их изготовление, а также к увеличению потребности в реакторном ресурсе, т.е. в количестве каналов для облучения, что увеличивает стоимость облучения. Из-за ограниченности реакторных ресурсов последнее не всегда может быть реализовано.

Альтернативный подход – максимально возможное увеличение плотности топливной композиции мишени по урану с одновременным увеличением объема сердечника (объема делящегося материала в мишени).

В связи с этим в части технологии реакторного накопления ⁹⁹Mo необходимо:

разработать ураноемкую конструкцию мишени и обосновать режимы ее реакторного облучения с выполнением полного цикла нейтронно-физических и теплофизических расчетов и обоснованием безопасности;

разработать новую технологию изготовления мишеней.

В данной работе рассмотрены процесс реакторного накопления ⁹⁹Mo и вопросы оптимизации параметров мишени трубной конструкции с насыпным сердечником из порошка интерметаллида урана на основе НОУ (рис. 1).

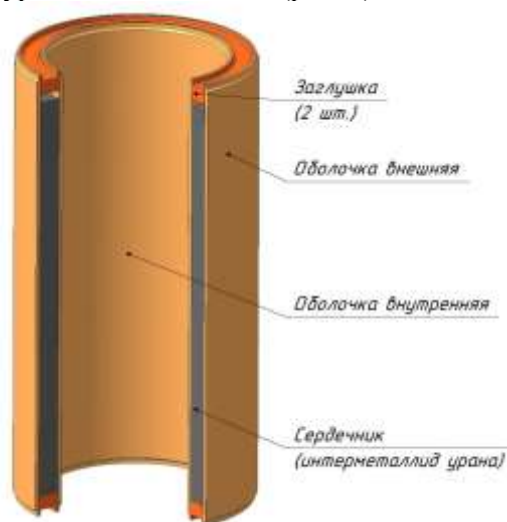


Рис. 1. Эскиз мишени.

Целевой функцией (критерием оптимальности) служит мощность облучательного устройства (ОУ) с мишенями. Приняты общие требования и ограничения к материалному составу и конструкции мишеней, связанные с условиями облучения и переработки облученных мишеней.

1. Предполагается, что переработка облученных мишеней будет производиться по технологии ROMOL-99 [1], в которой перерабатывается облученное топливо в виде смеси интерметаллидов урана: UAl_3 , UAl_4 .

2. Ограничивающим фактором процесса ROMOL-99 в ОАО «ГНЦ НИИАР» является максимальное количество алюминия не более 200 г в составе загружаемого в аппарат-растворитель облученного материала. Вторым ограничивающим фактором является длина загружаемой в аппарат-растворитель мишени – не более 200 мм.

3. Облучение мишеней проводится в реакторах серии РБТ [2, 3], условия охлаждения мишеней в которых должны обеспечивать запас до кризиса теплообмена не менее 2. Допускается поверхностное кипение теплоносителя. Допустимая температура интерметаллидного топлива при облучении принята равной 500 °С.

Для оценки режимов работы и параметров мишеней для наработки ^{99}Mo при снижении обогащения урана до 20 % по ^{235}U предварительно были проведены поисковые нейтронно-физические и теплогидравлические расчеты характеристик ОУ с размещением мишеней трубчатой конструкции по типу «труба в трубе». В результате проведенных исследований было показано, что многотрубные ОУ при обогащении урана 20 % в сравнении с ОУ, содержащим одну мишень, имеют несущественные преимущества по мощности и тепловой нагрузке топлива, проигрывая в количестве комплектующих изделий (мишенях) и топлива. В данной работе рассмотрено ОУ, содержащее одну составную трубчатую мишень с насыпным сердечником на основе интерметаллида урана 20 %-го обогащения по ^{235}U . Для определенности принят к рассмотрению сплав UAl_4 плотностью 5,7 г/см³, с массовым содержанием урана 70 %.

Использование насыпного сердечника существенно влияет на характеристики мишени по следующим причинам:

1. Наличие насыпного сердечника дает возможность использовать при радиохимической переработке только порошок интерметаллида урана без оболочки, либо порошок, расфасованный при сборке мишени в тонкую алюминиевую фольгу. Это дает возможность увеличить содержание делящегося материала в мишени, не нарушая ограничения на общую массу алюминия в перерабатываемом материале, и увеличить мощность мишени при обеспечении надлежащего теплосъема.

2. Применение насыпного сердечника снимает ограничение на длину мишени 200 мм, определяемую высотой аппарата-растворителя, и позво-

ляет увеличить длину активной части мишени до высоты активной зоны реактора, тем самым более рационально использовать полезный объем облучательного устройства.

Таким образом, возникает необходимость исследования характеристик мишени от длины ее активной части и влияния на характеристики способа упаковки порошка интерметаллида в мишени. Здесь необходимо учитывать зависимость толщины сердечника от длины мишени при наличии ограничения на содержание алюминия и ее влияние на нейтронно-физические и теплогидравлические характеристики ОУ. Кроме того, при применении насыпного сердечника его материальный состав и плотность зависят от выбора способа засыпки (например, наличия разбавителя, применения виброуплотнения и т.д.). Это диктует необходимость исследования характеристик мишени от пористости сердечника, массового содержания делящегося материала в сердечнике.

Нейтронно-физические расчеты проводились с помощью кода MCU-4 [4], в котором реализован метод Монте-Карло решения уравнения переноса излучения. Код RELAP5/MOD3.2 [5] использовался при проведении расчетов теплогидравлических характеристик ОУ.

Результаты исследования характеристик мишени

Выбор величины зазоров между чехлом экспериментального канала, мишенью и внутренним вытеснителем

Мишень предполагается размещать в цилиндрическом канале с зазором между ней и чехлом канала. Внутри мишени также с зазором размещают вытеснитель.

Величину зазоров в расчетах варьировали изменением диаметров мишени и внутреннего вытеснителя. При этом предполагалось, что величины зазоров между чехлом канала и мишенью и между мишенью и вытеснителем одинаковы. Ограничение на количество алюминия в сердечнике (200 г) приводит к однозначной зависимости между толщиной сердечника мишени и величиной зазоров при фиксированной длине сердечника и плотности засыпки топлива.

На рис. 2 приведены эти зависимости для значения длины сердечника 190 мм. Из рисунка видно, что толщина сердечника довольно слабо зависит от величины зазора: ее изменение составляет не более 20 % при изменении величины зазора более чем в 2 раза. Величина загрузки ^{235}U в мишени при фиксированной массе алюминия в сердечнике не зависит от величины зазора и для обогащения 20 % составляет 94,2 г.

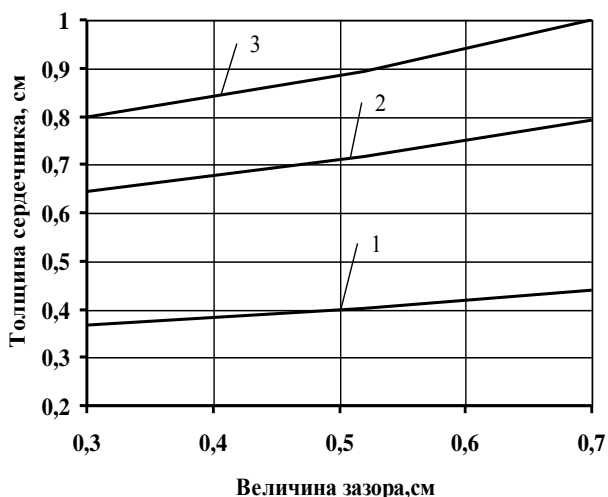


Рис. 2. Зависимость толщины сердечника мишени от величины зазора при массе алюминия в сердечнике 200 г, длине сердечника 190 мм и объемной доле топлива: 1 – 1,0; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

Уменьшение толщины сердечника при постоянной плотности делящегося материала приводит к уменьшению блокировки топлива и увеличению его тепловой нагрузки. В результате при уменьшении зазора и сохранении объема сердечника (сохранении массы урана и алюминия в сердечнике) увеличивается мощность мишени. При величине зазора 3 мм мощность мишени с объемной долей топлива в сердечнике 0,5 - 0,6 и длине сердечника 190 мм составляет 80 - 85 кВт (рис. 3).

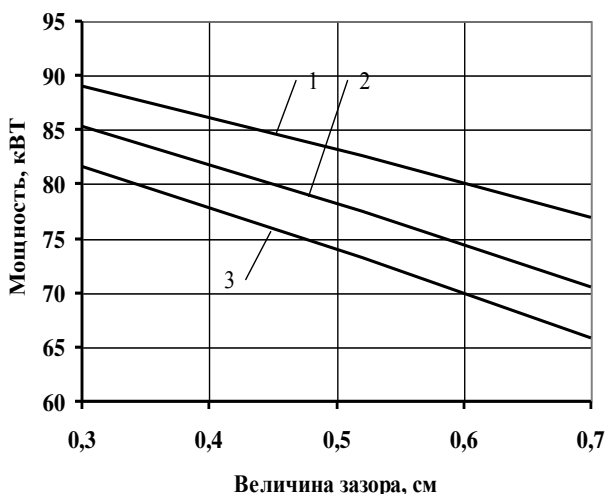


Рис. 3. Зависимость мощности ОУ от величины зазора при объемной доле топлива: 1 – 1,0; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

Ограничением снизу при выборе величины зазора являются теплогидравлические условия теплосъема. На рис. 4 приведена зависимость запаса до кризиса теплосъема от величины зазора. Из рисунка видно, что независимо от плотности засыпки топлива при зазоре 3 мм запас до кризиса теплосъема составляет 2. Если учесть,

что при увеличении длины сердечника мишени (относительно 190 мм, что возможно при использовании засыпного сердечника), из-за увеличения сопротивления трению движению теплоносителя и уменьшения его скорости циркуляции значение запаса будет еще меньше, то значение зазора 3 мм следует считать минимальным, допустимым в условиях облучения мишени в реакторах серии РБТ.

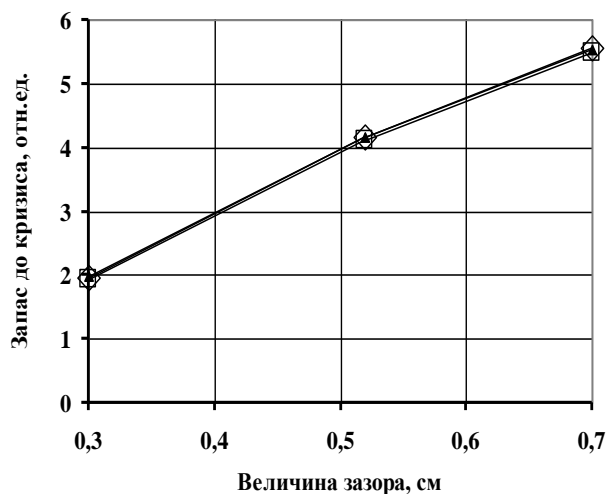


Рис. 4. Зависимость запаса до кризиса теплообмена от величины зазора (высота сердечника 190 мм).

С другой стороны, увеличение зазора и толщины сердечника увеличивает температуру топлива, причем в большей степени при большей пористости сердечника (меньшей его теплопроводности). На рис. 5 представлены соответствующие зависимости, которые показывают, что при плотности засыпки 0,5 от теоретической и величине зазора 7 мм температура сердечника достигает предельно допустимого значения, принятого для интерметаллида урана – 500 °С.

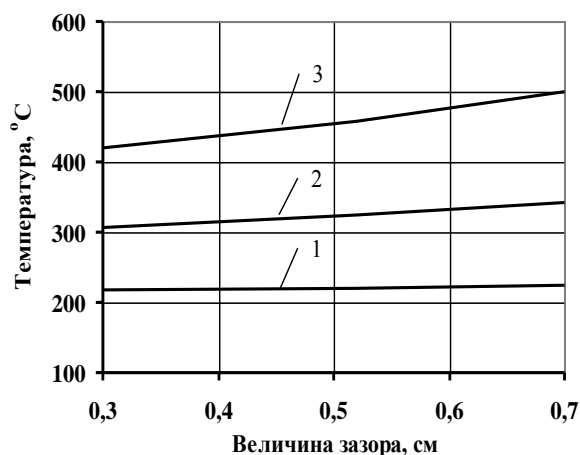


Рис. 5. Зависимость максимальной температуры сердечника мишени от величины зазора при объемной доле топлива: 1 – 1,0; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

По совокупности изложенного для дальнейшего исследования характеристик мишени выбрана величина зазора 5 мм. Это обеспечивает запас до кризиса теплообмена около 4 (см. рис. 4) и значение максимальной температуры сердечника менее 450 °С (см. рис. 5) при длине сердечника 190 мм.

Исследование зависимости характеристик мишени от длины сердечника

На рис. 6 представлены зависимости толщины сердечника от его длины. С увеличением длины при ограничении на количество алюминия в сер-

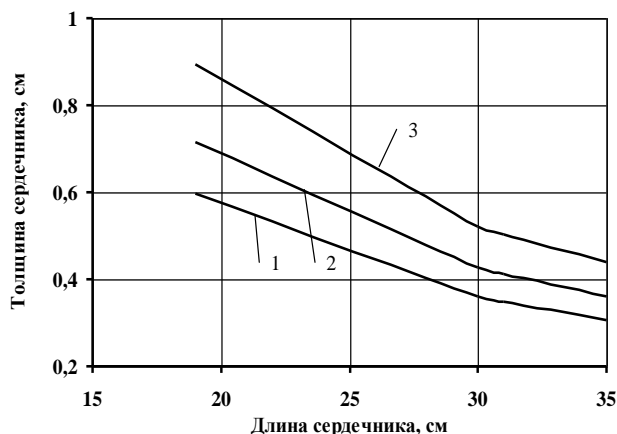


Рис. 6. Зависимость толщины сердечника мишени от длины сердечника при объемной доле топлива: 1 – 0,7; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

При увеличении длины сердечника из-за увеличения теплосъемной поверхности мишени уменьшается максимальная температура оболоч-

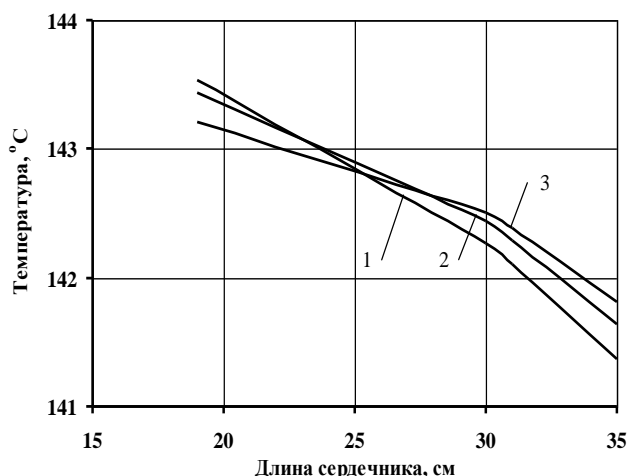


Рис. 8. Зависимость максимальной температуры оболочки мишени от длины сердечника при объемной доле топлива: 1 – 0,7; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

При длине сердечника 300 - 350 мм при любой плотности сердечника максимальная температура сердечника не превышает 320 °С (рис. 10), запас до кризиса теплообмена составляет не менее 4 (рис. 11).

дечнике толщина сердечника уменьшается. Вследствие этого из-за уменьшения блокировки топлива увеличивается его тепловая нагрузка и мощность мишени. На рис. 7 приведена зависимость мощности мишени от длины сердечника. Из рисунка видно, что мощность мишени практически независимо от пористости сердечника составляет 110 и 114 кВт при длине сердечника 300 и 350 мм соответственно. Это соответствует активности накопленного ⁹⁹Mo при шестидневном облучении не менее 4000 Ки при выгрузке из реактора.

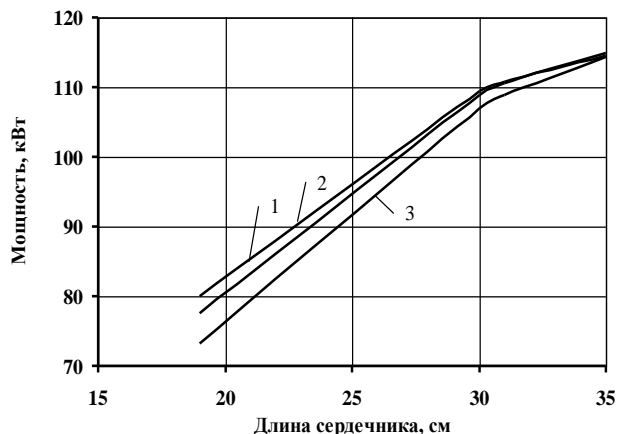


Рис. 7. Зависимость мощности ОУ от длины сердечника мишени при объемной доле топлива: 1 – 0,7; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

ки (рис. 8) при наличии поверхностного кипения теплоносителя (рис. 9).

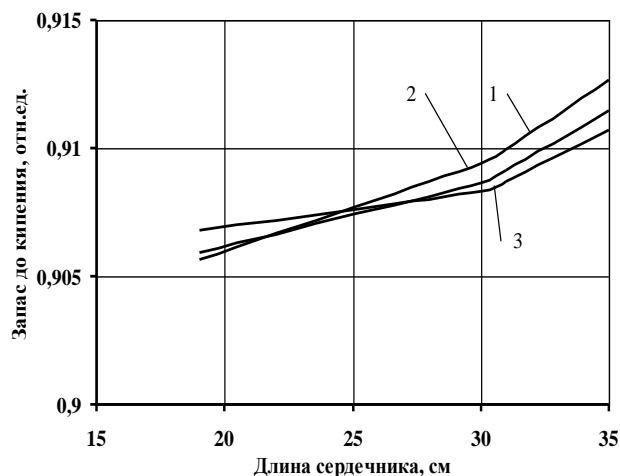


Рис. 9. Зависимость запаса до кипения теплоносителя от длины сердечника мишени при объемной доле топлива: 1 – 0,7; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

Эффективность использования топлива (отношение мощности мишени к массе делящегося изотопа) в указанном диапазоне длин не менее 1,1 кВт/г(²³⁵U) (рис. 12), что соответствует выгоранию ²³⁵U при семидневном облучении около 1 %.

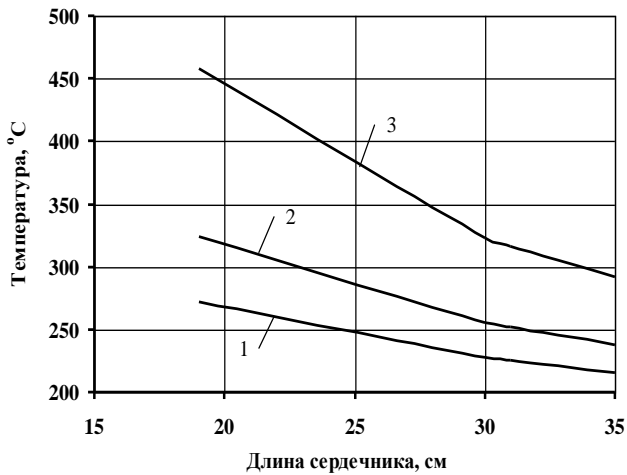


Рис. 10. Зависимость максимальной температуры сердечника мишени от длины сердечника при объемной доле топлива: 1 – 0,7; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

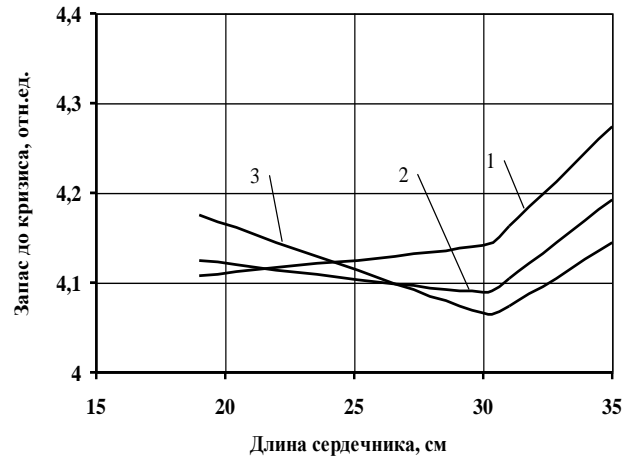


Рис. 11. Зависимость запаса до кризиса теплообмена от длины сердечника мишени при объемной доле топлива: 1 – 0,7; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

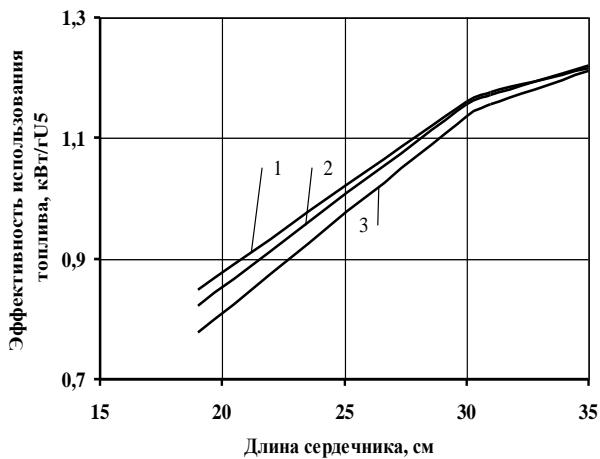


Рис. 12. Зависимость эффективности использования топлива от длины сердечника мишени при объемной доле топлива: 1 – 0,7; 2 – 0,6; 3 – 0,5.

Заключение

В результате проведенных исследований обоснованы следующие параметры трубной

мишени с насыпным сердечником из порошка интерметаллида урана на основе НОУ, предназначенной для накопления ^{99}Mo в условиях активной зоны реакторов РБТ:

зазоры между мишенью и чехлом экспериментального канала, мишенью и внутренним вытеснителем должны составлять 5 мм;

длина активной части мишени должна быть в диапазоне 300 - 350 мм.

При насыпной плотности сердечника 0,5 - 0,6 от теоретической и обогащении урана по ^{235}U 20 % мощность мишени в реакторах серии РБТ составит не менее 100 кВт. При шестидневном облучении активность накопленного ^{99}Mo при выгрузке ОУ из реактора будет не менее 4000 Ки. При этом будут обеспечены запас до кризиса теплообмена около 4, максимальное значение температуры сердечника не выше 320 °С.

Исследования 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. Цыканов В.А., Аверьянов П.Г., Бурукин В.П. и др. Исследовательский реактор РБТ-6 // Атомная энергия. - 1977. - Т. 43, вып. 11. - С. 1 - 10.
3. Цыканов В.А. Исследовательские реакторы НИИАР и их экспериментальные возможности. - Димитровград: НИИАР, 1991.
4. Гомин Е.А. Статус MCU-4 // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. - 2006. - Вып. 1. - С. 6 - 32.
5. Carlson K.E. et al. Code structure, system models and solution methods // RELAP5/MOD3.2: Code manual. NUREG/CR-5535 INEL-95/0174, 1995.

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

¹ Національний дослідницький ядерний університет «МІФІ», Москва, Росія
² ВАТ «Державний науковий центр –
Науково-дослідний інститут атомних реакторів», Дмитровград-10, Росія

**ОПТИМІЗАЦІЯ ПАРАМЕТРІВ МІШЕНІ ДЛЯ НАКОПИЧЕННЯ ⁹⁹Mo
З ВИКОРИСТАННЯМ НИЗЬКОЗБАГАЧЕНОГО УРАНУ**

Наведено результати пошукових розрахункових досліджень характеристик мішеней трубчастої конструкції на основі низькозбагаченого палива для накопичення ⁹⁹Mo в активних зонах реакторів басейнового типу. На матеріальний склад мішеней та розміри накладено обмеження, обумовлені технологією радіохімічної переробки опромінених мішеней. Результати досліджень показали, що нейтронно-фізичні та теплогідравлічні характеристики такої мішені з оптимальними параметрами забезпечують продуктивність реакторного напрацювання ⁹⁹Mo 4000 Ки/тиждень на одну опромінювальну позицію в активній зоні.

Ключові слова: молібден, низькозбагачений уран, реактор басейнового типу, мішень, опромінювальний 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

**OPTIMIZATION OF THE TARGET PARAMETERS FOR ⁹⁹Mo ACCUMULATION
USING LOW-ENRICHED URANIUM**

Search calculation results are presented on the characteristics of tube-type target based on low-enriched uranium for ⁹⁹Mo accumulation in the core of the pool-type reactors. The limits are imposed on the target material composition and sizes due to the irradiated target radiochemical reprocessing. The study results showed that the neutronic and thermal-hydraulic characteristics of target with the optimal parameters provide the ⁹⁹Mo accumulation productivity of 4000 Ci/week per one irradiation position in the core.

Keywords: molybdenum, low-enriched uranium, 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. *Tsykanov V.A., Aver'yanov P.G., Burukin V.P. et al.* // Atomnaya energiya. - 1977. - Vol. 43, Iss. 11. - P. 1 - 10. (Rus)
3. *Tsykanov V.A.* Research reactors in the Research Institute of Atomic Reactors and their experimental features. - Dimitrovgrad: NIAR, 1991. (ERus)
4. *Gomin E.A.* // Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Ser. Fizika yadernykh reaktorov. - 2006. - Iss. 1. - P. 6 - 32. (Rus)
5. *Carlson K.E. et al.* Code structure, system models and solution methods // RELAP5/MOD3.2: Code manual. NUREG/CR-5535 INEL-95/0174, 1995.

Надійшла 09.02.2015

Received 09.02.2015