

ВОЗМОЖНОСТЬ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ СВИНЦА, ОБОГАЩЕННОГО ИЗОТОПОМ СВИНЦА-208, ИЗ ТОРИЙСОДЕРЖАЩИХ РУД И МИНЕРАЛОВ ДЛЯ НУЖД АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ

Г.Л. Хорасанов*, А.И. Блохин*, А.А. Вальтер**

**ГНЦ РФ-Физико-энергетический институт имени А.И. Лейпунского, г. Обнинск*

***Институт прикладной физики Национальной академии наук Украины, г. Сумы*



Исследуется возможность использования в качестве теплоносителя быстрых реакторов (БР) и ускорительно-управляемых систем (УУС) радиогенного свинца, который может быть извлечен из торийсодержащих руд и минералов. В этих природных образованиях радиогенный свинец, продукт радиоактивного распада тория, высоко обогащен стабильным изотопом свинца-208, который обладает чрезвычайно низким сечением радиационного захвата нейтронов в области малых и промежуточных энергий нейтронов (5 эВ–50 кэВ). Теплоноситель БР и УУС, состоящий из свинца-208, привлекателен как материал, сберегающий нейтроны для экономной загрузки реакторов ядерным топливом, расширенного воспроизводства ядерного топлива и трансмутации долгоживущих радиотоксичных отходов атомной энергетики. В статье обсуждаются, с одной стороны, физико-технические вопросы приемлемости и преимущества использования радиогенного свинца различного изотопного состава в ядерно-энергетических установках и, с другой стороны, геолого-минералогические и экономические вопросы получения радиогенного свинца в больших количествах, исчисляемых десятками и сотнями тонн. Поскольку на территориях России и Украины в настоящее время ведется эксплуатация месторождений коренных руд и россыпей минералов, в отвалах которых содержатся торий и свинец-208, то в статье дан анализ целесообразности и возможности рентабельного получения природного свинца, высокообогащенного 208 изотопом. Формулируются требования к объемам переработки торийсодержащих руд и минералов, при которых попутно с производством ценной редкометаллической продукции (титан, ниобий, тантал, цирконий и др.) могут быть получены торий и свинец-208 по приемлемой цене и в количествах, необходимых для атомной энергетики 2020–2030 гг.

Ключевые слова: Pb-208, радиогенный свинец, торий, жидкометаллический теплоноситель, быстрые реакторы, ускорительно-управляемые системы, торийсодержащие руды и минералы.

© Г.Л. Хорасанов, А.И. Блохин, А.А. Вальтер, 2012

Key words: Pb-208, radiogenic lead, thorium, liquid metal coolant, fast reactors, accelerator driven systems, thorium-containing ores and minerals.

ВВЕДЕНИЕ

Одной из важных характеристик конструкционных материалов ядерных реакторов является величина поглощения ими нейтронов. Известны способы минимизации потерь нейтронов в АЗ: использование бесчехловых тепловыделяющих сборок (ТВС), применение мало поглощающих нейтроны конструкционных материалов во внутризонных устройствах, использование материалов с высоким альбедо для уменьшения утечки нейтронов и др.

Авторы работ [1–11] обращают внимание еще на одну возможность снижения потерь нейтронов в АЗ, охлаждаемой свинцовым теплоносителем, – дообогащение свинца изотопом свинца-208 от природных 52,32 до 99,0%. Свинец-208 как дважды магическое ядро обладает чрезвычайно низким сечением радиационного захвата нейтронов при энергиях нейтронов ниже 50 кэВ, что способствует экономии нейтронов и появлению ряда сопутствующих положительных качеств БР и УУС.

Ограничивающим фактором использования высокообогащенного свинца-208 в качестве теплоносителя является его высокая цена на мировом рынке. В проекте МНТЦ #2573 [12] были заложены теоретические основы разделения изотопов свинца с использованием фотохимических селективных реакций. Преимущества фотохимического метода разделения изотопов свинца состоят в одно- или двух – фотонном возбуждении атомов, возможности использования коммерчески доступных полупроводниковых лазеров и высокой эффективности разделяемых изотопов свинца в реакционной камере. Метод селективных фотореакций оперирует с рабочим веществом в виде паров свинца и не требует конверсии свинца в летучее соединение свинца и обратное его превращение в целевой продукт, как это имеет место в методе газовых разделительных центрифуг. Все это позволяет надеяться на получение на основе фотохимии больших количеств (десятки и сотни тонн) изотопа свинца-208 с 99,0%-ным обогащением по приемлемой для атомной энергетики цене, не более \$200/кг [13], в случае промышленного производства больших количеств целевого продукта. Однако заявленные преимущества фотохимического способа разделения изотопа свинца-208 до сих пор не подтверждены экспериментально из-за отсутствия прямых измерений по получению весовых количеств этого изотопа.

В настоящее время изотопы свинца традиционно получают в газовых центрифугах с использованием тетраметила свинца, $Pb(CH_3)_4$, в качестве газообразного рабочего вещества. По оценкам, приведенным в работе [14], цена металлического свинца-208 с обогащением 99,0%, полученного при промышленном центрифужном производстве с объемом порядка 150 кг/год, составит не менее \$1000–2000/кг [14], которая экономически относительно велика для атомной энергетики.

Между тем, в природе помимо свинца с наиболее распространенным изотопным составом (1,48% Pb-204, 23,6% Pb-206, 22,6% Pb-207, 52,32% Pb-208) встречается свинец с более высоким обогащением по изотопу Pb-208, являющийся продуктом конечного распада радиоактивного ядра Th-232. Поэтому в древнейших рудах ($\sim 3 \cdot 10^9$ лет) содержание изотопа ^{208}Pb составляет $\sim 14\%$ массовых от содержания тория. Заметим, что изотоп свинца Pb-206 является конечным продуктом радиоактивного распада урана-238, а Pb-207 – урана-235, а изотоп Pb-204 является единственным нерадиогенным изотопом свинца.

В большинстве минералов-концентраторов тория количество первичного свинца мало. Количество первичного урана также может быть незначительным. Поэто-

му в таких минералах изотопная чистота ^{208}Pb может приближаться к 100%. Но такие случаи редки, и для прогнозирования минерального носителя сильно обогащенного ^{208}Pb минерала (руды) требуется специальное исследование. Как известно, торийсодержащие руды и минералы встречаются в ряде стран: Индии, Бразилии, Австралии, ЮАР, США, России, Украине и других.

ПРЕИМУЩЕСТВА ИСПОЛЬЗОВАНИЯ СВИНЦА, ОБОГАЩЕННОГО ИЗОТОПОМ СВИНЦА-208, В КАЧЕСТВЕ ТЕПЛОНОСИТЕЛЯ БР И УУС

Уменьшение поглощения нейтронов в теплоносителе из свинца-208

На рисунках 1,2 приведены микроскопические сечения радиационного захвата нейтронов стабильным изотопом свинца-208 (Pb-208), эвтектикой свинца-висмута (Pb-Bi) и природным свинцом (Pb-nat), подготовленные на основе библиотеки ENDF/B-VII.0. Сечения представлены в 28-групповом разбиении по энергиям нейтронов БНАБ-93 [15].

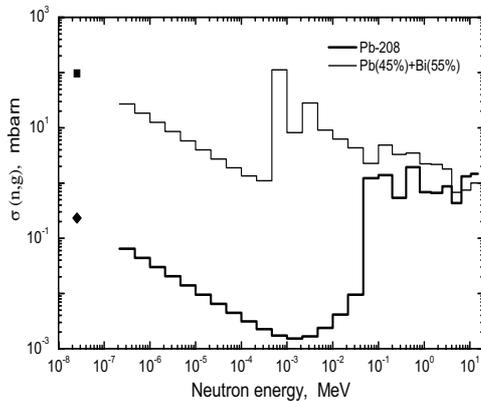


Рис.1. Оцененные данные из библиотеки ENDF/B-VII.0 по микроскопическим сечениям радиационного захвата нейтронов стабильным изотопом свинца-208 и эвтектической смесью свинца-висмута

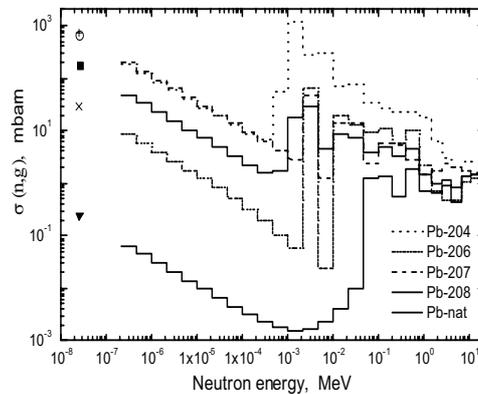


Рис. 2. Оцененные данные из библиотеки ENDF/B-VII.0 по микроскопическим сечениям радиационного захвата нейтрона стабильными изотопами свинца и его природной смесью, Pb-nat

Видно, что во всем представленном диапазоне нейтронных энергий сечения захвата нейтронов эвтектикой свинца-висмута, а также природным свинцом, в несколько раз превышают сечения захвата нейтронов изотопом Pb-208 , а при энергиях $E_n < 50$ кэВ разница в величинах сечений достигает трех-пяти порядков.

Доля нейтронов с энергией $E_n < 50$ кэВ обычно составляет 20–30% всех нейтронов в АЗ БР и УУС, она возрастает в боковых и торцевых зонах реакторов.

В данной работе были выполнены расчеты нейтронных полей в АЗ и боковых экранах реактора РБЕЦ-М на основе математической модели, разработанной в [16] в качестве международного бенчмарка. Спектры нейтронов рассчитывались по программе MCNP/4C [17] с использованием ядерных данных из библиотеки ENDF/B-VII.0. При замене штатного теплоносителя на теплоноситель из свинца-208 все исходные данные, кроме топливной загрузки, оставались неизменными. Для выхода на критический режим ($K_{эфф} = 1.01$) содержание плутония в уран-плутониевом нитридном топливе было уменьшено со штатных 13,7 до 13,0%. Поправки на разные температуры теплоносителей на данном этапе расчетов не вносились. В таблице 1 представлены полученные расчетные данные по одnogрупповым, усредненным по нейтронным спектрам подзон АЗ, сечениям радиационного захвата

Таблица 1

Однорупповые сечения радиационного захвата нейтронов в теплоносителях быстрого реактора РБЕЦ-М (мбарн)

Наименование реактора и теплоноситель	Зона малого обогащения топлива (ЗМО)	Зона среднего обогащения топлива (ЗСО)	Зона большого обогащения топлива (ЗБО)	Зона бокового экрана (БЭ)	Зона торцевого экрана под ЗМО (ТЭ ЗМО)	Зона торцевого экрана под ЗСО (ТЭ ЗСО)	Зона торцевого экрана под ЗБО (ТЭ ЗБО)
РБЕЦ-М, Рb-Vi	3,71190	3,62388	3,66404	4,82878	5,32383	5,22481	5,40967
РБЕЦ-М, Рb-208	0,93296	0,94187	0,93931	0,86595	0,80867	0,81212	0,79005

нейтронов в реакторе РБЕЦ-М, охлаждаемом штатным теплоносителем Рb-Vi и теплоносителем на основе изотопа свинца Рb-208.

Из таблицы 1 следует, что наименьшим значением одноруппового сечения радиационного захвата нейтронов по теплоносителю активной зоны ($\langle\sigma\rangle = 0,93\text{--}0,94$ мбарн) характеризуется реактор РБЕЦ-М с теплоносителем из свинца-208. Однорупповое сечение радиационного захвата нейтронов в штатном свинцово-висмутовом теплоносителе активной зоны реактора РБЕЦ-М примерно в четыре раза больше аналогичного сечения реактора РБЕЦ-М с теплоносителем из свинца-208. В боковых и торцевых экранах реакторов рассчитанные однорупповые сечения радиационного захвата нейтронов в теплоносителе из свинца-208 примерно в шесть-семь раз меньше соответствующих сечений захвата нейтронов в теплоносителе из свинца-висмута. Малая величина этого сечения и отвечающий ей избыток нейтронов в реакторе РБЕЦ-М, охлаждаемом высокообогащенным свинцом-208, могут быть использованы для снижения топливной загрузки в АЗ, воспроизводства топлива и трансмутации радиотоксичных нуклидов в боковых и торцевых экранах реактора.

Ужестчение нейтронных спектров БР и УУС, охлаждаемых свинцом-208

На рисунке 3 представлены потоки нейтронов для зоны ЗМО БР РБЕЦ-М, охлаждаемой свинцом-208 и свинцом-висмутом, в условиях, когда суммарные по всему спектру зоны потоки нейтронов Y_n примерно одинаковы и $K_{эф}$ в обоих случаях близки к единице. Спектры представлены в групповом энергетическом разбиении БНАБ-93. Видно, что замена штатного теплоносителя из свинца-висмута на теплоноситель из свинца-208 приводит к ужестчению нейтронного спектра: средняя энергия нейтронов $\langle E_n \rangle$ в зоне возрастает с 0,402 до 0,428 МэВ, т.е. на 6,5%.

На рисунке 4 представлено отношения рассчитанных потоков нейтронов в ЗМО РБЕЦ-М с разными теплоносителями в линейном масштабе. Наглядно демонстрируется нарастание основной доли быстрых нейтронов ($E_n > 0,4$ МэВ) и очень малой доли (менее 1%) нейтронов с энергией $E_n < 100$ эВ в реакторе, охлаждаемом свинцом-208. При этом средняя энергия нейтронов в ЗМО $\langle E_n \rangle$, как отмечалось, в целом возрастает на 6,5%.

На рисунке 5 показано ужестчение нейтронного спектра зоны среднего топливного обогащения (ЗСО, Cell2) подкритического бланкета УУС в случае замены

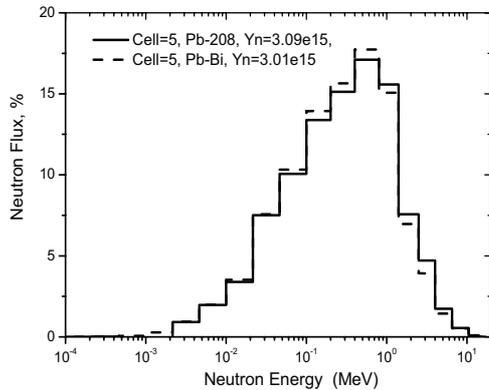


Рис. 3. Ужестчение нейтронного спектра зоны малого топливного обогащения (ЗМО, Cell = 5) реактора РБЕЦ-М в случае замены его штатного теплоносителя из свинца-висмута (пунктирная линия) на свинец-208 (сплошная линия); Y_n – полный поток нейтронов в ЗМО

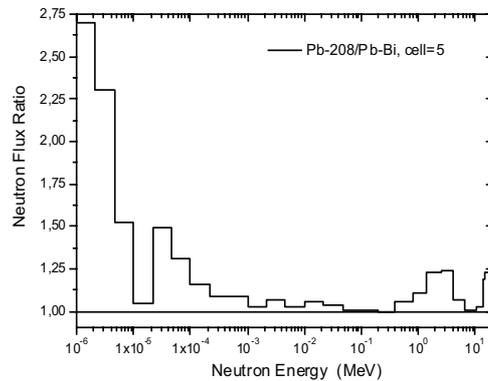


Рис. 4. Отношения потоков нейтронов (масштаб по оси Y – линейный) в зоне 5 реактора РБЕЦ-М, охлаждаемого Pb-208/Pb-Bi

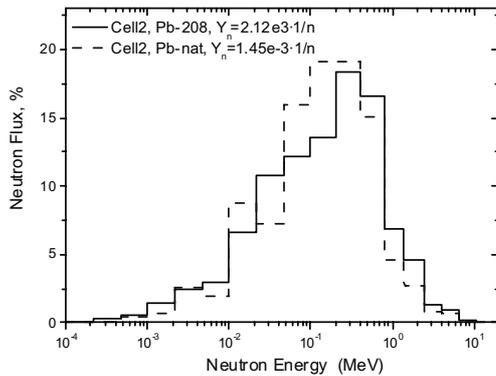


Рис. 5. Ужестчение нейтронного спектра Cell2 – зоны среднего топливного обогащения (ЗСО) подкритического бланкета УУС в случае замены его теплоносителя из природного свинца (пунктирная линия) на свинец-208 (сплошная линия); Y_n – полный поток нейтронов в ЗСО в расчете на один внешний нейтрон из источника, расположенного на оси бланкета

величины $K_{эфф} = 1,0246$, т.е. примерно на 1,5%. При этом, если в случае натриевого теплоносителя потребуются увеличение загрузки реактора РБЕЦ-М ядерным топливом примерно на 20%, то при использовании свинца-208 загрузка реактора может быть снижена. Расчеты показали, что при использовании свинца-208 для выхода на стандартный уровень критичности ($K_{эфф} = 1,0096$) обогащение уран-плутониевого топлива энергетическим плутонием должно быть снижено с 13,7%, заложенных в штатный РБЕЦ-М, до 13,0%. При этом начальная загрузка реактора энергетическим плутонием уменьшается с 3595 кг до 3380 кг, т.е. на 215 кг. В пересчете на 1 ГВт электрической мощности это дает экономию в загрузке реактора энергетическим плутонием порядка 0,65 тонны, что сравнимо с количеством энергетического плутония, получаемым из отработанного топлива российских АЭС ВВЭР-440 и БН-600, которое не превосходит одной тонны в год.

В УУС с тепловой мощностью подкритического бланкета, равной 80 МВт [7], при использовании теплоносителя из свинца-208 в рабочем состоянии расчетный эффективный коэффициент размножения нейтронов равен $K_{эфф} = 0,96997$. В этом

теплоносителя из природного свинца на свинец-208. Такая замена приводит к ужестчению нейтронного спектра ЗСО УУС, в среднем на 10–15%.

Увеличение эффективного коэффициента размножения нейтронов $K_{эфф}$ в БР и УУС, охлаждаемых свинцом-208

В реакторе РБЕЦ-М при условной замене штатного теплоносителя из эвтектики свинца-висмута на натриевый теплоноситель его расчетный эффективный коэффициент размножения нейтронов ($K_{эфф} = 1,0096$) падает до величины $K_{эфф} = 0,9727$, при замене же теплоносителя на природный свинец он уменьшается до величины $K_{эфф} = 0,9815$, а при использовании в реакторе РБЕЦ-М теплоносителя из свинца-208 возрастает до

случае для выделения в бланкете номинальной тепловой мощности 80 МВт потребуются инжектировать в нейтронный источник пучок протонов с током $I_p=2,8$ мА и энергией $E_p = 600$ МэВ, $P_p = 1,68$ МВт. Если же теплоноситель бланкета заменить на природный свинец, то исходный эффективный коэффициент размножения нейтронов уменьшается до величины $K_{эфф} = 0,95289$. В этом случае для выделения в бланкете номинальной тепловой мощности 80 МВт потребуются увеличить ток и мощность пучка до величин $I_p = 4,32$ мА и $P_p = 2,59$ МВт, т.е. в 1,5 раза. При сохранении же мощности пучка на прежнем уровне ($P_p = 1,68$ МВт) для поддержания номинальной мощности бланкета потребуются увеличить топливную загрузку.

Увеличение коэффициента воспроизводства топлива в БР и УУС, охлаждаемых свинцом-208

Избыток нейтронов, обусловленный их малым поглощением в теплоносителе из Pb-208, может быть использован для воспроизводства топлива и трансмутации радиотоксичных нуклидов. Рассмотрим в качестве примера радиационный захват нейтронов ураном-238, приводящий, в конечном счете, к образованию топлива – плутония-239. Эффективность этого процесса в АЗ УУС и БР будет тем выше, чем больше величина одноруппового сечения радиационного захвата нейтронов ядром урана-238. На рисунке 6 представлены микросечения радиационного захвата нейтронов ядром U-238, подготовленные на основе библиотеки ENDF/B-VII.0.

Видно, что микросечения радиационного захвата нейтронов ураном-238 достаточно велики в характерных нейтронных спектрах БР и УУС, а в диапазоне малых энергий нейтронов ($E_n = 5-10$ эВ) достигается максимум сечения радиационного захвата нейтронов, порядка 170 барн. Поэтому можно ожидать увеличения однорупповых сечений захвата нейтронов ядрами U-238 в спектрах АЗ БР и УУС, охлаждаемых Pb-208, в которых доля нейтронов малых энергий ($E_n = 5-10$ эВ) и промежуточных энергий ($E_n < 5 \cdot 10^4$ эВ) повышена.

В таблице 2 приведены рассчитанные однорупповые сечения радиационного захвата нейтронов ядром U-238, усредненные по нейтронным спектрам АЗ УУС мощностью 80 МВт тепловых и АЗ критических реакторов БРЕСТ-300 МВт эл., БН-600 МВт эл и РБЕЦ-М 340 МВт эл., охлаждаемых различными теплоносителями.

Для получения точных сведений о коэффициентах воспроизводства топлива КВ и КВА потребуются специальные расчеты по известным кодам, однако уже на основании приведенных в табл. 2 однорупповых сечений можно предполагать, что при использовании теплоносителя из свинца-208 воспроизводство топлива из урана -238 в АЗ, торцевых и боковых экранах БР и УУС будет повышено. Заметим, что однорупповые сечения захвата нейтронов урана-238 в нейтронных полях ADS-80 с теплоносителем из свинца-208 значительно отличаются в большую сторону от тех же сечений, вычисленных для реактора-бридера БН-600.

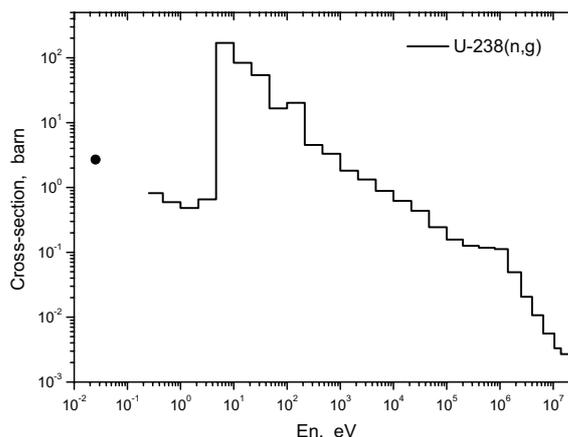


Рис. 6. Микроскопические сечения радиационного захвата нейтронов ядром урана-238 в диапазоне энергий нейтронов $10^{-2}-2 \cdot 10^7$ эВ

Таблица 2

Однорупповые сечения радиационного захвата нейтронов ядром урана-238 в нейтронных спектрах активных зон различных УУС и БР (мбарн)

Реактор	Теплоноситель	Однорупповые сечения
ADS-80 МВт тепл.	Pb-208	639,3
ADS-80 МВт тепл	Pb-nat	405,3
БРЕСТ-300 МВт эл.	Pb-nat	308,9
БН-600 МВт эл.	Na-23	296,5
РБЕЦ-М-340 МВт эл.	Pb-208	187,4
РБЕЦ-М-340 МВт эл.	Pb-Bi	188,6

В качестве иллюстрации на рис. 7 и 8 приводятся результаты оценочных расчетов накопления плутония-239 и выгорания урана-238 в ЗБО (Cell 3) УУС с тепловой мощностью 80 МВт. Расчеты изменения нуклидного состава урана-238 были выполнены на базе комплекса ACDAM [18], развитого в Центре ядерных данных ГНЦ РФ-ФЭИ.

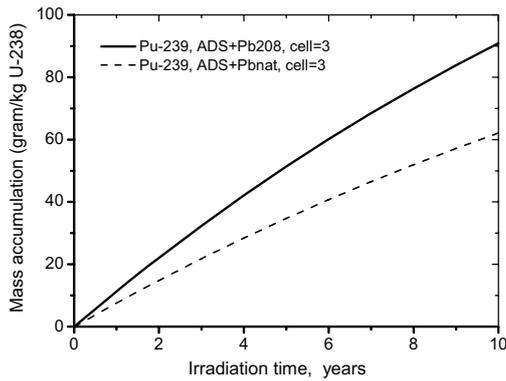


Рис. 7. Накопление плутония-239 при облучении урана-238 в бланкете УУС-80 МВт в ячейке 3, расположенной в верхней части ЗБО бланкета [7]: — — — охлаждение природным свинцом; — — — свинцом-208

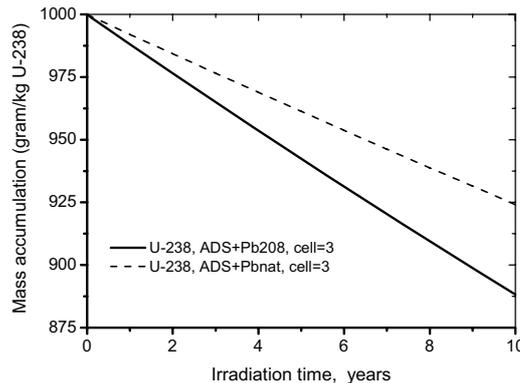


Рис. 8. Выгорание урана-238 в бланкете УУС-80 МВт в ячейке 3, расположенной в верхней части ЗБО бланкета [7]: — — — охлаждение природным свинцом; — — — свинцом-208

О ЦЕЛЕСООБРАЗНОСТИ И ВОЗМОЖНОСТИ РЕНТАБЕЛЬНОГО ПОЛУЧЕНИЯ РАДИОГЕННОГО СВИНЦА, ВЫСОКООБОГАЩЕННОГО 208-М ИЗОТОПОМ

Об источниках свинца, природно обогащенных 208-м изотопом

Вопросы получения радиогенного свинца с высоким обогащением по изотопу свинца-208 связаны с перспективами вовлечения тория в атомную энергетику России. Как отмечается в [19], для вовлечения тория в энергетику России необходимо, по крайней мере, добывать 10–13 тысяч тонн тория в год к 2020–2030 гг.

Содержание свинца-208 в торийсодержащих рудах и минералах может достигать 14% от массы тория. При указанной перспективе добычи порядка 10–13 тысяч тонн тория в год попутно с торием из торийсодержащих руд можно будет извлечь более 100 тонн свинца-208 в год. Это количество не покрывает потребность крупномасштабной энергетики на свинцовых реакторах, которая оценивается ве-

личинной порядка 2000 тонн свинца на 1 ГВт электрической мощности. Однако 65-ти тонн свинца-208 достаточно для охлаждения бланкета единичной ускорительно-управляемой установки типа MYRRHA с тепловой мощностью порядка 100 МВт, ныне сооружаемой в Бельгии и намеченной к эксплуатации к 2022 г. Как отмечалось, использование свинца-208 в качестве теплоносителя бланкета УУС может в 1,5 раза снизить уровень требуемой управляющей мощности высокоэнергетического протонного ускорителя, причем стоимость получения 1 МВт выходной мощности пучка оценивается величиной порядка 100 млн. долл. США [26].

Опытно-демонстрационный быстрый реактор БРЕСТ-300 с электрической мощностью 300 МВт, намеченный к сооружению в России к 2020 г., спроектирован с очень большим запасом по свинцовому теплоносителю (порядка 6000–7000 т) и не может рассматриваться как потенциальный потребитель свинца-208.

Тем не менее, в настоящее время ведутся проектирование и разработка технологий свинцовых реакторов малой и средней мощности (порядка 100 МВт э.), например, свинцово-висмутовый быстрый реактор СВБР-100, который намечен к сооружению к 2016 г. В этом и подобных реакторах относительно малой мощности при использовании системы пассивного отвода тепла (СПОТ) требуемый объем тяжелого теплоносителя ограничен величиной порядка две тонны на 1 МВт электрической мощности. Получение свинца-208 в объемах порядка 200 тонн за период сооружения реактора малой мощности (три-четыре года) представляется вполне реальным.

В России для стабильного получения тория в количествах, необходимых для будущих быстрых реакторов на уране-233, основным источником тория может быть его попутное извлечение при переработке лопарита Ловозерского месторождения на Кольском полуострове [19]. Инфраструктура Ловозерского месторождения хорошо подготовлена для организации крупной добычи и обогащения лопаритовой руды. Месторождение давно эксплуатируется и характеризуется запасами лопарита и большими объемами торийсодержащих отходов в хвостохранилищах.

По ориентировочным оценкам, при организации крупномасштабной переработки лопаритового концентрата (ЛК), например, в объемах порядка двух млн тонн ЛК/г, может быть получено до 500–600 тысяч тонн Ln_2O_3 и TiO_2 , 100 тысяч тонн Nb_2O_5 , 10 тысяч тонн Ta_2O_5 , 13 тысяч тонн ThO_2 и 65 тонн радиогенного свинца.

Однако получение указанных количеств тория и радиогенного свинца экономически оправдано только в случае их попутного извлечения из ЛК, когда основным продуктом извлечения являются редкие металлы – титан, тантал, ниобий и редкоземельные элементы.

Отдельной проблемой является степень обогащения радиогенного свинца различного происхождения изотопом свинца-208. Изотопный состав радиогенного свинца из различных торий- и урансодержащих руд и минералов может сильно отличаться. Например, в торийсодержащих рудах Бразилии, по сведениям [20], радиогенный свинец обогащен изотопом свинца-208 до 88,34%, сведения же по изотопному составу Ловозерского месторождения не известны. Для свинцовых БР и УУС наиболее желателен следующий изотопный состав радиогенного свинца: 93% свинца-208, 6% свинца-206, минимальное содержание изотопа свинца-207 – изотопа с большим сечением захвата нейтронов. В [21] приводятся данные о крупных месторождениях тория в мировом масштабе и об изотопном составе радиогенного свинца в торийсодержащих рудах и минералах. Авторы работы отмечают, что радиогенный свинец в ториевых рудах и монаците содержит значительно меньше изотопов с большими сечениями захвата нейтронов (Pb-207 и Pb-204), чем широко распространенный обычный природный свинец (Pb-nat).

Следует отметить, что преимущества свинца-208 по сравнению со свинцом обычного природного состава могут проявиться и в других областях атомной науки и техники. По-видимому, свинец-208 как слабо замедляющий нейтроны материал предпочтителен в используемых в ядерной физике спектрометрах по времени замедления нейтронов в свинцовом кубе весом порядка 100 тонн [22], а также в мишенях мощных нейтронных источников для получения интенсивных потоков жестких нейтронов за счет образования нейтронов расщепления частицами высоких энергий [2, 23] и др.

Перспективы использования древнего монацита из россыпей и коренных проявлений Украины как сырья для производства высокообогащенного ^{208}Pb

Монацит – ортофосфат преимущественно цериевых редких земель ((Ce, La, Nd..., Th)PO₄) является важнейшим природным концентратором тория. Он широко распространен (обычно в небольших количествах) в горных породах и некоторых типах гидротермальных и метаморфогенных руд. Благодаря механической и химической стойкости монацит накапливается в россыпях.

Кристаллическая структура монацита может быть представлена как трехмерная постройка из кислородных девятивершинников, в центре которых расположены атомы редкоземельных элементов и кислородных тетраэдров с центральным атомом фосфора. Девятерная координация допускает широкое вхождение относительно крупных ионов легких редких земель и тория в структуру минерала. Суммарное содержание тория в минерале может достигать 28% массовых, а содержания 5–7% являются обычными. Хотя отсутствуют экспериментальные данные о форме нахождения радиогенного свинца в структуре монацита, многочисленные наблюдения, суммированные, например, в работе [24], свидетельствуют о его хорошей сохранности в кристаллической матрице монацита, что позволяет использовать его для изотопного датирования.

В Украине монацит содержится в мелкозернистых титано-циркониевых россыпях, в том числе в разрабатываемых, в корах выветривания и в коренных проявлениях.

По разведанным и эксплуатационным ресурсам легко обогатимых титано-циркониевых руд Украина занимает ведущее положение в Европе и СНГ. Ресурсы циркония в Украине составляют более 10% мировых. В настоящее время разрабатывается наиболее крупная Малышевская (Самотканская) россыпь и начата отработка Волчанской россыпи.

Благодаря заметному парамагнетизму монацит при существующей мощности рудников может попутно извлекаться при разработке россыпей в количестве порядка 100 т в год, что примерно соответствует 3,5 т тория и 0,5 т свинца, обогащенного 208-ым изотопом. Сейчас монацит рассматривается как вредная радиоактивная примесь и не извлекается.

Состав монацита Малышевской россыпи (содержание U, Th и Pb) для целей датирования хорошо изучен в [24] при помощи специально разработанной рентгенофлуоресцентной методики [25]. В таблице 3 приведены данные о содержании тория, урана и об изотопном составе свинца монацита Малышевского месторождения. Средний состав свинца подтвержден прямыми масс-спектрометрическими измерениями.

Как видно из таблицы, обогащение 208-ым свинцом в среднем для всего монацита недостаточно высокое. Однако есть вероятность разделения монацита по флотационным, магнитным или другим свойствам с выделением низкоурановой фракции минерала.

Таблица 3

Содержание тория, урана, свинца и изотопия свинца монацитов Малышевской россыпи (Украина)

Средние значения из 224 рентгенофлуоресцентных определений по данным [24], мас. %			Изотопия свинца в монаците по данным массспектрометрического анализа средней пробы отн. %.				Среднее значение по 70-ти пробам, обедненным ураном (элементы в мас. %, изотопы свинца в % отн.)					
Th	U	Pb	²⁰⁴ Pb	²⁰⁶ Pb	²⁰⁷ Pb	²⁰⁸ Pb	U	Th	Pb	Изотопия свинца		
										²⁰⁶ Pb	²⁰⁷ Pb	²⁰⁸ Pb
3,52	0,23	0,30	0,04	13,1	1,43	85,42	0,06	3,63	0,33	3,8	0,4	95,7

Для добычи валового монацитового концентрата при разработке Малышевской россыпи почти не потребуются дополнительные затраты, и его цена в первом приближении может быть принята примерно равной цене цирконового концентрата ~ \$1/кг. Стоимость гидрометаллургического выделения свинца из монацита по аналогии со сходными процессами может быть оценена в \$24–30/кг. Выделение из монацитового концентрата разностей с низким отношением U/Th и высоким содержанием ²⁰⁸Pb потребует дополнительных исследований и вызовет некоторое удорожание продукта.

В Украине имеются недостаточно изученные проявления монацита в древних коренных породах, в их корах выветривания, в связанных с ними гидротермальных и метаморфогенных месторождениях и в россыпях. Судя по имеющимся аналитическим данным, существует возможность обнаружения монацита, высокообогащенного 208-ым изотопом.

Большие возможности для добычи тория и свинца, обогащенного 208-ым изотопом имеет Россия, где подготавливаются для освоения титаноциркониевые россыпи и имеется торийсодержащее сырье в комплексных коренных месторождениях.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Расплав свинца, обогащенного до 99,0% стабильным изотопом свинца-208, может рассматриваться как теплоноситель с новыми потребительскими свойствами для ядерно-энергетических установок (ЯЭУ). Он может иметь некоторые преимущества перед другими, ныне применяемыми или предлагаемыми теплоносителями: натрием, природным свинцом, эвтектикой свинца-висмута, ртутью и другими легкими и тяжелыми металлами.

Основное преимущество свинца-208 заключается в его способности мало поглощать нейтроны. На примере быстрого реактора РБЕЦ-М показано, что однокрупные, усредненные по нейтронным спектрам подзон реактора, сечения радиационного захвата нейтронов могут быть снижены в четыре-семь раз при замене его штатного свинцово-висмутового теплоносителя на свинец-208.

Другим преимуществом свинца-208 является высокий порог потерь энергии при неупругих столкновениях нейтронов с ядром ($E_{\text{порог}} = 2,61$ МэВ), что позволяет на несколько процентов ужесточить спектр нейтронов в активных зонах свинцовых быстрых реакторов и ускорительно-управляемых систем.

Показано, что малое поглощение и слабое замедление нейтронов в таком теплоносителе позволяют получить выигрыш в эффективном коэффициенте размножения нейтронов критического реактора или подкритического blankets $K_{\text{эфф}}$ и тем самым минимизировать начальную загрузку реакторов ядерным топливом, сэко-

номить энергетический плутоний или снизить требования к управляющей мощности пучка протонов в подкритических системах.

Наконец, третьим преимуществом свинца-208 как теплоносителя является увеличение доли нейтронов малых и промежуточных энергий ($E_n = 5 \text{ эВ} - 50 \text{ кэВ}$) на периферии активных зон, в боковых и торцевых подзонах, в которых может размещаться уран-238 для воспроизводства топлива. Рассчитанные одногрупповые сечения радиационного захвата нейтронов ядром урана-238 в нейтронных спектрах активных зон реакторов, охлаждаемых свинцом-208, сравнимы с одногрупповыми сечениями натриевого реактора, а в ряде случаев превосходят их.

Ключевым вопросом возможности реализации указанных преимуществ свинца-208 в ЯЭУ является его цена на мировом рынке, которая ныне достаточно высока. Однако высокое содержание свинца-208 в природной смеси изотопов свинца (около 52%) и успехи техники разделения изотопов свинца, в том числе центробежного и лазерного способов, позволяют полагать, что в недалеком будущем свинец-208 с обогащением до 99,0% можно будет получать в больших количествах, измеряемых десятками и сотнями тонн, по экономически приемлемой цене – порядка \$200/кг [13].

Между тем, в природе помимо обычного свинца с изотопным составом 1,48% Pb-204, 23,6% Pb-206, 22,6% Pb-207, 52,32% Pb-208 встречается свинец с обогащением до 88–99% по изотопу Pb-208. Такой свинец обнаруживается в малом количестве в торийсодержащих рудах и минералах, и получил название радиогенного. Поскольку на территориях России и Украины в настоящее время ведется эксплуатация месторождений коренных руд и россыпей минералов, в отвалах которых содержатся торий и свинец, то в работе показана целесообразность получения радиогенного свинца в объемах порядка 65-ти тонн в год, которые могут покрыть потребность в нем единичных ЯЭУ малых электрических мощностей, порядка 100 МВт. Рентабельное получение таких количеств радиогенного свинца возможно только при больших объемах переработки торийсодержащих руд и минералов, когда торий и радиогенный свинец извлекаются попутно с основным производством редких металлов (Ti, Ta, Nb, Zr) и редкоземельных элементов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект РФФИ №08-08-92201-ГФЕН_а) и Государственной корпорации «Росатом».

Литература

1. Хорасанов Г.Л., Иванов А.П., Блохин А.И. Материалы ядерной техники с регулируемым изотопным составом химических элементов // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерные константы. – 2006. – Вып. 1-2. – С. 99-109 (ISSN 0207-3668).
2. Khorasanov G.L., Ivanov A.P., Blokhin A.I. Reduction of the induced radioactivity in an ADS target by changing the target material isotope composition // Nuclear Engineering and Design. – 2006. – V. 236. – № 14-16. – P. 1606-1611 (ISSN 0029-5493).
3. Апсэ В.А., Шмелев А.Н., Сироткин А.М. Некоторые преимущества использования радиогенного свинца в качестве теплоносителя быстрых реакторов // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2010. – № 4. – С. 5-15.
4. Куликов Г.Г., Шмелев А.Н., Апсэ В.А., Куликов Е.Г. Свинец, содержащий изотоп рb-208, – тяжелый замедлитель и отражатель нейтронов. Его нейтронно-физические свойства // Научная сессия МИФИ-2011. Т.1 – Инновационные ядерные технологии. – С. 49.
5. Хорасанов Г.Л., Коробейников В.В., Иванов А.П., Блохин А.И. Минимизация уран-плутониевой загрузки быстрого реактора путем использования в качестве теплоносителя мало поглощающего нейтроны обогащенного свинца-208 // В сб. докл. XII Международной научной конференции «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул и в лазерных, плазменных и на-

нотехнологиях» (31 марта–4 апреля 2008 г., Звенигород, Россия)/Под редакцией В.Е. Черковца. – М.: ЦНИИАтоминформ, г. Троицк, ГНЦ РФ ТРИНИТИ, 2008. – С. 384–391 (ISBN 978-5-89513-133-6).

6. *Khorasanov G.L., Korobeynikov V.V., Ivanov A.P., Blokhin A.I.* Minimization of an initial fast reactor uranium-plutonium load by using enriched lead-208 as a coolant//Nuclear Engineering and Design. – 2009. – V. 239. – № 9. – P. 1703–1707 (ISSN 0029-5493).

7. *Хорасанов Г.Л., Блохин А.И.* Макроскопические сечения радиационного захвата нейтронов теплоносителем, ураном-238 и технецием-99 в активной зоне подкритического реактора, охлаждаемого природным и обогащенным свинцом/Специальный выпуск №8 журнала «Перспективные материалы», февраль 2010. – С. 361–365. – Изд. 000 «Интерконтакт Наука» (ISSN 1028-978X).

8. *Khorasanov G.L. and Blokhin A.I.* Macroscopic cross sections of neutron radiation capture by Pb-208, U-238 and Tc-99 nuclides in the accelerator driven subcritical core cooled with molten Pb-208/In CD-ROM Proceedings of the International Conference PHYSOR 2010 – Advances in Reactor Physics to Power the Nuclear Renaissance (Pittsburgh, Pennsylvania, USA, May 9-14, 2010). – Paper #286 at the Session 5C «Advanced Reactors Design».

9. *Хорасанов Г.Л., Блохин А.И.* Теплоноситель с малым поглощением нейтронов для быстрых реакторов и ускорительно-управляемых систем. Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерные константы. – 2010. – Вып. 1 (ISSN 0207-3668).

10. *Блохин Д.А., Земсков Е.А., Хорасанов Г.Л.* Влияние теплоносителя на основе изотопа свинца-208 на нейтронные характеристики активной зоны быстрого реактора//Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерные константы. – 2010. – Вып. 1 (ISSN 0207-3668).

11. *Khorasanov G.L. and Blokhin A.I.* A low neutron absorbing coolant for fast reactors and accelerator driven systems/In the book «Cooling Systems», Editor Aaron L. Shanley, Chapter 5, Edition: Nova Science Publishers, Inc., USA, 2011, in press (ISBN 978-1-61209-379-6).

12. ISTC # 2573 project: «Investigation of Processes of High – Performance Laser Separation of Lead Isotopes by Selective Photoreactions for Development of Environmentally Clean Perspective Power Reactor Facilities», Project Manager: A.M. Yudin (Saint-Petersburg, Efremov Institute, NIIIEFA), Project Submanagers: G.L. Khorasanov (Obninsk, Leypunsky Institute, IPPE) and P.A. Bokhan (Novosibirsk, Institute for Semiconductor Physics, ISP), 2004–2005.

13. *Бортнянский А.Л., Демидов В.Л., Мотовилов С.А., Подтыкан Ф.П., Савченко Ю.И., Усанов В.А., Юдин А.М., Яценко Б.П.* Экспериментальный лазерный комплекс для разделения изотопов свинца посредством селективных фотохимических реакций/В сб. докл. X Международной научной конференции «Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул» (3–7 октября 2005 года, г. Звенигород, Россия). – М.: ЦНИИАтоминформ, 2005. – С. 76–82 (ISBN 5-85389-122-7).

14. *Borisevich V.D., Sulaberidze G.A., Smirnov A. Yu.* Production of highly enriched lead-208: separation problems/Paper presented at the Russian-Chinese Bilateral Workshop «Possibility of using stable isotope lead-208 in nuclear engineering and its acquisition» (12–13 October, 2010. Tsinghua University, Beijing, P.R. China).

15. *Мантуров Г.Н., Николаев М.Н., Цибуля А.М.* Система групповых констант БНАБ-93. Часть 1. Ядерные константы для расчета нейтронных и фотонных полей излучения//Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерные константы. – 1996. – Вып. 1. – С. 59–98 (ISSN 0207-3668).

16. *Алексеев П.Н., Васильев А.В., Микитюк К.О., Субботин С.А., Фомиченко П.А., Щепетина Т.Д.* Оптимизация концептуальных решений для свинцово-висмутowego быстрого реактора РБЕЦ-М//Атомная энергия. – 2004. – Т. 97. – Вып. 2. – С. 115–125; <http://www.iaea.org/NuclearPower/SMR/crpi25001/html/>).

17. MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C. LA-13709-M/J.F. Briesmeister, Ed. – Los Alamos National Laboratory, 2000.

18. *Блохин А.И., Демин Н.А., Манохин В.Н., Сипачев И.В., Блохин Д.А., Чернов В.М.* Расчетный комплекс ASCAM для исследований ядерных физических свойств материалов в условиях длительного нейтронного облучения//Перспективные материалы. – 2010. – № 2. – С. 46–55. – Изд. 000 «Интерконтакт Наука» (ISSN 1028-978X).

19. *Декусар В.М., Зильберман Б.Я., Николаев А.И., Майоров В.Г., Колесникова М.С.* Анализ потенциальных источников удовлетворения ближайших потребностей в тории с учетом различных возможных сценариев вовлечения тория в ЯЭ России/Препринт ФЭИ-3186. – Обнинск, 2010. – 36 с.

20. Seneda J.A., C.A.L.G. de O. Forbicini, C.A. da S. Queiroz, M.E. de Vasconcellos, S. Forbicini, S.M. da R. Rizzo, Vera L.R. Salvador and A. Abrzo. Study on radiogenic lead recovery from residues in thorium facilities using ion exchange and electrochemical process//Progress in Nuclear Energy. – 2010. – V. 52. – № 3. – P. 304-306.
21. Куликов Г.Г., Шмелев А.Н., Ансэ В.А., Артисюк В.В. О возможности использования радиогенного свинца в ядерной энергетике//Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2010. – № 3 (ISSN 0204-3327).
22. Алексеев А.А., Бергман А.А., Берлев А.И., Коптелов Э.А., Самылин Б.Ф., Труфанов А.М., Фурсов Б.И., Шорин В.С. Исследования деления ядер на нейтронном спектрометре по времени замедления в свинце СВЗ 100: $^{243}\text{Cm}(n,f)$ /Препринт ИЯИ – 1231/2009. – М.: Институт ядерных исследований РАН, 2009. – 22 с.
23. Юревич В.И. Образование нейтронов в толстых мишенях протонами высоких энергий//Физика элементарных частиц и атомного ядра. – 2010. – Т. 41. – Вып. 5. – С. 1451-1530 (ISSN 0367-2026).
24. Андреев А.А. Возраст, геохимические особенности и возможные источники происхождения монацита территории Украины/Дисс. уч. ст. к. геол. наук. Киев-2011, 190 с.
25. Шнюков С.Е., Андреев А.В., Белоусова Е.А. и др. Рентгенофлуоресцентный анализ микронавесок вещества в геохимии аксессуарных минералов: исследовательские возможности и сопоставление с локальными аналитическими методами// Минералогический журнал. – 2002. – № 1-2. – С. 80-95.
26. Biarrotte J.L. The LINAC Accelerator for MYRRHA/Proc. of the Workshop «From MYRRHA towards XT-ADS» (Mol, Belgium, 23 November 2004).

Поступила в редакцию 19.09.2011

ABSTRACTS OF THE PAPERS**УДК 621.039.586**

Assessment of Consequences Hypothetical Nuclear Accident of the Reactor MARS Installation \Yu.A. Kazanskiy, E.S. Matusevich; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 6 pages, 3 tables 3 illustrations. – References, 3 titles.

The assessment of radiating consequences of hypothetical nuclear accident of the medical reactor MARS is given. It is shown that there is no significant radioactive irradiation of the population and environmental pollution, and the personnel is by own efforts capable to eliminate its consequences.

УДК 621.039.586

The mathematical Model of Prompt-Critical Disassembly Excursion of an LMFBR \M.V. Kascheev, I.A. Kuznetsov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 11 pages, 4 illustrations. – References, 12 titles.

The mathematical model of processes of prompt-critical disassembly excursion of an LMFBR is developed. The model is realized in two-dimensional program ANPEX which allows to calculate accident development at occurrence of secondary criticality in the fused core. The description of results of testing of the program and results of calculation of stage of instant criticality by means of code ANPEX for BN-600 is given.

УДК 621.039.51

The Beryllium Reflector Effects on Neutron-Physical Characteristics of the VVR-c Reactor Core \O.Yu. Kochnov, V.V. Kolesov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 4 pages, 7 tables. – References, 1 title.

The paper presents the results of neutron-physical calculations of the modified reactor core of the VVR-c. As a result of computational research we showed a significant increasing of the reactivity margin when beryllium reflector blocks are introduced into the reactor core of the VVR-c.

УДК 621.039.534

Possibility of the Usage of the Lead Enriched with the Isotope Lead-208 from Thorium Ores and Minerals for Nuclear Energy Needs \G.L. Khorasanov, A.I. Blokhin, A.A. Valter; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 13 pages, 3 tables, 8 illustrations. – References, 26 titles.

In the paper the usage of radiogenic lead recovered from thorium ores and minerals is investigated as a possible liquid heavy metal coolant for Fast Reactors (FRs) and Accelerator Driven Systems (ADSs). This radiogenic lead is strongly enriched with Pb-208 isotope, which is characterized with very low neutron capture cross sections at low and intermediate energies (5 eV-50 keV). The FR or ADS coolant based on Pb-208 is very attractive material from the view point of neutronics that brings the possibility of minimization of fuel loading, enhancing fuel breeding and transmutation of long-lived fission products, geological and economical aspects of acquisition of large quantities of radiogenic lead are discussed. Nowadays in the Russian Federation and the Ukraine loparit ores and monazite minerals are reprocessed for production of rare metal raw. Thorium and lead are not required now and they are deposited in sludge. The conclusion is made that to obtain the minimum amount of required in future radiogenic lead (65 t/year) for small sized FRs and ADSs the very large quantities of ores or minerals must be reprocessed and acquisition of radiogenic Pb-208 can be economically acceptable as a co-product of rear metal raw.

УДК 621.039.58

Optimal Management by NPP Equipment Lifetime. Calculation Procedures \O.M. Gulina, N.L. Salnikov, V.P. Politukov, V.S. Arefiev; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 9 pages, 5 illustrations. – References, 7 titles.

Linear stochastic filter algorithm is developed for steam generator heat-exchanged tubes assembly. Due to large dimension of mathematical model there are some criteria are formulated and Excel is choose as media for filter algorithm realization. The model researching is performed: analysis of model to different parameters, including efficiency of preventive measures performed.