УДК 621.039.544.8

ПРОТАКТИНИЙ-231 – НОВЫЙ ВЫГОРАЮЩИЙ ПОГЛОТИТЕЛЬ НЕЙТРОНОВ

Г.Г. Куликов, Е.Г. Куликов, А.Н. Шмелев, В.А. Апсэ

НИЯУ МИФИ

115409 Россия, г. Москва, Каширское шоссе, 31



Для компенсации избыточной реактивности в ядерных реакторах используются такие выгорающие поглотители, как гадолиний и эрбий. При этом дочерние нуклиды, образующиеся в результате поглощения на гадолинии и эрбии, не играют существенной роли с точки зрения нейтронно-физических процессов, протекающих в активной зоне реактора. Представляет интерес выбор такого выгорающего поглотителя, дочерние нуклиды которого оказывали бы благоприятное влияние на развитие цепной реакции деления.

Исследуются нейтронно-физические свойства нового выгорающего поглотителя – ²³¹Ра, а также возможности его наработки в существенных количествах. Аналогом цепочки нуклидных превращений, начинающихся с ²³¹Ра, является цепочка, начинающаяся с ²³⁷Np. Улучшение размножающих свойств в ²³⁷Np-цепочке проявляется только в быстром спектре нейтронов, а ²³¹Ра-цепочка характеризуется значительным положительным нейтронным балансом как в быстром, так и в тепловом спектрах нейтронов. С этой точки зрения ²³¹Ра-цепочка уникальна. Кроме того, если ²³⁷Np может быть наработан в ядерных реакторах в результате радиационного захвата ²³⁵U, то наработка ²³¹Ра в заметных количествах возможна только через пороговые (n,2n)- и (n,3n)-реакции на ²³²Th, для реализации которых необходимы нейтроны сверхвысоких энергий. Таких нейтронов практически нет даже в быстрых реакторах, но они имеются в термоядерных установках. Наработка ²³¹Ра в термоядерных установках и его последующее использование в ядерных реакторах позволит раскрыть потенциальные возможности термоядерных установок для радикального увеличения глубины выгорания топлива ядерных реакторов. Таким образом, ²³¹Ра является новым и уникальным выгорающим поглотителем, который ранее не предлагался. При выполнении работы использовались библиотеки оцененных ядерных данных JENDL-4.0 и ENDF/B-V, а также расчетный комплекс SCALE-4.3. В отличие от традиционно используемых выгорающих поглотителей на основе гадолиния и эрбия предлагаемый в работе изотоп протактиния выглядит более привлекательно, поскольку позволяет не только скомпенсировать начальный запас реактивности, но и обеспечить глубокое выгорание за счет высоких размножающих свойств дочерних нуклидов. Существенные количества протактиния могут быть наработаны в гибридных термоядерных реакторах (ГТР), которые являются источниками нейтронов (а не источниками энергии), и параметры которых уже достигнуты к настоящему времени на экспериментальных установках США, Японии, Англии.

[©] Г.Г. Куликов, Е.Г. Куликов, А.Н. Шмелев, В.А. Апсэ, 2017

Ключевые слова: выгорающий поглотитель, протактиний-231, гадолиний, эрбий, глубокое выгорание, сверхдлинная кампания, стабилизированные размножающие свойства.

ВВЕДЕНИЕ

Одним из способов компенсации избыточной реактивности является использование выгорающих поглотителей нейтронов. Это вещества с высоким сечением поглощения тепловых нейтронов, неподвижно размещаемые в активной зоне и медленно истощаемые при работе реактора за счет поглощения ими нейтронов, из-за чего на их месте образуются дочерние нуклиды с существенно меньшими сечениями поглощения, что приводит к высвобождению запаса реактивности. Следует отметить, что при этом дочерние нуклиды не играют какой-либо существенной роли с точки зрения нейтроннофизических процессов, протекающих в активной зоне реактора.

Основными назначениями выгорающих поглотителей нейтронов являются

– частичная компенсация избыточной реактивности в начале кампании;

– по возможности полное освобождение реактивности (за счет полного прогорания)
в конце кампании;

- выравнивание поля энерговыделения.

В настоящее время наиболее широко применяемыми выгорающими поглотителями являются оксиды гадолиния (Gd₂O₃) и эрбия (Er₂O₃), которые применяются в реакторах типа ВВЭР и РБМК соответственно [1, 2]. Следует подчеркнуть, что эти материалы играют роль только поглотителя нейтронов для компенсации избыточной реактивности.

В работе предлагается новый выгорающий поглотитель нейтронов – оксид протактиния (PaO₂). Отличительной особенностью ²³¹Pa является то, что его дочерние продукты ²³²U и ²³³U являются делящимися материалами, способными поддерживать цепную реакцию деления. Таким образом, протактиний может выполнять одновременно две функции – выгорающего поглотителя и стартового нуклида цепочки превращений, способствующей поддержанию размножающих свойств топлива [3, 4].

СВОЙСТВА ВЫГОРАЮЩИХ ПОГЛОТИТЕЛЕЙ

В реакторе типа ВВЭР в качестве выгорающего поглотителя используется гадолиний природного состава в форме Gd₂O₃ [1]. Природный гадолиний включает в себя семь изотопов, при этом ключевую роль в данном случае играет ¹⁵⁷Gd, который характеризуется наибольшим сечением поглощения нейтронов (253 254 барн в тепловой точке, табл. 1). Столь большое сечение поглощения приводит к тому, что если добавить в каждый твэл небольшое количество выгорающего поглотителя на основе Gd₂O₃, то сильнопоглощающий нуклид ¹⁵⁷Gd быстро «сгорит». В связи с этим в реакторах типа ВВЭР используются большие концентрации выгорающего поглотителям на основе гадолиния в ограниченном числе твэлов, так как это приводит к эффекту блокировки поглотителя и позволяет снизить скорость его прогорания (высвобождения реактивности).

В реакторе типа РБМК в качестве выгорающего поглотителя используется эрбий природного состава в форме Er₂O₃ [1]. Природный эрбий включает в себя шесть изотопов, при этом ключевую роль в данном случае играет ¹⁶⁷Er (644 барн в тепловой точке, табл. 1). Таким образом, в отличие от гадолиния эрбий имеет не такое большое сечение поглощения нейтронов. В связи с этим если разместить эрбий так же, как и гадолиний (в большой концентрации, в ограниченном числе твэлов), то поглотитель будет выгорать очень медленно. Поэтому в реакторах типа РБМК эрбий равномерно добавляется во все твэлы в относительно небольших концентрациях.

Использование эрбия в реакторах типа РБМК обусловлено тем, что в случае ужестчения спектра нейтронов, сопровождающегося более активным делением ²³⁹Pu (резонанс при энергии около 0.3 эВ), поглощение на ¹⁶⁷Er способно нивелировать этот эффект (резонанс при энергии около 0.5 эВ).

Сечение захвата нейтронов в тепловой точке и резонансный интеграл [5]

Нуклид	σ _с (2200 м/с), барн	Резонансный интеграл захвата нейтронов, барн		
¹⁵⁷ Gd	253 254	784		
¹⁵⁸ Gd 2.2		72		
¹⁶⁷ Er 644		3 000		
¹⁶⁸ Er 2.7		38		
²³¹ Pa 202		540		
²³² U $(\sigma_c / \sigma_f) = 75 / 77$		$(I_{\gamma}/I_{f}) = 172/355$		
²³⁸ U 2.7		275		
²³² Th	²³² Th 7.3 84			

Гадолиний и эрбий являются классическими выгорающими поглотителями в том смысле, что их дочерние продукты, образующиеся в результате захвата нейтронов, характеризуются значительно меньшими сечениями поглощения (2.2 барн для ¹⁵⁸Gd и 2.7 барн для ¹⁶⁸Er) по сравнению с исходными нуклидами и, фактически, не играют какой-либо роли в дальнейшем.

В качестве нового выгорающего поглотителя предлагается использовать ²³¹Ра. Данный изотоп является родоначальником цепочки последовательных превращений нуклидов с постепенным улучшением размножающих свойств (²³¹Ра \rightarrow ²³²U \rightarrow ²³³U \rightarrow ...), которая радикально отличается от цепочек нуклидных превращений, начинающихся с гадолиния и эрбия наличием следующих друг за другом делящихся нуклидов ²³²U и ²³³U:



Рис. 1. Зависимость сечения захвата ¹⁵⁷Gd, ¹⁶⁷Er, ²³¹Ра и ²³⁸U от энергии нейтронов [5]

То, что ²³¹Ра может играть роль выгорающего поглотителя, можно видеть из табл. 1 и рис. 1, где представлены сечения захвата нейтронов на ²³¹Ра и для сравнения сече-

Таблица 1

ния известных выгорающих поглотителей ¹⁵⁷Gd и ¹⁶⁷Er, а также известного сырьевого нуклида ²³⁸U. Для сохранения наглядности сечение захвата ¹⁶⁷Er на рис. 1 представлено только до 0.3 эB, поскольку выше этой энергии оно ведет себя схоже с ²³¹Pa (в том числе резонанс в области 0.5 эB).

Можно видеть, что в резонансной области энергий нейтронов величины резонансных интегралов захвата нейтронов для ²³¹Pa и ¹⁵⁷Gd сопоставимы, а в области тепловых энергий ²³¹Pa является достаточно сильным поглотителем нейтронов (сечение захвата в тепловой точке составляет 202 барн, что существенно больше, чем сечение захвата для сырьевых ²³⁸U и ²³²Th – 2.7 и 7.3 барн соответственно), но не таким сильным поглотителем, как быстро выгорающий ¹⁵⁷Gd (253254 барн) и медленнее выгорающий ¹⁶⁷Er (644 барн).

За счет относительно большого сечения захвата нейтронов ²³¹Ра уменьшает начальный запас реактивности. Его сечение захвата не столь велико, как у ¹⁵⁷Gd и ¹⁶⁷Er, поэтому выгорать он будет медленнее, чем эти нуклиды. Это можно расценивать как благоприятный фактор, потому что стабилизация размножающих свойств будет поддерживаться до более глубоких выгораний топлива.

Таким образом, ²³¹Ра как выгорающий поглотитель будет выгодно отличаться следующим образом от гадолиния и эрбия.

Во-первых, его сечение поглощения не так велико, как у гадолиния и эрбия, и поэтому он выгорает существенно медленнее, и стабилизирующее влияние на размножающие свойства реактора сказывается существенно дольше. В то же время сечение поглощения у ²³¹Ра существенно выше, чем у ²³⁸U и ²³²Th, поэтому не потребуется введения чрезмерно большой доли ²³¹Ра, чтобы проявилось его положительное влияние.

Во-вторых, поглощенные в ²³¹Ра нейтроны будут затем возвращены в цепную реакцию благодаря делению дочерних нуклидов, первый из которых ²³²U является умеренно делящимся нуклидом для тепловых и промежуточных нейтронов. Под «умеренно делящимся нуклидом», здесь понимается, во-первых, то, что его сечение деления существенно меньше, чем для ²³⁵U, и, во-вторых, сопоставимость по величине сечений деления и захвата в области как тепловых, так и резонансных энергий нейтронов (рис. 2).



Рис. 2. Зависимость сечений деления и захвата для ²³²U от энергии нейтрона [5]

Эти свойства ²³²U определяют меньшее число избыточных нейтронов, появляющихся в результате поглощения нейтрона ядром ²³²U, чем для ядра ²³⁵U (рис. 3). Однако в результате радиационного захвата нейтрона ядро ²³²U нельзя считать потерянным, так как оно превращается в нуклид ²³³U, который является хорошо известным высокоэффективным делящимся нуклидом, — в тепловой точке сечение деления (σ_f = 531 барн) на порядок превосходит сечение захвата (σ_c = 45 барн).



Рис. 3. Зависимость числа избыточных нейтронов в расчете на одно поглощение для ²³²U (в сравнении с ²³⁵U) от энергии нейтрона [5]

Таким образом, при использовании ²³¹Ра в роли выгорающего поглотителя поглощение нейтронов продуктами деления и выгорание делящихся нуклидов в процессе работы реактора в определенной степени компенсируются подпиткой от ²³¹Ра (образование двух следующих друг за другом делящихся нуклидов ²³²U и ²³³U). Это открывает принципиальную возможность увеличения кампании топлива и достижения сверхглубокого выгорания.

ДОСТИЖЕНИЕ СВЕРХГЛУБОКОГО ВЫГОРАНИЯ ТОПЛИВА БЛАГОДАРЯ ²³¹РА

Расчеты, связанные с выгоранием топлива, представляют собой расчеты эквивалентной ячейки, выполненные с помощью расчетного комплекса SCALE [6 – 8] с использованием библиотеки оцененных ядерных данных ENDF/B-V [9]. Рассматривается элементарная ячейка реактора типа BBЭP-1000 (плотность теплоносителя 0.72 г/см³) с оксидным топливом в предположении, что конструкционным материалом тепловыделяющих элементов является мартенситная сталь MA956, имеющая следующий состав: 74.5% Fe + 20% Cr + 4.5% Al + 0.5% Ti + 0.5% Y₂O₃ [10].

Изменение коэффициента размножения нейтронов в процессе выгорания для двух случаев (без выгорающего поглотителя и использование выгорающего поглотителя на основе ²³¹Ра) представлено на рис. 4.

Как видно из рисунка, в случае отсутствия выгорающего поглотителя (50% 235 U + 50% 238 U) начальный запас реактивности весьма существенен: $K_{\infty}(0) \approx 1.7$; при этом достижимое выгорание составляет 34% т.а. При использовании 231 Pa в качестве выгорающего поглотителя (50% 235 U + 50% 231 Pa) коэффициент размножения нейтронов остается практически неизменным и близким к единице на протяжении всей кампании, что свидетельствует о том, что поглощение нейтронов продуктами деления и выгорание имеющихся в топливе делящихся нуклидов почти полностью компенсируются воспроизводством новых делящихся нуклидов из выгорающего поглотителя.

Спектр нейтронов становится резонансным благодаря значительному поглощению в протактинии, существенная часть которого (около 80%) переходит в делящиеся нукли-

ды (²³²U и ²³³U), успевающие выгорать, поддерживая таким образом реактивность и обеспечивая сверхглубокое выгорание, около 51% т.а. (см. рис. 4).



Рис. 4. Достижение сверхглубокого выгорания в реакторе типа ВВЭР-1000 за счет использования ²³¹Ра в качестве выгорающего поглотителя

Если предположить, что реактор имеет загрузку по тяжелому металлу, аналогичную реактору типа ВВЭР-1000 (около 66-ти тонн), и работает на тепловой мощности 3000 МВт, то данное выгорание соответствует длительности кампании около 35-ти лет.

О ВОЗМОЖНОСТИ НАРАБОТКИ ПРОТАКТИНИЯ ²³¹РА

В связи с тем, что в отличие от гадолиния и эрбия протактиний практически отсутствует в природе, возникает вопрос о его наработке в значимых количествах для использования в качестве выгорающего поглотителя. По-видимому, возможны два способа наработки протактиния. Первый способ заключается в облучении в энергетических реакторах ²³⁰Th, присутствующего в урановых рудах (²³⁰Th – продукт α-распада ²³⁴U):

30
Th (n, γ) 231 Th ($T_{1/2}$ = 25 ч, β^{-}) 231 Pa.

Недостатком данного способа является низкое содержание ²³⁰Th в урановой руде – всего 16 г/т. При существующем уровне производства урана в мире (~ 60 000 т/г [11]) это означает возможность наработки менее тонны протактиния в год, однако данный способ был успешно использован в США в 50 – 60-е гг. XX в. [12].

Второй способ наработки протактиния состоит в облучении ²³²Th жесткими термоядерными нейтронами в бланкете гибридного термоядерного реактора (ГТР) [13]:

²³²Th (n, 2n) ²³¹Th (
$$T_{1/2}$$
 = 25 ч, β⁻) ²³¹Pa.
²³²Th (n, 3n) ²³⁰Th (n, γ) ²³¹Th ($T_{1/2}$ = 25 ч, β⁻) ²³¹Pa

Поскольку образование ²³¹Ра происходит через пороговые ядерные реакции (n, 2n) и (n, 3n), то, по-видимому, наиболее эффективно данный изотоп может быть наработан в ториевом бланкете ГТР, характеризующегося высокоэнергетическим спектром нейтронного поля [13]. Концепция ГТР заключается в следующем: зона термоядерной реакции рассматривается как источник термоядерных нейтронов, управляющий цепной ядерной реакцией в подкритическом бланкете, в котором происходит размножение нейтронов и энергии [14, 15].

Скорости реакций в ториевом бланкете ГТР определены в работе [16] на основе эксперимента, а в работе [17] – на основе расчета. В работе [16] D-T-источник 14 МэВ нейтронов располагался в центре ториевого цилиндра; в работе [17] скорости реакций получены расчетным путем с использованием библиотеки ядерных данных ENDF/B-IV. Следует отметить, что экспериментальные и расчетные данные по скорости захвата нейтронов в тории достаточно хорошо совпадают (табл. 2). Расчет скорости пороговой (n, 2n)-реакции на 38% завышает экспериментальное значение, а пороговой (n, 3n)-реакции занижает в два раза.

	~		
		\mathbf{T}	
	воплети позвнии в тописком	и славкото ГГР в пасчото на слин ТА М	
VRUDUCIN DEGRENN D IVDNEDVM UNGARCIE I II D DGGTGTG AG VANA 4-1 MJE AGNIDVA		//////////////////////////////////////	

Реакция	Эксперимент [16]	Расчет [17]	
²³² Th (n, <i>f</i>)	0.174 ± 0.01	0.193	
²³² Th (n, γ) ²³³ U	1.63 ± 0.10	1.58	
²³² Th (n, 2n) ²³¹ Pa	0.42 ± 0.04	0.58	
²³² Th (n, 3n) ²³⁰ Th	0.30 ± 0.05	0.15	

Таблица З

Таблица 2

Изотопный состав топлива ГТР с ториевым бланкетом, кг изотопа / т топлива

Изотоп	Время облучения, сут				
	200	400	600	800	1000
²³¹ Pa	0.68	1.30	1.85	2.33	2.75
²³² U	0.03	0.13	0.29	0.51	0.78
233U	1.77	3.94	6.09	8.23	10.3

Высокая вероятность ядерных реакций (n, 2n) и (n, 3n) существенно сказывается на соотношении нарабатываемых нуклидов в ториевом бланкете ГТР с высокоэнергетическим спектром нейтронного поля по отношению к тем же нуклидам, образующимся при облучении тория в спектре нейтронов ядерных реакторов. Результаты расчета изотопного состава ториевого топлива, облучаемого в течение 1000 сут в бланкете ГТР, приведены в табл. 3 [13]. Нейтронная нагрузка на первую стенку реактора принята равной 1 МВт/м².

Из таблицы 3 следует, что скорость наработки ²³¹Ра в ториевом бланкете ГТР составляет около 1 кг/т топлива в год. Исходя из экспериментальных данных о скорости пороговых реакций (n, 2n) и (n, 3n) в ториевом бланкете ГТР (см. табл. 2) оценена возможность наработки протактиния в ториевом бланкете, окружающем термоядерный реактор типа ITER (термоядерная мощность 500 МВт) 800 кг ²³¹Ра в год [18 – 20].

Поэтому можно заключить, что хотя в будущем благодаря термоядерным реакторам наработка протактиния станет возможной в существенных количествах, в настоящее время его накопление затруднительно.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнено нейтронно-физическое обоснование использования ²³¹Ра в качестве выгорающего поглотителя, который в отличие от традиционно используемых гадолиния и эрбия способен не только компенсировать избыточную реактивность, но и существенно повысить выгорание топлива.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации в рамках проекта 13.9748.2017/8.9.

Литература

1. Characteristics and Use of Urania-Gadolinia Fuels. IAEA-TECDOC-844. – Vienna: IAEA, 1995. 2. *Renier J.-P.A., Grossbeck L.* Development of improved burnable poisons for commercial nuclear power reactors. Oak Ridge National Laboratory, 2001.

3. Shibata K., Iwamoto O., Nakagawa T., Iwamoto N., Ichihara A., Kunieda S., Chiba S., Furutaka

ТОПЛИВНЫЙ ЦИКЛ И РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ

K., Otuka N., Ohsawa T., Murata T., Matsunobu H., Zukeran A., Kamada S., and Katakura J. JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering // J. Nucl. Sci. Technol. – 2011. – Vol. 48. – No. 1. – PP. 1-30.

4. *Куликов Г.Г., Куликов Е.Г., Крючков Э.Ф., Шмелев А.Н*. Повышение глубины выгорания и защищенности топлива легководных реакторов при совместном введении в его состав ²³¹Ра и ²³⁷Np // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2011. – № 4. – С. 80-92.

5. *Куликов Е.Г., Куликов Г.Г., Крючков Э.Ф., Шмелев А.Н*. Повышение глубины выгорания топлива легководных реакторов при введении в его состав протактиния ²³¹Ра // Ядерная физика и инжиниринг. – 2013. – Т. 4. – № 4. – С. 291-299.

6. SCALE: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design. Электронный pecypc: http://scale.ornl.gov/scale (дата доступа 07.07.2017).

7. Rearden B.T., Jessee M.A. SCALE Code System, Oak Ridge National Laboratory report ORNL/TM-2005/39. 8. Цветков П.В. Объединенный одномерный расчет изменения состава топлива в процессе облучения в реакторе и радиационных характеристик облученного топлива с помощью комплекса программ SCALE (версия 4.3). – Москва, 1998.

9. *Maslov V.M., Baba M., Hasegawa A., Kornilov N.V., Kagalenko A.B., Tetereva N.A.* Neutron Data Evaluation of ²³¹Pa. International Atomic Energy Agency, INDC(BLR)-019, 2004.

10. Incoloy – Википедия (свободная энциклопедия). Электронный ресурс: https://en.wikipedia.org/wiki/Incoloy (дата доступа 07.07.2017).

11. Nuclear Energy Agency. Uranium 2014: Resources, Production and Demand. – 2014.

12. *Stewart D.C., Macias E.S., Basile L.J., Milsted J.* Buildup of radioactive products in thermal reactors. III // ANL-7486, Technical Report. – 1968.

13. *Марин С.В., Шаталов Г.Е.* Изотопный состав топлива в бланкете гибридного термоядерного реактора с ториевым циклом // Атомная энергия. – 1984. – Т. 56. – Вып. 5. – С. 289-291.

14. *Кутеев Б.В., Хрипунов В.И*. Современный взгляд на гибридный термоядерный реактор // ВАНТ. Серия: Термоядерный синтез. – 2009. – Вып. 1. – С. 3-29.

15. *Leonard B.R.* A Review of Fusion-Fission (hybrid) Concepts. // Nuclear Technology. – 1973. – Vol. 20. – PP. 161-178.

16. Shieff H.E.J., Goodfellow H., Gray J., Mullender M.L., Weale J.W. Measurements of the reaction rate distributions produced in a large thorium cylinder by a central source of DT neutrons. United Kingdom Atomic Energy Authority, 1977.

17. Krumbein A., Lemanska M., Segev M., Wagschal J.J., Yaari A. Reaction rate calculations in Uranium blankets surrounding a central Deuterium-Tritium neutron source // Nuclear Technology. – 1980. – Vol. 48. – PP. 110-116.

18. Shmelev A.N., Kulikov G.G., Kurnaev V.A., Salahutdinov G.H., Kulikov E.G., Apse V.A. Hybrid Fusion–Fission Reactor with a Thorium Blanket: Its Potential in the Fuel Cycle of Nuclear Reactors // Physics of Atomic Nuclei. – 2015. – Vol. 78. – № 10. – PP. 1100-1111.

19. *Куликов Г.Г., Шмелев А.Н., Гераскин Н.И., Куликов Е.Г., Апсэ В.А.* Перспективный топливный цикл ядерной энергетики РФ с привлечением незначительного количества тория от термоядерного источника нейтронов с Th-бланкетом // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2016. – № 1. – С. 111-118.

20. *Kulikov G.G., Shmelev A.N., Geraskin N.I., Kulikov E.G., Apse V.A.* Advanced nuclear fuel cycle for the RF using actinides breeding in thorium blankets of fusion neutron source // Nuclear Energy and Technology. – 2016. – Vol. 2. – Iss. 2. – PP.147-150.

Поступила в редакцию 27.10.2016 г.

Авторы

<u>Куликов</u> Геннадий Генрихович, ведущий инженер E-mail: ggkulikov@mephi.ru

<u>Куликов</u> Евгений Геннадьевич, старший преподаватель E-mail: eqkulikov@mephi.ru

Шмелев Анатолий Николаевич, профессор E-mail: shmelan@mail.ru

<u>Апсэ</u> Владимир Александрович, заведующий НИС E-mail: apseva@mail.ru UDC 621.039.544.8

PROTACTINIUM-231 – NEW BURNABLE NEUTRON ABSORBER

Kulikov G.G., Kulikov E.G., Shmelev A.N., Apse V.A.

NRNU MEPhI

31 Kashirskoe shosse, Moscow, 115409 Russia

ABSTRACT

To compensate reactivity excess in nuclear reactors burnable neutron absorbers such as gadolinium and erbium are used. Their daughter nuclides resulting from neutron absorption by erbium and gadolinium play no important role in terms of neutron-physical processes occurring in the reactor core. A burnable neutron absorber, daughter nuclides of which would have a beneficial effect on fission chain reaction, is of a great interest.

The aim of the work is to study neutron-physical properties of new burnable neutron absorber – ²³¹Pa, and possibilities of its producing in significant quantities. The chain of isotopic transformations starting from ²³¹Pa is an analogue to the chain of isotopic transformations starting from ²³⁷Np. However, gradual improvement of neutron-multiplying properties in ²³⁷Np-chain can be only achieved in fast neutron spectra while in the case of ²³¹Pa-chain a positive neutron balance can be achieved both in fast and thermal neutron spectra. So, in this sense the chain starting from ²³¹Pa is a unique one. In addition, ²³⁷Np can be produced in nuclear reactors as a result of neutron radiative capture by ²³⁵U while significant amounts of ²³¹Pa can be only produced through the threshold (n,2n) and (n,3n)-reactions of ²³²Th under its bombardment by ultra high-energy neutrons. So high-energy neutrons are practically absent even in fast spectrum reactors, these neutrons can be produced by fusion facilities only. Production of ²³¹Pa in fusion facilities and the further use of ²³¹Pa in nuclear power reactors can make it possible to realize some potential capabilities of fusion facilities for radical increase of nuclear fuel burn-up. Thus, isotope ²³¹Pa is a new and unique burnable neutron absorber that was not proposed yet.

During implementation of the work evaluated nuclear data libraries JENDL-4.0 and ENDF/B-V were used, as well as computer software system SCALE-4.3.

We obtained the following results.

1. In contrast to conventional burnable neutron absorbers based on gadolinium and erbium, the isotope of protactinium proposed in this paper seems to be more attractive because it allows us not only to compensate initial reactivity excess, but also to provide high fuel burn-up thanks to good multiplying properties of its daughter nuclides.

2. Significant quantities of protactinium could be produced in hybrid fusion-fission reactors, which are sources of neutrons (not sources of energy), and parameters of which have been already achieved at present time at experimental facilities in USA, Japan, UK.

Key words: burnable absorber, protactinium-231, gadolinium, erbium, high fuel burn-up, very long fuel campaign, stabilized multiplying properties.

REFERENCES

1. Characteristics and Use of Urania-Gadolinia Fuels. IAEA-TECDOC-844. Vienna, IAEA, 1995.

2. Renier J.-P.A., Grossbeck L. Development of improved burnable poisons for commercial nuclear power reactors. Oak Ridge National Laboratory, 2001.

3. Shibata K., Iwamoto O., Nakagawa T., Iwamoto N., Ichihara A., Kunieda S., Chiba S., Furutaka K., Otuka N., Ohsawa T., Murata T., Matsunobu H., Zukeran A., Kamada S., and Katakura J. JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2011, v. 48, no. 1, pp. 1-30.

4. Kulikov G., Kulikov E., Kryuchkov E., Shmelev A. Achievement of Higher Burn-up and Proliferation Protection of LWR Fuel by Introduction of ²³¹Pa and ²³⁷Np. *Izvestiya vuzov*. *Yadernaya energetika*. 2011, no. 4, pp. 80-92 (in Russian).

5. Kulikov E., Kulikov G., Kryuchkov E., Shmelev A. Achievement of Higher Burn-up of LWR Fuel by

ТОПЛИВНЫЙ ЦИКЛ И РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ

Introduction of ²³¹Pa. *Nuclear Physics and Engineering*. 2013, v. 4, no. 4, pp. 291-299 (in Russian). 6. SCALE: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design. Available at: http://scale.ornl.gov/scale (accessed 7 Jul. 2017).

7. Rearden B.T., Jessee M.A. SCALE Code System, Oak Ridge National Laboratory report ORNL/TM-2005/39. 8. Cvetkov P.V. Ob'edinennyj odnomernyj raschet izmenenija sostava topliva v processe obluchenija v reaktore i radiacionnyh harakteristik obluchennogo topliva s pomoshh'ju kompleksa programm SCALE (versiya 4.3) [Combined one-dimensional calculation of the fuel composition change in the process of irradiation in a reactor and radiation characteristics of irradiated fuel using program SCALE (version 4.3)]. Moscow, 1998 (in Russian).

9. Maslov V.M., Baba M., Hasegawa A., Kornilov N.V., Kagalenko A.B., Tetereva N.A. Neutron Data Evaluation of ²³¹Pa. International Atomic Energy Agency, INDC(BLR)-019, 2004.

10. Incoloy – Wikipedia, the free encyclopedia. Available at: https://en.wikipedia.org/wiki/ Incoloy (accessed 7 Jul. 2016).

11. Nuclear Energy Agency. Uranium 2014: Resources, Production and Demand. 2014.

12. Stewart D.C., Macias E.S., Basile L.J., Milsted J. Buildup of radioactive products in thermal reactors. III. ANL-7486, Technical Report. 1968.

13. Marin S.V., Shatalov G.E. Izotopnyj sostav topliva v blankete gibridnogo termojadernogo reaktora s torievym ciklom [The isotopic composition of the fuel in the blanket of hybrid fusion reactor with thorium nuclear fuel cycle]. *Atomnaya energiya*. 1984, v. 56, no. 5, pp. 289-291 (in Russian).

14. Kuteev B.V., Hripunov V.I. Sovremennyj vzglyad na gibridnyj termojadernyj reactor [The modern consideration of the hybrid fusion reactor]. *VANT. Ser. Termoyadernyj sintez*. 2009, v. 1, pp. 3-29 (in Russian).

15. Leonard B.R. A Review of Fusion-Fission (hybrid) Concepts. *Nuclear Technology*, 1973, v. 20, pp. 161-178.

16. Shieff H.E.J., Goodfellow H., Gray J., Mullender M.L., Weale J.W. Measurements of the reaction rate distributions produced in a large thorium cylinder by a central source of DT neutrons. United Kingdom Atomic Energy Authority, 1977.

17. Krumbein A., Lemanska M., Segev M., Wagschal J.J., Yaari A. Reaction rate calculations in Uranium blankets surrounding a central Deuterium-Tritium neutron source. *Nuclear Technology*. 1980, v. 48, pp. 110-116.

18. Shmelev A.N., Kulikov G.G., Kurnaev V.A., Salahutdinov G.H., Kulikov E.G., Apse V.A. Hybrid Fusion-Fission Reactor with a Thorium Blanket: Its Potential in the Fuel Cycle of Nuclear Reactors. *Physics of Atomic Nuclei*. 2015, v. 78, no. 10, pp. 1100-1111.

19. Kulikov G.G., Shmelev A.N., Geraskin N.I., Kulikov E.G., Apse V.A. Fuel cycle of Russian nuclear power with involvement of thorium resources and thermonuclear neutron source with Th-blanket // *Izvestiya vuzov. Yadernaya energetika.* – 2016, №1, pp. 111-118 (in Russian).

20. Kulikov G.G., Shmelev A.N., Geraskin N.I., Kulikov E.G., Apse V.A. Advanced nuclear fuel cycle for the RF using actinides breeding in thorium blankets of fusion neutron source. *Nuclear Energy and Technology*. 2016, v. 2, iss. 2, pp.147-150.

Authors

<u>Kulikov</u> Gennady Genrikhovich, Leading Engineer E-mail: <u>ggkulikov@mephi.ru</u> <u>Kulikov</u> Evgeny Gennad'evich, Senior Lecturer E-mail: <u>egkulikov@mephi.ru</u> <u>Shmelev</u> Anatoly Nikolaevich, Professor

E-mail: <u>shmelan@mail.ru</u>

<u>Apse</u> Vladimir Aleksandrovich, Head of the Scientific and Research Sector E-mail: <u>apseva@mail.ru</u>