



**ДОСЛІДЖЕННЯ ВИСОКОЕНЕРГЕТИЧНИХ НЕЙТРОНІВ ПОДІЇ ВІДЕР ТА ПЕРЕРІЗІВ  
( $n, xn$ ) РЕАКЦІЙ І ЇХ РОЛІ В ЯДЕРНОМУ ПАЛИВНОМУ ЦИКЛІ**

М.Ф. ВЛАСОВ, І.П. ДРЯПАЧЕНКО, С.А. КРАВЧЕНКО, М.В. ПАСІЧНИК,  
Б.А. РУДЕНКО

Реалізація замкненого паливного циклу вимагає вирішення ряду складних проблем, однією з яких є утворення  $^{232}\text{U}$ , який суттєво ускладнює радіаційну обстановку на певних стадіях ядерного паливного циклу. Період  $\alpha$ -розпаду  $^{232}\text{U}$  складає 72 роки, отже є незручним з точки зору "охолодження" відпрацьованого палива. Ланцюжок розпаду вміщує жорсткий  $\gamma$ -випромінювач  $^{208}\text{Tl}$  ( $E_\gamma = 2.61$  MeV), а також небезпечний (внутрішнє опромінювання) торон -  $^{220}\text{Rn}$ .

Вже після першої кампанії реакторне ядерне паливо вміщує  $^{232}\text{U}$  в концентраціях  $10^{-7}\% \div 10^{-8}\%$ , при яких ускладнюється його переробка [1]. При опромінюванні торію в реакторах на теплових нейтронах та в екранах реакторів типу БН вміст  $^{232}\text{U}$  в  $^{233}\text{U}$ , що напрацьовується, очікується на рівні  $10^{-3}\% \div 10^{-4}\%$  [2], отже й проблеми, пов'язані з утворенням  $^{232}\text{U}$ , постають більш гостро.

В утворенні  $^{232}\text{U}$  беруть участь як теплові, так й швидкі нейтрони реакторного спектра. Ланцюжки, які ведуть до накопичення  $^{232}\text{U}$  в уран-плутонієвому та уран-торієвому паливних циклах, приведені в [2,3]. Методика розрахунку утворення  $^{232}\text{U}$  базується на комбіновано-ітераційному методі [2]. Результати розрахунків показують, що роль швидких нейтронів досить значна: більше 50%  $^{232}\text{U}$  в уран-плутонієвому циклі утворюється через канал  $^{234}\text{U}(n,3n)^{232}\text{U}$  й 95% по ланцюжку  $^{232}\text{Th}(n,2n)^{231}\text{Th}(\beta^-)^{231}\text{Pa}(n,\gamma)^{232}\text{Pa}(\beta^-)^{232}\text{U}$  в уран-торієвому циклі при опромінюванні торію в швидких реакторах. Вископорогова реакція  $^{234}\text{U}(n,3n)^{232}\text{U}$  з порогом 12.6 MeV, згідно з [3], є також важливим, але досконало не вивченим каналом утворення  $^{232}\text{U}$  в торієвому циклі за рахунок швидких нейтронів. Невизначеність цього

високоенергетичного каналу утворення  $^{232}\text{U}$  складається, на наш погляд, з декількох причин:

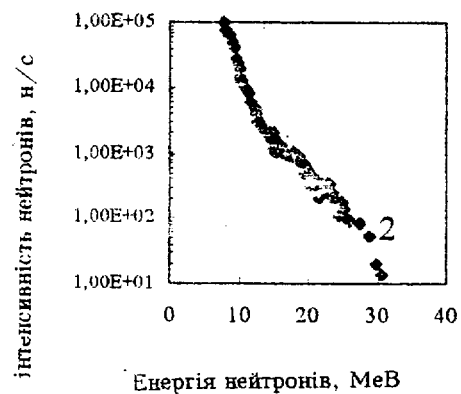
- 1) для функції збудження цієї реакції існують тільки теоретичні розрахунки з недостатньою для практичних цілей точністю [1,6];
- 2) недостатньо вивчена форма реакторного спектра нейтронів в області відгуку цієї реакції;
- 3) існує невизначеність відношення концентрації  $^{234}\text{U}$  до  $^{233}\text{U}$  з часом в процесі роботи реактора (величина  $\alpha = 0.1$  для  $^{233}\text{U}$ : десята частина ядер  $^{233}\text{U}$  в процесі захвату нейтронів перетворюється в  $^{234}\text{U}$ ).

В зв'язку із згаданою вище роллю високоенергетичних нейтронів виконано вимірювання спектра нейтронів поділу реактора ВВР-М (ІЯД НАН України) в області енергій нейтронів  $3 \div 25$  MeV. Дослідження проводилися диференційним методом протонів віддачі на горизонтальному каналі реактора. Одержаний в цих вимірах спектр (мал.) порівнювався із спектром нейтронів поділу  $^{235}\text{U}$  тепловими нейтронами (мал.). В області енергій  $3 \div 12$  MeV спектр практично не відрізняється від спектра нейтронів поділу  $^{235}\text{U}$  (пряма 1 - середня енергія вимірюного спектру складає 2.02 MeV):

$$N_1(E_n) \approx E_n^{1/2} e^{-0.74E_n}, T_1 = 1.34 \text{ MeV}, \bar{E}_1 = 2.02 \text{ MeV}.$$

В області вище 12 MeV зареєстрований суттєвий надлишок нейтронів. Якщо цю частину спектра апроксимувати максвелівським розподілом, йому відповідатиме середня енергія близько 5 MeV (пряма 2):

$$N_2(E_n) = E_n^{1/2} e^{-0.28E_n}, T_2 = 3.45 \text{ MeV}, E_2 = 5.27 \text{ MeV}.$$



Мал. Спектр нейтронів реактора.  
Горизонтальний спектр № 10.

Як вже відмічено раніше, роль порогових реакцій у накопиченні  $^{232}\text{U}$  надзвичайно велика. В розрахунках використовується усереднений по спектру переріз порогової реакції, функцію збудження якої необхідно знати з достатньою точністю. Це реакції  $^{238}\text{U}(n,2n)^{237}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Np}$ ,  $^{234}\text{U}(n,3n)^{232}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}(n,2n)^{231}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Pa}(n,2n)^{232}\text{Pa}$ ,  $^{233}\text{U}(n,2n)^{232}\text{U}$ . З підвищеною точністю необхідно знати функції збудження реакцій  $^{234}\text{U}(n,3n)^{232}\text{U}$  й (для уран-плутонієвого циклу) реакції  $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Np}$  (див. [1,2]). Для останньої реакції енергетична залежність визначалася експериментально [5].

В зв'язку з великими розбіжностями результатів існуючих теоретичних розрахунків функцій збудження порогових реакцій, важливих для паливного циклу, була створена програма EXITON. Ця програма дозволяє розрахувати функції збудження реакцій типу  $(n, xn)$  з урахуванням передрівноважних процесів. Цей підхід, як показано в роботі [4], дає кращі результати.

Розраховані за допомогою програми EXITON функції збудження порогових реакцій, що беруть участь в утворенні  $^{232}\text{U}$ , порівнювалися з відповідними розрахунковими перерізами бібліотеки оцінених даних JENDL-3. Порівняння усереднених перерізів порогових реакцій в ланцюгах накопичення  $^{232}\text{U}$  наведено в таблиці. В програмі EXITON усереднення розрахованих функцій збудження проводилося у спектрі нейтронів поділу  $^{235}\text{U}$  тепловими нейтронами. Розподіл спектра брався у формі Кранберга

$$N(E_n) = 0.452 \cdot \exp(-E_n/0.965) \text{sh} \sqrt{2.29 E_n}.$$

Необхідні дані по перерізам поділу ядер, функції збудження яких розраховувалися, бралися із бібліотек ENDE/B-IV та JENDL3.

Таблиця. Порівняння усереднених перерізів порогових реакцій в ланцюгах утворення  $^{232}\text{U}$ .

Ядро	Тип реакції та перерізу	Усереднений переріз, барн (JENDL-3)	Усереднений переріз, барн (EXITON)	Усереднений переріз, барн (ВВР-М)
$^{237}\text{Np}$	$\langle\sigma_{n,2n}\rangle$	$3.120 \cdot 10^{-3}$	$3.26 \cdot 10^{-3}$	—
$^{238}\text{U}$	$\langle\sigma_{n,2n}\rangle$	$12.07 \cdot 10^{-3}$	$16.3 \cdot 10^{-3}$	—
$^{232}\text{Th}$	$\langle\sigma_{n,2n}\rangle$	$14.46 \cdot 10^{-3}$	$20.8 \cdot 10^{-3}$	—
$^{234}\text{U}$	$\langle\sigma_{n,3n}\rangle$	$14.54 \cdot 10^{-6}$	$4.84 \cdot 10^{-6}$	$77.6 \cdot 10^{-6}$
$^{233}\text{U}$	$\langle\sigma_{n,2n}\rangle$	$1.796 \cdot 10^{-3}$	$8.85 \cdot 10^{-3}$	—
$^{233}\text{Pa}$	$\langle\sigma_{n,2n}\rangle$	$11.38 \cdot 10^{-3}$	$10.3 \cdot 10^{-3}$	—

Окремо переріз реакції  $^{234}\text{U}(n,3n)^{232}\text{U}$  з високим порогом 12.6 МеВ усереднювався по виміряному раніше (мал.) спектру нейтронів поділу реактора ВВР-М. Результати вказують (табл.) на недооцінку ролі швидких нейтронів в утворенні  $^{232}\text{U}$  та інших актиноідів - продуктів високорогових реакцій. Отримані результати уявляються важливими, але носять попередній характер, так як необхідно провести повторні вимірювання спектра нейтронів поділу реактора ВВР-М (в кращих фонових умовах) як методом протонів віддачі, так і альтернативним (активаційним) методом. Зараз планується використати методику збігів з двома органічними сцинтиляторами (один з яких розташований в потоці нейтронів), що дозволить у 20 ÷ 40 разів підвищити загальну ефективність методу протонів віддачі порівняно з використанням тонкого водневмісного радіатора.

## ЛИТЕРАТУРА

- 1) *Круглов А.К., Рудик А.П.* Реакторное производство радиоактивных нуклидов. М.: Энергоатомиздат. 1985.
- 2) *Матвеев Л.В., Ценгер Э.М.* Уран-232 и его влияние на радиационную обстановку в ядерном топливном цикле. М.: Энергоатомиздат. 1985.
- 3) *Мурогов В.М., Троянов М.Ф., Шмелёв А.Н.* Использование тория в ядерных реакторах. М.: Энергоатомиздат. 1983.
- 4) *M.L. Jhingan et al.* Pre-equilibrium effect in (n,2n) reactions. Acta Physica Hungarica. 1984.55.Num.1-4. P.195.
- 5) *N.V.Kornilov et al.* The measurement of  $^{237}\text{Np}(n,2n)^{236}\text{Np}(22.5\text{ h})$  reaction cross-sections in the neutron energy range 7 + 10 MeV. IAEA - TECDOC - 336.
- 6) *Бычков В.М., Пляскин В.П., Тошинская Э.Ф.* Оценка сечений реакций (n,2n), (n,3n) для тяжёлых ядер. Яд. конст. 1981.