

ИССЛЕДОВАНИЯ ХАРАКТЕРИСТИК ТОПЛИВА БЫСТРЫХ РЕАКТОРОВ В БН-350

Ю.С. Хомяков*, С.В. Забродская, М.Ю. Семенов****

***АО «Прорыв»**

107140, Москва, ул. Малая Красносельская, 2/8, к. 7

****АО «ГНЦ РФ – ФЭИ»**

249033, Калужская обл., г. Обнинск, пл. Бондаренко, 1

Для цитирования: Хомяков Ю.С., Забродская С.В., Семенов М.Ю. Исследования характеристик топлива быстрых реакторов в БН-350. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2023. – № 3. – С. 146-152. DOI: <https://doi.org/10.26583/пре.2023.3.13>.

ВВЕДЕНИЕ

Большая часть экспериментов, выполненных при эксплуатации первого энергетического быстрого реактора БН-350 по изучению физики воспроизводства топлива и нуклидной кинетики [1], имела фундаментальный характер и не потеряла своей актуальности и в настоящее время в связи с практическими шагами по формированию замкнутого ядерного топливного цикла двухкомпонентной ядерной энергетики России. В работах [2, 3] сотрудниками ГНЦ РФ – ФЭИ был сделан обзор потенциально привлекательных экспериментов и поставлена задача по формированию базы экспериментальных данных, полученных в БН-350, для валидации нейтронно-физических констант и кодов. Приведены основные результаты такой работы.

МЕТОДИКИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

На начальном этапе исследованиям подвергалось топливо штатных ТВС реактора БН-350. Однако основной массив информации был получен с использованием уникальной методики игольчатых детекторов, облучаемых в межтвэльном пространстве ТВС.

Изучаемые образцы-свидетели материалов диаметром 1,2 мм загружались в капилляр диаметром 1,6 мм, который вводился в межтвэльный зазор и крепился на время облучения в головной части ТВС. Было определено, что тонкие капилляры из нержавеющей стали слабо влияют на теплообмен твэлов и не возмущают нейтронное поле. Как правило, в капилляр дополнительно загружался образец высокообогащенного ^{235}U , который использовался как монитор флюенса нейтронов. Для контроля положения образца-свидетеля в ТВС в нижнюю часть трубы загружался и пеленговался образец ^{192}Ir . Пример капилляра с образцами актинидов, облученного в составе ТВС ячейки 243, приведен на рис. 1.

Послереакторные исследования облученных материалов проводились с использованием комплексной гравиохимической методики. Она предполагала растворение образцов, выделение весовых количеств строго стехиометрических соединений урана и плутония, очистку от примесей, определение содержания отдельных изотопов путем сочетания взвешивания (наиболее точного метода при возможности его использования), радиометрического и масс-спектрометрического методов.

© Ю.С. Хомяков, С.В. Забродская, М.Ю. Семенов, 2023

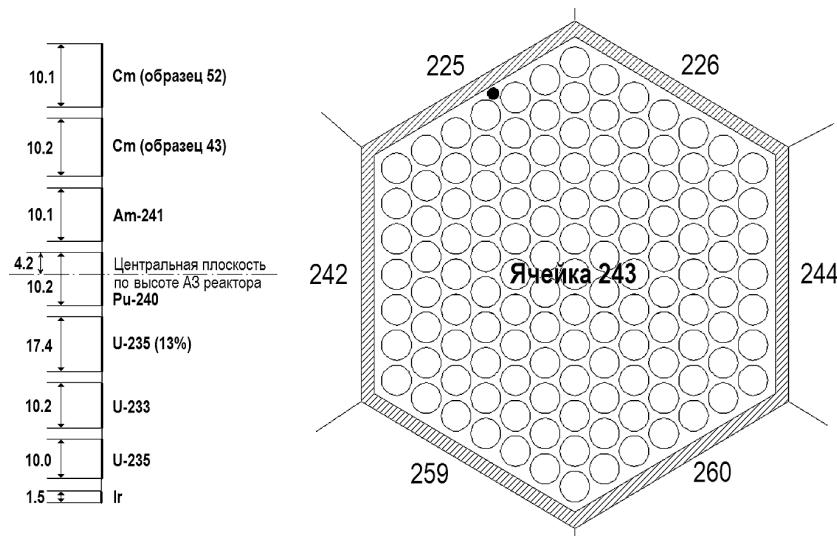


Рис. 1. Схема размещения образцов в капилляре и ТВС реактора БН-350

Для определения содержания актинидов использовались методы альфа-спектрометрического, а для осколков деления – гамма-спектрометрического анализа. Поскольку облученные образцы и их растворы имели высокую активность, то производился отбор проб растворов и последующее значительное и контролируемое разбавление при подготовке мишеней для измерений. Характерные погрешности α - и γ -измерений составляли 3–5%. Весовые и масс-спектрометрические измерения давали наиболее точные результаты по содержанию тех или иных нуклидов на уровне 1% для основных изотопов. Масс-спектрометрические исследования сочетались с методикой изотопного разбавления, позволяющей измерять абсолютные концентрации нуклидов с погрешностью до 3%.

ХАРАКТЕРИСТИКА ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ПРОГРАММ И РЕЗУЛЬТАТОВ

Исследование уранового топлива начального этапа эксплуатации. Ввиду отсутствия промышленного производства смешанного уран-плутониевого топлива в СССР пуск реактора БН-350 был осуществлен на обогащенном урановом топливе.

На первом этапе радиохимическим исследованиям подвергалось топливо непосредственно из твэлов. Несмотря на большое (более 30-ти) количество экспериментов многие из них носили методический характер и были недостаточно надежны с точки зрения современных требований. В конце 1970-х – начале 1980-х гг. для снижения радиационной нагрузки на персонал при проведении исследований начала применяться методика игольчатых образцов-свидетелей. В результате были определены коэффициенты конверсии уранового топлива и впервые удалось получить прямую информацию о величине $\alpha^{235}\text{U}$.

Исследования образцов ^{236}U и ^{237}Np . Работа была инициирована для определения накопления ^{237}Np и радиационно-опасного нуклида ^{232}U . Были впервые изготовлены образцы моноизотопного состава ^{236}U (99,7%) и ^{237}Np (100%) для однозначной интерпретации нуклидной кинетики этих изотопов. Эксперимент указал на заниженную примерно в два раза величину сечения реакции ($n,2n$) на ^{237}Np в нейтронных данных ENDF/B-V, основанных на измерениях в реакторе Саванна-Ривер. Это приводило и к существенной недооценке накопления ^{232}U .

Исследование смешанного уран-плутониевого топлива в модуле из семи ТВС.

Для изучения характеристик плутониевого топлива в различных подзонах активной зоны БН-350 были облучены образцы ^{239}Pu и энергетического Pu, а также была сформирована вставка из семи ТВС с МОКС-топливом, в которой формировался спектр типичного быстрого реактора-бридера. Различия нейтронно-физических параметров уранового и МОКС-топлива привели к возмущению нейтронного поля БН-350 в области вставки, которое было тщательно измерено в состояниях со свежим и с выгоревшим МОКС-топливом, как показано на рис. 2. Этот уникальный опыт позволил валидировать и обосновывать возможность работы быстрого реактора с различными видами топлива и его изотопным составом, подбирая соответствующим образом массовые доли компонентов.

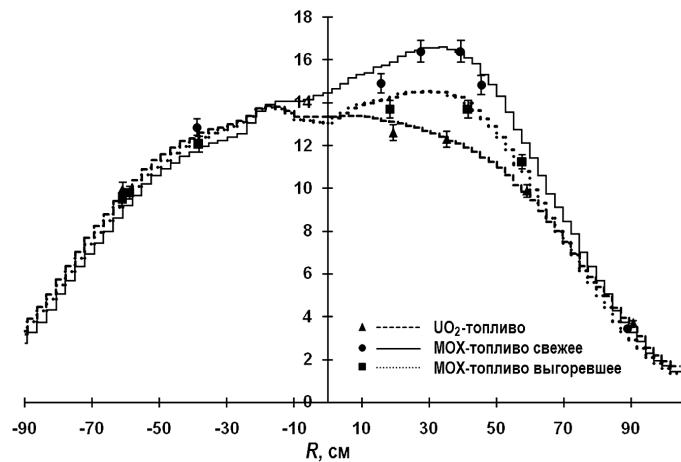


Рис. 2. Радиальное распределение скорости деления ^{239}Pu

В результате радиохимических исследований многочисленных образцов ^{239}Pu и энергетического плутония, выделенного из реакторов ВВЭР, была получена достоверная информация о характеристиках воспроизводства и изменениях изотопного состава МОКС-топлива при облучении. Для учета полученной информации в современных библиотеках ядерных данных, исходя из результатов определения состава топлива, были получены величина α для ^{239}Pu , а также ряд сечений реакций на изотопах Pu и ^{241}Am . Обобщенные расхождения расчетных и экспериментальных данных по нуклидному составу МОКС-топлива с использованием констант БНАБ-93 [4, 5] приведены в табл. 1, а по средним сечениям нейтронных реакций в различных спектрах зон БН-350 – в обобщенной табл. 2.

Исследование металлического уранового топлива. В этом специфическом эксперименте исследовались нейтронно-физические особенности и изотопная кинетика ТВС с металлическим топливом.

Исследования в обоснование ториевого топливного цикла. В БН-350 выполнена достаточно обширная программа по этой тематике. Одной из основных целей являлось изучение возможности получения ^{233}U с малым содержанием ^{232}U . В различных вариантах облучения накопление ^{232}U получено от долей ppm (в боковом экране) до 700 ppm (в зонах с обогащенным топливом).

Исследования трансмутации минорных актинидов. Уже в 1990-х гг. в БН-350 были загружены и облучены образцы-свидетели минорных актинидов (МА) ^{237}Np , ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$, а также ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{234}U , которые являются дочерними продуктами при их трансмутации. По результатам радиохимических исследований было опреде-

Таблица 1

**Сравнение расчетных (Р)
и экспериментальных (Е) данных
по нуклидному составу МОКС-топлива,
облученного в плутониевой вставке
реактора БН-350**

№	Параметр	(Р – Е)/Е, %
1	Изотопный состав U: U-235 U-236 U-238	-2 ± 2 -19 ± 12 -0 ± 2
2	Изотопный состав Pu: Pu-236 Pu-238 Pu-239 Pu-240 Pu-241	+6 ± 15 -7 ± 2 0 ± 1 -2 ± 1 +3 ± 2
3	Отношение массы Pu к массе U	0 ± 2
4	Накопление Am и Cm: Am-241 Cm-242 Cm-244	-40 ± 1 -16 ± 3 -60 ± 9
5	Выгорание	0 ± 3

Таблица 2

**Сравнение расчетных (Р)
и экспериментальных (Е) данных по отношениям
сечений на актинидах, (Р – Е)/Е, %**

Изотоп	σ_x/σ_{f5}	3МО	3БО	МОХ подзона
Th-232	Деление Захват	-1 ± 4 5 ± 6	3 ± 7 -8 ± 7	5 ± 6 0 ± 7
Pa-231	Захват	2 ± 5	-	-
U-235	α	-2 ± 3	10 ± 4	-
U-236	Деление Захват	4 ± 5 5 ± 5	1 ± 5 -	0 ± 6 -
U-238	Деление Захват n, 2n	3 ± 3 -1 ± 3 -5 ± 11	3 ± 5 1 ± 3 10 ± 10	2 ± 4 0 ± 4 -
Np-237	Деление Захват n, 2n	4 ± 4 -	-2 ± 5 -3 ± 6 2 ± 6	3 ± 5 - -
Pu-239	Деление α n, 2n	1 ± 3 2 ± 4 -	0 ± 3 15 ± 6 -	0 ± 4 1 ± 3 -6 ± 7
Pu-240	Деление Захват	3 ± 5 0 ± 5	4 ± 5 -	- 9 ± 6
Pu-241	α	-8 ± 11	-	-6 ± 6
Am-241	Захват	0 ± 8	-	-11 ± 5

лено, что за время облучения $\sim 10\%$ первоначального количества МА успело выгореть с образованием осколков деления, а до $\sim 25\%$ МА трансмутирует в дочерние тяжелые нуклиды. Таким образом, снижение опасности МА существенно зависит от конкуренции их выжигания и накопления вторичной активности. Исследования дочерних актинидов, тем не менее, показало, что в условиях многократного рецикла они могут эффективно выжигаться и эффективно воспроизводить делящиеся изотопы ^{239}Pu и ^{241}Pu , что в условиях ЗЯТЦ считается целевой функцией быстрого реактора. Расхождения между расчетными и экспериментальными данными по накоплению вторичных актинидов при облучении МА заметно выше, как видно из табл. 3, что является следствием дефицита надежных экспериментальных данных. Это свидетельствует о высокой актуальности полученных в БН-350 данных для разработки и практического освоения технологий трансмутации МА в современных реакторах БН-800, БН-1200, БР-1200.

Таблица 3

Сравнение расчетных данных по различным библиотекам констант (Р) и экспериментальных (Е) по накоплению вторичных актинидов при трансмутации ^{241}Am , $(\mathbf{P} - \mathbf{E})/\mathbf{E}$, %

Изотоп	БНАБ-93	БРОНД-3	ENDF/B6.r7	JENDL-3.3
Pu-238	-3	10	-9	-12
Pu-239	-27	-8	-37	-37
Pu-242	5	17	-4	-5
Am-242m	21	14	20	56
Am-243	-15	-8	-20	22
Cm-242	7	-1	6	47
Cm-243	-37	-19	-122	-64
Cm-244	-69	-67	-85	-14

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены сбор, оценка и анализ большой совокупности экспериментальных данных по нуклидной кинетике различных видов топлива и миорных актинидов, полученных за 30-летний цикл исследований в реакторе БН-350. Создана верификационная база для аттестации кодов и ядерных данных для современных обоснований замкнутого ядерного топливного цикла и трансмутации миорных актинидов в быстрых реакторах. Сделана обобщенная числовая оценка ожидаемых погрешностей состава топлива и средних сечений нейтронных трансмутационных реакций на основании сопоставления с накопленной совокупностью данных.

Благодарность

Авторы особо отмечают неоценимый вклад М.Ф. Троянова, А.В. Звонарева, Э.Я. Сметанина и выражают слова благодарности Ю.А. Казанскому, Н.В. Скорикову, М.Н. Николаеву, А.М. Цибуле, А.В. Бушуеву и Н.А. Нерозину, усилиями которых была запланирована и выполнена уникальная серия исследований различных видов топлива в быстром реакторе БН-350.

Литература

1. Гончаров Р.К., Звонарев А.В., Иванов В.И. и др. Сравнение с расчетом значений альфа урана-235 и плутония-239, определенных из анализа облученного топлива. // Атомная энергия. – 1986. – Т. 61. – Вып. 6. – С. 456-457.
2. Khomyakov Yu., Kotchetkov A., Semenov M. et al. Evaluation of the activation and burn-up experiments carried out in BN-350 reactor. / Proc. of the PHYSOR-2002, Seoul, Korea. Oct. 7-10, 2002.
3. Kotchetkov A., Nerozin N., Khomyakov Yu. et al. Calculation and experimental studies on minor actinides samples irradiations in fast reactors. / Proc. of the VII-th Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning Transmutation (P&T-2002), OECD/IAEA, Korea, Jiju. Oct. 14-15, 2002.
4. Николаев М.Н., Кощеев В.Н., Забродская С.В. и др. Библиотека сечений нейтронных реакций в системе константного обеспечения БНАБ-93. // ВАНТ. Сер. Ядерные константы. – 1999. – Вып. 2. – С. 33-39.
5. Крячко М.В., Забродская С.В., Семенов М.Ю., Хомяков Ю.С. Программный комплекс для расчета изотопного состава топлива. // ВАНТ. Сер. Ядерные константы. – 2018. – Вып. 2. – С. 99-112.

Поступила в редакцию 08.08.2023 г.

Авторы

Хомяков Юрий Сергеевич, начальник отдела, доктор физ.-мат. наук
E-mail: hus@proryv2020.ru, hus@pnproryv2020.ru
Забродская Светлана Васильевна, ведущий научный сотрудник, канд. физ.-мат. наук
E-mail: szabrodskaya@ippe.ru
Семенов Михаил Юрьевич, ведущий научный сотрудник, канд. физ.-мат. наук
E-mail: msemenov@ippe.ru

UDC 621.039.51

Investigation of the BN-350 Fast Reactor Fuel Performance

Khomyakov Yu.S.*, Zabrodskaia S.V.**, Semenov M.Yu.**

*Proryv JSC

2/8, room 7 Malaya Krasnoselskaya Str., 107140 Moscow, Russia

**IPPE JSC

1 Bondarenko Sq., 249033 Obninsk, Kaluga Reg., Russia

ABSTRACT

This paper presents the review of the experimental activities to investigate transmutation changes in different types of fuel and actinide samples in conditions of neutron irradiation in the BN-350 fast reactor. These experiments are of interest for justifying the transition to a closed nuclear fuel cycle. The paper describes the experimental methodology of needle detectors in the FA space between fuel elements, an integrated gravimetric methodology for investigating the nuclide composition in irradiated samples, and experimental programs for investigation of uranium, mixed uranium-plutonium and thorium fuel, as well as for transmutation of minor actinides. Generalized results are presented from comparing calculated and experimental data on the nuclide composition and the average neutron cross-section in different spectra of the BN-350 zones.

Key words: actinides, fast reactor, nuclear fuel, neutron cross-sections, transmutation, fuel cycle.

For citation: Khomyakov Yu.S., Zabrodskaia S.V., Semenov M.Yu. Research on characteristics of fast reactor fuel in BN-350. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2023, no. 3, pp. 146-152; DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2023.3.13>(in Russian).

REFERENCES

1. Goncharov R.K., Zvonarev A.V., Ivanov V.I., Kazanskiy Yu.A., Koloskov B.V., Nikolaev M.N., Pavlovich V.V., Petrukhin V.A., Semenov M.Yu., Skorikov N.V., Smetanin E. Ya., Tsiboulya A.M., Shkolnik V.S. Comparison with Calculation of Alfa Uranium-235 and Plutonium-239 Values Determined from an Analysis of Irradiated Fuel. *Atomnaya Energiya*. 1986, v. 61, iss. 6, pp. 456-457 (in Russian).
2. Khomyakov Yu., Kotchetkov A., Nerozin N., Semenov M., Smetanin E., Tsiboulya A. Evaluation of the Activation and Burn-Up Experiments Carried Out in BN-350 Reactor. Proc. of the PHYSOR-2002, Seoul, Korea. Oct. 7-10, 2002, p. 280-293.
3. Kotchetkov A., Nerozin N., Khomyakov Yu., Semenov M., Smetanin E., Tsiboulya A. Calculation and Experimental Studies on Minor Actinides Samples Irradiations in Fast Reactors. Proc. of the VII-th Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning Transmutation (P&T-2002), OECD/IAEA, Korea, Jiju. Oct. 14-15, 2002, p. 125-137.
4. Nikolaev M.N., Kosheev V.N., Korchagina J.A., Zabrodskaya S.V., Tsiboulya A.M. Neutron Cross-Section Library in Constant System ABBN-93. VANT. Ser. *Yadernye Konstanty*. 1999, iss. 2, pp. 33-39 (in Russian).
5. Krachko M.V., Zabrodskaya S.V., Semenov M.Yu., Khomyakov Yu.S. The Software Package for Calculating the Isotopic Composition of the Fuel. VANT. Ser. *Yadernye Konstanty*. 2018, iss. 2, pp. 99-112 (in Russian).

Authors

Yury S. Khomyakov, Head of Department, Dr. Sci. (Phys.-Math.),
E-mail: hus@proryv2020.ru, hus@pnproryv2020.ru
Svetlana V. Zabrodskaya, Leading Researcher, Cand. Sci. (Phys.-Math.),
E-mail: szabrodskaya@ippe.ru
Mikhail Yu. Semenov, Leading Researcher, Cand. Sci. (Phys.-Math.),
E-mail: msemenov@ippe.ru