



(12)

## CERERE DE BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2021 00421**

(22) Data de depozit: **22/07/2021**

(41) Data publicării cererii:  
**30/01/2023** BOPI nr. **1/2023**

(71) Solicitant:  
• **CRISTESCU ION, STR. SPIRU HARET  
NR. 1, ROMAN, NT, RO**

(72) Inventatori:  
• **CRISTESCU ION, STR. SPIRU HARET  
NR. 1, ROMAN, NT, RO**

(54) **PROCEDEU NUCLEAR DE OBTINERE DIOXID DE URANIU  
233 ȘI DIOXID DE PLUTONIU 239**

(57) Rezumat:

Invenția se referă la un procedeu nuclear de obținere a  $^{233}\text{UO}_2$  și la un procedeu nuclear de obținere a  $^{239}\text{PuO}_2$ . Procedeu de obținere a  $^{233}\text{UO}_2$  constă în iradierea  $^{232}\text{ThO}_2$  în flux neutronic termic cu  $10^{18}\dots 10^{21}$  neutroni/m<sup>2</sup>s la o durată a iradierii de 4,5...6 ore și, după o durată totală de staționare în afara reactorului de 9990...1327 de ore pentru dezintegrarea  $\beta^-$  a izotopului  $^{233}\text{Pa}$ , se obține  $^{233}\text{UO}_2$  la concentrații de masă de 24,563...817,7 kg/m<sup>3</sup> și viteze de producere a izotopului fisil  $^{233}\text{U}$  de 0,00346...0,6162 kg/m<sup>3</sup>oră. Procedeu de obținere a  $^{239}\text{PuO}_2$  constă în iradierea

$^{238}\text{UO}_2$  în flux neutronic termic cu  $10^{18}\dots 10^{21}$  neutroni/m<sup>2</sup>s la o durată a iradierii de 6 ore și, după o durată totală de staționare în afara reactorului de 871.5...371.5 ore pentru dezintegrarea  $\beta^-$  a izotopului  $^{239}\text{Np}$ , se obține  $^{239}\text{PuO}_2$  la concentrații de masă de 0,8452...311,9357 kg/m<sup>3</sup> și viteze de producere a izotopului fisil  $^{239}\text{Pu}$  de 0,00097... 0,8397 kg/m<sup>3</sup>oră.

Revendicări: 2



OFICIUL DE S.T. 1 PENTRU INVENȚII ȘI MĂRCI	
Cerere de brevet de invenție	
Nr. ....	a 2021 ep 421
Data depozit .....	22-07-2021

Secret

*AMT*

## PROCEDEU NUCLEAR DE OBȚINERE DIOXID DE URANIU 233 ȘI DIOXID DE PLUTONIU 239

Invenția se referă la un procedeu nuclear de obținere dioxid de uraniu 233 și dioxid de plutoniu 239 combustibili nucleari sintetici pentru cicluri avansate.

Este cunoscut reactorul nuclear energetic CANDU cu combustibil dioxid de uraniu ( $\text{UO}_2$ ) natural (0,72%  $^{235}\text{UO}_2$ , 99,78%  $^{238}\text{UO}_2$ ), densitatea medie  $\rho = 10600 \text{ kg/m}^3$  și moderator apa grea ( $\text{D}_2\text{O}$ ) care reactor are următoarele date nucleare și parametri dimensionali conform tabel :

Laplacean geometric al reactorului [ $\text{B}^2(\text{m}^{-2})$ ]:	0,56685
Probabilitatea medie de evitare a capturii de rezonanță a neutronilor rapizi în nucleele izotopilor fertili ( $^{232}\text{Th}, ^{238}\text{U}$ ) (p) :	0,99
Probabilitatea capturii de rezonanță a neutronilor rapizi în nucleele izotopilor fertili ( $^{232}\text{Th}, ^{238}\text{U}$ ) (1 - p) :	0,01
Coefficient de multiplicare cu neutroni rapizi - factor $\epsilon$ :	1,02 .... 1,08
Vîrsta Fermi a neutronilor rapizi în moderator apa grea [ $\tau(\text{m}^2)$ ]:	0,035
Probabilitatea de evitare a scurgerilor neutronilor rapizi în afara reactorului CANDU [ $P_f = \exp(-\text{B}^2 \cdot \tau)$ ]:	0,98
Număr canale de combustibil nuclear respectiv tuburi de presiune ale reactorului CANDU:	380
Număr fascicole de combustibil nuclear pe un canal/tub de presiune:	12 .... 15

Izotopul fisionabil cu neutroni termici (izotop fisil) este  $^{235}\text{U}$  (uraniu) și concentrația de nuclee [ $N_{25}(\text{nuclee}/\text{m}^3)$ ] se determină conform ecuației dimensionale:  $N_{25} = [(0,72/100) \cdot \rho \cdot N_A / M]$ ;  $N_A$  - numărul lui Avogadro ( $N_A = 6,023 \cdot 10^{26} \text{ nuclee}/\text{kmol}$ );  $M$  - masa molară a  $^{235}\text{UO}_2$  ( $M = 267 \text{ kg}/\text{kmol}$ ). Datele nucleare ale izotopului fisil  $^{235}\text{U}$  sunt specificate conform tabel:

*AMT*

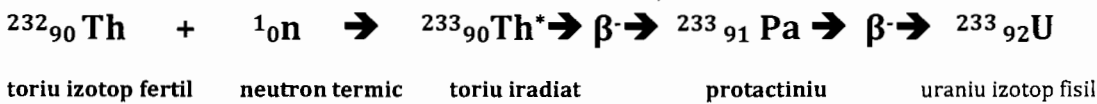
Secțiune eficace microscopică de fisiune [ $\sigma_{25}(\text{m}^2)$ ]:	$582 \cdot 10^{-28}$
Randament neutronic pe fisiune [ $\nu(n^0\text{rapizi}/\text{fisiune})$ ]	2,43
Concentrația $^{235}\text{U}$ [ $N_{25}(\text{nuclee}/\text{m}^3)$ ]:	$1,72163 \cdot 10^{26}$
Secțiunea macroscopică de fisiune a $^{235}\text{U}$ [ $\Sigma_{25}=(N_{25} \cdot \sigma_{25})$ ] ( $\text{m}^{-1}$ ):	10,02

În baza datelor nucleare ale  $^{235}\text{U}$ , secțiunea macroscopică de captură rezonantă a neutronilor rapizi în nucleele izotopilor fertili  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$ , se determină conform ecuației dimensionale:  $\Sigma_r = [\nu \cdot \epsilon \cdot P_f \cdot \Sigma_{25} \cdot (1 - p)] = 0,25055 \text{ m}^{-1}$ . Sunt cunoscute procedee de iradiere tehnologică cu neutroni termici sau rapizi și cu diferite radiații a substanțelor, materialelor pentru obținerea unor substanțe cu proprietăți deosebite caracterizate prin atomi marcați izotopic, utilizate în diferite procese fizice și chimice. Principalele dezavantaje sunt că nu realizează obținerea izotopilor sintetici destinați combustibililor nucleari. Scopul procedurii nuclear este obținerea izotopilor sintetici  $^{233}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  fisionabili prin iradierea cu neutroni termici a izotopilor fertili  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$ . Problema tehnică este durata iradierii izotopilor fertili, randamentul/concentrația izotopilor sintetici și blocarea obținerii izotopilor pari ai protactiniului, uraniului, neptuniului, plutoniului respectiv  $^{234}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{240}\text{Np}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  nefisionabili cu neutroni termici în reactorul nuclear energetic CANDU.

Procedeu nuclear de obținere dioxid de uraniu 233, dioxid de plutoniu 239 este constituit din încărcarea fasciculelor de elemente combustibile dioxid de toriu 232, dioxid de uraniu 238 în tuburile de presiune ale reactorului CANDU, iradierea în flux neutronic termic a izotopilor  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  la durata iradierii, extragerea fasciculelor  $^{233}\text{ThO}_2^*$ ,  $^{239}\text{UO}_2^*$ , staționarea fasciculelor în afara reactorului la durata dezintegrării totale a izotopilor  $^{233}\text{Th}^*$ ,  $^{239}\text{U}^*$  la  $^{233}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ , reîncărcarea fasciculelor elementelor combustibile  $^{233}\text{UO}_2$ ,  $^{239}\text{PuO}_2$  în tuburile de presiune ale reactorului CANDU pentru producția energiei de fisiune sau reprocesarea radiochimică. Se dau două exemple de realizare a procedurii nuclear:

Exemplul 1: Se încarcă 250...300 kg dioxid de toriu 232 (masa molară  $M = 264 \text{ kg/kmol}$ , densitatea  $\rho = 10000 \text{ kg/m}^3$ ) respectiv 12...15 fascicule combustibile într-un tub de presiune al reactorului CANDU cu ajutorul

mașinii de încărcare-descărcare MID. Are loc iradierea în flux neutronic termic variabil a izotopului  $^{232}_{90}\text{Th}$  la  $^{233}_{90}\text{Th}^*$  prin capturi neutronice și dezintegrări  $\beta$ -succesive, conform ecuațiilor :



Ecuția cinetică diferențială pentru formarea  $^{233}_{90}\text{Th}^*$ :

$dN^*/dt = (\Sigma_{02}^* \cdot \Phi) - (\lambda^* \cdot N^*)$  ;  $N^*$  - concentrația de nuclee  $^{233}_{90}\text{Th}^*$  (nuclee/ $\text{m}^3$ );  
 $d/dt$  - operator derivata în raport cu timpul  $t(\text{s}^{-1})$ ;  $\lambda^*$  - constanta de dezintegrare a  $^{233}_{90}\text{Th}^*$  ( $\lambda^* = 5 \cdot 10^{-4} \text{s}^{-1}$ );  $\Phi$  - flux neutronic termic variabil în reactor ( $\text{n}^0/\text{m}^2 \cdot \text{s}$ );  $\Sigma_{02}^*$  - secțiunea macroscopică de absorbție neutroni termici și de captură rezonantă neutroni rapizi în nucleele izotopului fertil  $^{232}_{90}\text{Th}$  ( $\text{m}^{-1}$ ) și se determină conform ecuației dimensionale:

$$\Sigma_{02}^* = (\Sigma_{02} + \Sigma_r) = (\sigma_{02} \cdot N_{02}) + [v \cdot \epsilon \cdot P_f \cdot \Sigma_{25} \cdot (1 - p)] =$$

$(\sigma_{02} \cdot \rho \cdot N_A / M) + [v \cdot \epsilon \cdot P_f \cdot \Sigma_{25} \cdot (1 - p)]$  ;  $\Sigma_{02}$  - secțiunea macroscopică de absorbție neutroni termici în nucleele izotopului fertil  $^{232}_{90}\text{Th}$  ( $\text{m}^{-1}$ );  $\Sigma_r$  - secțiunea macroscopică de captură rezonantă a neutronilor rapizi generați prin fisiune de  $^{235}_{92}\text{U}$  și capturați în nucleele izotopului fertil  $^{232}_{90}\text{Th}$  ( $\text{m}^{-1}$ );  $\sigma_{02}$  - secțiunea microscopică de absorbție neutroni termici în nucleele izotopului fertil  $^{232}_{90}\text{Th}$  ( $\sigma_{02} = 7,4 \cdot 10^{-28} \text{m}^2$ );  $N_{02}$  - concentrația nucleelor izotopului fertil  $^{232}_{90}\text{Th}$  (nuclee/ $\text{m}^3$ );  $\rho$  - densitatea  $^{232}\text{ThO}_2$  ( $\text{kg}/\text{m}^3$ );  $N_A$  - numărul Avogadro (nuclee/ $\text{kmol}$ );  $M$  - masa molară a  $^{232}\text{ThO}_2$  ( $\text{kg}/\text{kmol}$ );  $\Sigma_{02}^* = 17,1332 \text{m}^{-1}$ ; Ecuția integrală pentru formarea  $^{233}_{90}\text{Th}^*$ :  $N^* = (\Sigma_{02}^* \cdot \Phi / \lambda^*) \cdot [1 - \exp(-\lambda^* \cdot t)]$ ;  $\exp$  - funcția exponențială.

Durata maximă de iradiere:  $t = (10 / \lambda^*) = 20000 \text{s}$  [6 ore]; Concentrația maximă de nuclee  $^{233}_{90}\text{Th}^*$  se determină conform ecuației dimensionale:  $N^* = [(\Sigma_{02}^* \cdot \Phi) / \lambda^*]$ ; Concentrația de masă [ $C^*$  ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )] se determină conform ecuației dimensionale:  $C^* = [(N^* \cdot M) / N_A]$ . În flux neutronic termic variabil, datele pentru  $N^*$ ,  $C^*$ ,  $t$  (ore) sunt specificate conform tabel:

$\Phi(\text{n}^0/\text{m}^2 \cdot \text{s})$ :	$10^{18}$	$10^{19}$	$10^{20}$	$10^{21}$
$N^*(\text{nuclee}/\text{m}^3)$ :	$3,4256 \cdot 10^{22}$	$3,416 \cdot 10^{23}$	$3,3268 \cdot 10^{24}$	$2,63587 \cdot 10^{25}$
$C^*(\text{kg}/\text{m}^3)$ :	0,0151	0,15	1,46	11,6
$t(\text{ore})$ :	6	6	5,5	4,5

*MMS*

Concentrația izotopului par  $^{234}_{90}\text{Th}$  nefisionabil cu neutroni termici și format prin captura neutronică în  $^{233}_{90}\text{Th}^*$  cu secțiunea microscopică de absorbție  $\sigma^* = 1500 \cdot 10^{-28} \text{ m}^2$ , este neglijabilă deoarece  $(\sigma^* \cdot \Phi) \ll \lambda^*$ ;

Ecuatia cinetică diferențială pentru formarea izotopului intermediar  $^{233}_{91}\text{Pa}$  prin dezintegrarea  $\beta$ -a  $^{233}_{90}\text{Th}^*$ :

$dN_{13}/dt = (\lambda^* \cdot N^*) - [(\lambda_{13} + \sigma_{13} \cdot \Phi) \cdot N_{13}] = (\Sigma_{02}^* \cdot \Phi) - [(\lambda_{13} + \sigma_{13} \cdot \Phi) \cdot N_{13}]$ ;  $N_{13}$ - concentrația de nuclee  $^{233}_{91}\text{Pa}$  (nuclee/ $\text{m}^3$ );  $\lambda_{13}$ - constanta de dezintegrare  $\beta$ -a nucleelor  $^{233}_{91}\text{Pa}$  ( $\lambda_{13} = 3 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ );  $\sigma_{13}$ - secțiunea microscopică de absorbție a neutronilor termici în nucleele  $^{233}_{91}\text{Pa}$  ( $\sigma_{13} = 68 \cdot 10^{-28} \text{ m}^2$ ). Ecuatia integrală pentru  $^{233}_{91}\text{Pa}$ :

$N_{13} = [(\Sigma_{02}^* \cdot \Phi) / (\lambda_{13} + \sigma_{13} \cdot \Phi)] \cdot \{1 - \exp[-(\lambda_{13} + \sigma_{13} \cdot \Phi) \cdot t]\}$ . Extragerea fasciculelor combustibile după durata iradierii cu ajutorul mașinii MID din tubul de presiune CANDU, durata maximă a dezintegrării  $\beta$ -[ $t_d$ (s)] a nucleelor izotopului  $^{233}_{90}\text{Th}^*$  se determină conform ecuației dimensionale:  $t_d = [10 / (\lambda_{13} + \sigma_{13} \cdot \Phi)]$ ; Concentrația maximă de nuclee  $^{233}_{91}\text{Pa}$ , se determină conform ecuației dimensionale:

$N_{13} = [(\Sigma_{02}^* \cdot \Phi) / (\lambda_{13} + \sigma_{13} \cdot \Phi)]$ . Concentrația maximă de masa a  $^{233}_{91}\text{PaO}_2$  [ $C_{13}$ (kg/ $\text{m}^3$ )], se determină conform ecuației dimensionale:  $C_{13} = [(N_{13} \cdot M) / N_A]$ ;  $M$  - masa molară pentru  $^{233}_{91}\text{PaO}_2$  ( $M = 265 \text{ kg/kmol}$ ). În flux neutronic termic variabil, datele pentru  $N_{13}$ ,  $C_{13}$ ,  $t_d$  (ore/zile) sunt specificate conform tabel:

$\Phi$ ( $\text{n}^0/\text{m}^2 \cdot \text{s}$ ):	$10^{18}$	$10^{19}$	$10^{20}$	$10^{21}$
$N_{13}$ (nuclee/ $\text{m}^3$ ):	$5,5828 \cdot 10^{25}$	$4,6413 \cdot 10^{26}$	$16,973 \cdot 10^{26}$	$18,5625 \cdot 10^{26}$
$C_{13}$ (kg/ $\text{m}^3$ ):	24,563	204,208	746,8	816,7
$t_d$ (ore/zile):	9054/377	7548/314,5	2834/118	391/16

Ecuatia cinetică diferențială pentru obținerea izotopului fisil  $^{233}_{92}\text{U}$  prin dezintegrarea  $\beta$ -a  $^{233}_{91}\text{Pa}$ :  $dN_{23}/dt = \lambda_{13} \cdot N_{13}$ ;  $N_{23}$ - concentrația de nuclee  $^{233}_{92}\text{U}$  (nuclee/ $\text{m}^3$ ).  $N_{23} = \lambda_{13} \cdot N_{13} \cdot t$ ; În lipsa fluxului netronic prin staționare în afara reactorului și în condiția tehnologică  $N_{23} = N_{13}$ ;  $C_{23} = C_{13}$ , durata maximă a dezintegrării  $\beta$ -pentru nucleele izotopului  $^{233}_{91}\text{Pa}$ , se determină conform ecuației dimensionale:  $t_d = (1 / \lambda_{13}) = 936$  ore [39 zile]. În flux neutronic variabil crescător, durata maximă totală [ $T_d$ (ore)] a dezintegrării  $\beta$ -scade. Viteza producerii izotopului  $^{233}_{92}\text{U}$  [ $V_p$ (kg/ $\text{m}^3 \cdot \text{ora}$ )] este crescătoare odată cu creșterea concentrației de masa [ $C_{23}$ (kg/ $\text{m}^3$ )] a  $^{233}_{92}\text{UO}_2$ . Datele sunt specificate conform tabel:

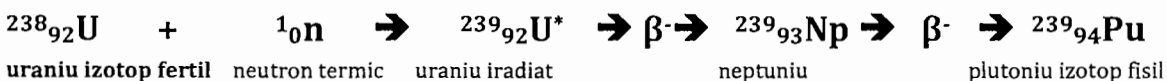
AMT

$\Phi(n^0/m^2.s)$ :	$10^{18}$	$10^{19}$	$10^{20}$	$10^{21}$
$C_{23}(kg/m^3)$ :	24,563	204,208	746,8	817,7
$T_d(ore)$ :	9990	8484	3770	1327
$V_p(kg/m^3.oră)$ :	0,00346	0,0241	0,1981	0,6162

După durata totală de staționare, fasciculele de elemente combustibile  $^{233}\text{UO}_2$ -  $^{232}\text{ThO}_2$  se reîncarcă în reactor CANDU pentru producția energiei de fisiune sau se reprocesează radiochimic pentru separarea izotopică conform procedurilor și reactoarelor chimice cunoscute. În cazul neutronilor termici, constantele/datele nucleare pentru izotopul  $^{233}_{92}\text{U}$  sunt specificate conform tabel:

Secțiune eficace microscopică de fisiune [ $\sigma_{f23}(m^2)$ ]:	$532.10^{-28}$
Secțiune eficace microscopică de absorbție [ $\sigma_{a23}(m^2)$ ]:	$588.10^{-28}$
Randament neutronic pe fisiune [ $v(n^0 \text{ rapizi}/\text{fisiune})$ ]:	2,52
Randament neutronic pe absorbție [ $\eta(n^0 \text{ rapizi}/n^0 \text{ abs.})$ ]:	2,28

Exemplul 2: Se încarcă 300 kg  $^{238}\text{UO}_2$  (masa molară  $M = 270$  kg/kmol, densitatea  $\rho = 10600$  kg/m<sup>3</sup>) reprocésat chimic din combustibil CANDU iradiat/uzat respectiv se încarcă 12...15 fascicule combustibile într-un tub de presiune al reactorului CANDU cu ajutorul mașinii MID. Dioxidul de uraniu reprocésat chimic mai are  $^{235}\text{UO}_2$  rezidual maxim 0,22% concentrație procentuală izotopică. Are loc iradierea în flux neutronic termic variabil a izotopului fertil  $^{238}_{92}\text{U}$  la  $^{239}_{92}\text{U}^*$  prin captură neutronică și dezintegrare  $\beta$ -conform ecuațiilor:



$^{239}_{93}\text{Np} + {}^1_0\text{n} \rightarrow ^{240}_{93}\text{Np}$ . Ecuația cinetică diferențială pentru

$^{239}_{92}\text{U}^*$ :  $dN^*/dt = (\Sigma_{28}^* \cdot \Phi) - (\lambda^* \cdot N^*)$ ;  $N^*$ - concentrația de nuclee

$^{239}_{92}\text{U}^*$  (nuclee/m<sup>3</sup>);  $\lambda^*$ - constanta de dezintegrare a nucleelor  $^{239}_{92}\text{U}^*$

( $\lambda^* = 5.10^{-4} \text{ s}^{-1}$ );  $d/dt$  - operator derivata în raport cu timpul  $t(\text{s}^{-1})$ ;

$\Phi$  - flux neutronic termic variabil ( $n^0/m^2.s$ );  $\Sigma_{28}^*$ - secțiunea

macroscopică de absorbție neutroni termici și captură rezonantă

neutroni rapizi în nucleele izotopului fertil  $^{238}_{92}\text{U}(m^{-1})$  și se determină

conform ecuației dimensionale:  $\Sigma_{28}^* = (\Sigma_{28} + \Sigma_r) = (\sigma_{28} \cdot N_{28}) + [v \cdot \epsilon \cdot P_f \cdot \Sigma_{25} \cdot (1-p)]$

$= (\sigma_{28} \cdot \rho \cdot N_A / M) + [v \cdot \epsilon \cdot P_f \cdot \Sigma_{25} \cdot (1-p)]$ ; ( $\Sigma_{28}^* = 6,58617 \text{ m}^{-1}$ );  $\Sigma_{28}$ - secțiunea

macroscopică de absorbție neutroni termici în nucleele izotopului fertil

$^{238}_{92}\text{U}(m^{-1})$ ;  $\Sigma_r$ - secțiunea macroscopică de captură rezonantă a

neutronilor rapizi generați de  $^{235}_{92}\text{U}$  și capturați în nucleele izotopului

Amto

fertil  $^{238}_{92}\text{U}(\text{m}^{-1})$ ;  $\sigma_{28}$ - secțiunea microscopică de absorbție neutroni termici în nucleele izotopului fertil  $^{238}_{92}\text{U}(\sigma_{28}= 2,73 \cdot 10^{-28} \text{m}^2)$ ;  $N_{28}$ - concentrația nucleelor izotopului fertil  $^{238}_{92}\text{U}(\text{nuclee}/\text{m}^3)$ . Ecuația integrală pentru formarea  $^{239}_{92}\text{U}^*$ :  $N^*=[(\Sigma_{28} \cdot \Phi)/\lambda^*] \cdot [1 - \exp(-\lambda^* \cdot t)]$ ; Durata maximă de iradiere:  $t = (10/\lambda^*) = 20000 \text{ s}$ [6 ore]. Concentrația maximă de nuclee  $^{239}_{92}\text{U}^*(\text{nuclee}/\text{m}^3)$ :  $N^* = [(\Sigma_{28} \cdot \Phi)/\lambda^*]$ ; Concentrația de masă  $^{239}\text{UO}_2^*[C^*(\text{kg}/\text{m}^3)]$ :  $C^* = [(N^* \cdot M)/N_A]$ ;  $M$  - masa molară a  $^{239}\text{UO}_2^*(M = 271 \text{ kg}/\text{kmol})$ ;  $N_A$ - numărul Avogadro ( $N_A = 6,023 \cdot 10^{26}$  molecule izotopice/kmol). În flux neutronic termic variabil, datele pentru  $N^*, C^*, t$  sunt specificate conform tabel:

$\Phi(\text{n}^0/\text{m}^2 \cdot \text{s})$ :	$10^{18}$	$10^{19}$	$10^{20}$	$10^{21}$
$N^*(\text{nuclee}/\text{m}^3)$ :	$1,3172 \cdot 10^{22}$	$1,3172 \cdot 10^{23}$	$1,3172 \cdot 10^{24}$	$1,3172 \cdot 10^{25}$
$C^*(\text{kg}/\text{m}^3)$ :	0,005927	0,05927	0,5927	5,927
$t(\text{ore})$ :	6	6	6	6

Concentrația procentuală a izotopului par  $^{240}_{93}\text{Np}$  nefisionabil cu neutroni termici și format prin captura neutronică în  $^{239}_{93}\text{Np}$  cu secțiunea microscopică de absorbție  $\sigma_{39} = 60 \cdot 10^{-28} \text{m}^2$ , este 0,11% fiind neglijabilă. Ecuația cinetică diferențială pentru formarea izotopului intermediar  $^{239}_{93}\text{Np}$ :

$$dN_{39}/dt = (\lambda^* \cdot N^*) - (\lambda_{39} + \sigma_{39} \cdot \Phi) \cdot N_{39} = (\Sigma_{28} \cdot \Phi) - (\lambda_{39} + \sigma_{39} \cdot \Phi) \cdot N_{39};$$

$N_{39}$ - concentrația nucleelor izotopului intermediar  $^{239}_{93}\text{Np}(\text{nuclee}/\text{m}^3)$ ;

$\lambda_{39}$ - constanta de dezintegrare  $\beta$ -a nucleelor  $^{239}_{93}\text{Np}(\lambda_{39} = 3,5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1})$ .

Ecuația cinetică integrală pentru formarea  $^{239}_{93}\text{Np}$ :

$N_{39} = [(\Sigma_{28} \cdot \Phi)/(\lambda_{39} + \sigma_{39} \cdot \Phi)] \cdot \{1 - \exp[-(\lambda_{39} + \sigma_{39} \cdot \Phi) \cdot t]\}$ . Durata maximă de dezintegrare  $\beta$  și captura neutronică [ $t_d(\text{ore})$ ] a nucleelor  $^{239}_{93}\text{Np}$ , se determină conform ecuației dimensionale:  $t_d = [10/(\lambda_{39} + \sigma_{39} \cdot \Phi)]$ ;

Concentrația maximă de nuclee  $^{239}_{93}\text{Np}[N_{39}(\text{nuclee}/\text{m}^3)]$ :

$N_{39} = [(\Sigma_{28} \cdot \Phi)/(\lambda_{39} + \sigma_{39} \cdot \Phi)]$ . Concentrația maximă de masă a

$^{239}\text{NpO}_2[C_{39}(\text{kg}/\text{m}^3)]$ :  $C_{39} = [(N_{39} \cdot M)/N_A]$ ;  $M$  - masa molară a  $^{239}\text{NpO}_2$  ( $M = 271 \text{ kg}/\text{kmol}$ ). În flux neutronic termic variabil, datele pentru

$N_{39}, C_{39}, t_d$  sunt specificate conform tabel:

$\Phi(\text{n}^0/\text{m}^2 \cdot \text{s})$ :	$10^{18}$	$10^{19}$	$10^{20}$	$10^{21}$
$N_{39}(\text{nuclee}/\text{m}^3)$ :	$1,8785 \cdot 10^{24}$	$1,85 \cdot 10^{25}$	$1,6064 \cdot 10^{26}$	$6,9328 \cdot 10^{26}$
$C_{39}(\text{kg}/\text{m}^3)$ :	0,8452	8,324	72,278	311,9357
$t_d(\text{ore}/\text{zile})$ :	792/33	780/32,5	677,5/28	292/12

Amos

Ecuatia cinetică diferențială pentru obținerea izotopului fisil  $^{239}_{94}\text{Pu}$  prin dezintegrarea  $\beta$ -a nucleelor  $^{239}_{93}\text{Np}$ :  $dN_{49}/dt = \lambda_{39} \cdot N_{39}$ ;  
 $N_{49}$  - concentrația de nuclee fisile  $^{239}_{94}\text{Pu}$  (nuclee/m<sup>3</sup>). Ecuatia integrală:  
 $N_{49} = \lambda_{39} \cdot N_{39} \cdot t$  ; În lipsa fluxului neutronic termic prin staționarea combustibilului în afara reactorului CANDU prin extragere cu mașina MID și în condiția tehnologică  $N_{49} = N_{39}$  și  $C_{49} = C_{39}$ , durata maximă a dezintegrării  $\beta$  pentru nucleele izotopului  $^{239}_{93}\text{Np}$ , se determină conform ecuației dimensionale:  $t = (1/\lambda_{39}) \rightarrow t = 79,5$  ore [3,3 zile]. În flux neutronic termic variabil crescător, durata maximă totală [ $T_d$ (ore)] de dezintegrare  $\beta$ -scade. Viteza producerii izotopului fisil  $^{239}_{94}\text{Pu}$  [ $V_p$ (kg/m<sup>3</sup>.ora)] este crescătoare odată cu creșterea concentrației de masă [ $C_{49}$ (kg/m<sup>3</sup>)]. Datele sunt specificate conform tabel:

$\Phi$ (n <sup>0</sup> /m <sup>2</sup> .s):	10 <sup>18</sup>	10 <sup>19</sup>	10 <sup>20</sup>	10 <sup>21</sup>
$C_{49}$ (kg/m <sup>3</sup> ):	0,8452	8,324	72,278	311,9357
$T_d$ (ore):	871,5	859,5	757	371,5
$V_p$ (kg/m <sup>3</sup> .ora):	0,00097	0,0097	0,0955	0,8397

După durata totală de staționare, fasciculele de elemente combustibile  $^{238}\text{UO}_2$ -  $^{239}\text{PuO}_2$  se reîncarcă în reactor CANDU pentru producția energiei de fisiune sau se reprocesează radiochimic pentru separarea izotopică conform procedeelor și reactoarelor chimice cunoscute. În cazul neutronilor termici, constantele/datele nucleare pentru izotopul  $^{239}_{94}\text{Pu}$  sunt specificate conform tabel:

Secțiunea eficace microscopică de fisiune [ $\sigma_{f49}$ (m <sup>2</sup> ):	738.10 <sup>-28</sup>
Secțiunea eficace microscopică de absorbție [ $\sigma_{a49}$ (m <sup>2</sup> ):	1025.10 <sup>-28</sup>
Randament neutronic pe fisiune [ $v$ (n <sup>0</sup> rapizi/fisiune):	2,91
Randament neutronic pe absorbție [ $\eta$ (n <sup>0</sup> rapizi/n <sup>0</sup> abs.):	2,09

Prin aplicarea procedurii nuclear, se obțin următoarele avantaje:

- concentrațiile de masă ale dioxizilor izotopici  $^{233}\text{UO}_2$ ,  $^{239}\text{PuO}_2$  și vitezele producerii acestora sunt crescătoare în dependență directă cu creșterea fluxului neutronic în reactorul CANDU ;
- vitezele de producere ale izotopului fisil  $^{233}\text{U}$  sunt mai mari la fluxuri neutronice 10<sup>18</sup>.....10<sup>20</sup> n<sup>0</sup>/m<sup>2</sup>.s în comparație cu cele ale  $^{239}\text{Pu}$  ;
- viteza de producere a izotopului fisil  $^{239}\text{Pu}$  este maximă la flux neutronic maxim 10<sup>21</sup> n<sup>0</sup>/m<sup>2</sup>.s prin iradierea izotopului fertil  $^{238}\text{U}$

MTB



reprocesat din combustibilul CANDU uzat;  
- crearea unui inventar crescător de izotopi fisili  $^{233}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  prin  
conversia nucleară a izotopilor fertili  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  și producția de  
combustibili CANDU în cicluri avansate  $^{232}\text{ThO}_2$ -  $^{233}\text{UO}_2$  și  $^{238}\text{UO}_2$ -  $^{239}\text{PuO}_2$ .

Bibliografie:

Ioan Ursu. Fizica și tehnologia materialelor nucleare. Ed. Academiei R.S.R.  
București 1982. Pag. 24.....50, 120.....153.

\*\*\* STAS 6729/1-82. Fizica reactorilor nucleari.

*Am*

**REVENDICĂRI:**

1. Procedeu nuclear de obținere dioxid de uraniu 233 și dioxid de plutoniu 239, **caracterizat prin aceea că**, se iradiază dioxid de toriu 232 în flux neutronic termic  $10^{18} \dots 10^{21} n^0/m^2.s$  la o durată a iradierii 4,5....6,0 ore și după o durată totală de staționare în afara reactorului de 9990....1327 ore pentru dezintegrarea  $\beta^-$  a izotopului 233-protactiniu se obține dioxid de uraniu 233 la concentrații de masă 24,563....817,7 kg/m<sup>3</sup> și viteze de producere a izotopului fisil 233-uraniu 0,00346....0,6162 kg/m<sup>3</sup>.ora ;
2. Procedeu nuclear de obținere dioxid de uraniu 233 și dioxid de plutoniu 239, **caracterizat prin aceea că**, se iradiază dioxid de uraniu 238 în flux neutronic termic  $10^{18} \dots 10^{21} n^0/m^2.s$  la o durată a iradierii 6 ore și după o durată totală de staționare în afara reactorului de 871,5....371,5 ore pentru dezintegrarea  $\beta^-$  a izotopului 239-neptuniu, se obține dioxid de plutoniu 239 la concentrații de masa 0,8452....311,9357 kg/m<sup>3</sup> și viteze de producere a izotopului fisil 239-plutoniu 0,00097....0,8397 kg/m<sup>3</sup>.ora.

