ARTYKUŁY

# PRACA REAKTORA BADAWCZEGO MARIA W 2015 ROKU Research reactor MARIA operation in 2015

Andrzej Gołąb Mikołaj Tarchalski

Wysokostrumieniowy reaktor badawczy MARIA, eksploatowany w Narodowym Centrum Badań Jądrowych w Świerku, wykorzystywany jest do produkcji radioizotopów oraz do prowadzenia badań z wykorzystaniem wiązek neutronów wyprowadzanych z kanałow poziomych. W artykule opisano parametry techniczne reaktora i charakterystykę jego pracy w 2015 r.

The MARIA high-flux research reactor operated at the National Centre for Nuclear Research is used for targets irradiation and to run physical experiments using neutrons coming out from horizontal channels. The technical parameters of the reactor and characteristics of its operation in 2015 are described.

Słowa kluczowe: reaktor MARIA.

Key words: MARIA reactor.

Wysokostrumieniowy reaktor badawczy MARIA, eksploatowany w Narodowym Centrum Badań Jądrowych (NCBJ) w Świerku, wykorzystywany jest do produkcji izotopów promieniotwórczych dla potrzeb medycyny i przemysłu oraz do prowadzenia badań fizycznych. Podstawowe parametry reaktora są następujące:

- moc nominalna 30 MW
- strumień neutronów termicznych 4 · 10<sup>14</sup> n/cm<sup>2</sup>s
- moderator H<sub>2</sub>O, beryl
- reflektor grafit
- element paliwowy:
- materiał: krzemek uranu (U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>-Al) w dyspersji z aluminium (Al)
- wzbogacenie: 19,75%
- koszulka: aluminium (Al)
- kształt: 5 koncentrycznych rur
- długość: 1000 mm
- Na fot.1. przedstawiono widok basenu reaktora MARIA.

W roku 2015 reaktor przepracował 4776 godzin na mocy od 18 do 25 MW, co przedstawiono na załaczonym zestawieniu (rys.1). Eksploatacja reaktora dostosowana była w szczególności do zapotrzebowań na napromienianie płytek uranowych do produkcji molibdenu (Mo-99), dla firmy amerykańskiej "Mallinckrodt Pharmaceuticals" oraz do zapotrzebowania Ośrodka Radioizotopów POLATOM i Instytutu Chemii i Techniki Jądrowej na napromienianie materiałów tarczowych. Napromieniania dotyczyły głównie takich materiałów tarczowych, jak: dwutlenek telluru (do produkcji J-131), siarka (do produkcji P-32), chlorek potasu (do produkcji S-35), iryd, bromek potasu, związki samaru, lutet, iterb, lantan, miedź, kobalt, próbki materiałów alkalicznych, biologicznych i geologicznych. Całkowita aktywność napromienionych materiałów wyniosła ok. 1480 TBq oraz 104 TBq dla molibdenu (Mo-99). Wykaz napromienianych materiałów tarczowych w reaktorze MARIA, w postaci liczby załadowanych zasobników do rdzenia reaktora przedstawiono na załączonym zestawieniu (rys. 2). Widoczne na rysunku obniżenie produkcji w 2004 r. spowodowane było wyłączeniem reaktora z powodu braku paliwa jądrowego. Ponadto w 2015 r. prowadzono napromienianie minerałów, w czterech specjalnych stanowiskach, co wymagało stosowania "nietypowej" konfiguracji rdzenia reaktora z ośmioma blokami wodnymi zawierającymi filtr, modelujący widmo neutronów (rys. 3). Prowadzono również napromieniania igieł irydowych wykorzystywanych w brachyterapii.



Fot. 1. Widok basenu reaktora MARIA Photo. 1. View of MARIA reactor pool



Rys. 1. Zestawienie pracy reaktora MARIA w 2015 r.

Fig. 1. MARIA reactor operation diagram in 2015



**Rys. 2.** Wykaz napromienionych materiałów tarczowych w reaktorze MARIA od 1978 r. **Fig. 2.** Statistics of irradiation targets in MARIA reactor since 1978

Cały ubiegły rok kontynuowano komercyjne napromienianie płytek uranowych (o wzbogaceniu 98% w U-235) służących do produkcji molibdenu (Mo-99), który to izotop ulega przemianie w technet (Tc-99m), będący najbardziej powszechnym radiofarmaceutykiem stosowanym w diagnostyce medycznej. Napromienianie płytek prowadzone jest w tzw. kanałach molibdenowych, których konstrukcja jest identyczna jak kanałów paliwowych ale zamiast paliwa umieszczone są dwa zasobniki zawierające płytki uranowe. Napromienianie realizowane jest w dwóch gniazdach i-6 i f-7 rdzenia reaktora (rys.3) w czasie wydłużonych cykli pracy reaktora do 120 godz. na mocy ok. 25 MW.

Celem pracy reaktora MARIA w 2015 r. było również wykorzystywanie wiązek neutronów, wyprowadzonych przez kanały poziome reaktora do prac badawczych, prowadzonych przez Środowiskowe Laboratorium Neutrografii. Poniżej przedstawiono zakres prac badawczych prowadzonych na tych kanałach:

# Kanał poziomy H-3

(łączne wykorzystanie kanału: 900 godz. czyli 19% czasu pracy reaktora)

- Badanie efektu starzenia w próbkach mosiądzu i spiżu metodą nisko-kątowego rozpraszania neutronów (współpraca z Instytutem Archeologii Uniwersytetu Warszawskiego).
- Badanie rozmiarów ziaren i wydzieleń międzyziarnowych w stalach typu ODS.

#### Kanał poziomy H-4

 Testy układów mechanicznych i pobierania danych spektrometru.

# Kanał poziomy H-5

 Konserwacja i testy układów mechanicznych spektrometru.

## Kanał poziomy H-6

(łączne wykorzystanie kanału: 2550 godz. – 53% czasu pracy reaktora)

- Sprawdzanie temperaturowej zależności sieci krystalicznej stopu Mn-10%Ge.
- Badanie temperaturowej zależności uporządkowania bliskiego zasięgu w monokryształach Mn-Ni-Cu po wygrzaniu w temperaturze 1200°K, powolnym schłodzeniu do 1100°K i gwałtownym schłodzeniu do 300°K.

#### Kanał poziomy H-7

(łączne wykorzystanie kanału: 2600 godz. – 54% czasu pracy reaktora)

- Badanie relacji dyspersji fal spinowych w próbce Mn--7,5%Ge.
- Pomiary niesprężystego rozpraszania neutronów w otoczeniu punktu sieci odwrotnej (100) w próbce odniesienia stopu Mn-Ni-Cu.

#### Kanał poziomy H-8

(łączne wykorzystanie kanału: 510 godz. – 10% czasu pracy reaktora)

- Badanie procesu migracji oleju transformatorowego w izolacji papierowej.
- Badanie procesu podciągania kapilarnego wody przez mieszaniny piasku kwarcowego i granulowane zeolity symetryczne A, F9 i BCV100.
- Badanie obiektów historycznych m. in. fotografii i pochwy skórzanej (współpraca z Uniwersytetem Mikołaja Kopernika w Toruniu).
- Badanie urn grzebalnych ze stanowiska archeologicznego "Czerwony Dwór XXI" (współpraca z Instytutem Archeologii Uniwersytetu Warszawskiego).
- Badanie właściwości radiogramów neutronowych otrzymanych dla próbek blach aluminiowych poddanych działaniu roztworu CdCl<sub>2</sub>.

W roku ubiegłym zakończył się realizowany w latach 2013-2015 w ramach współpracy międzynarodowej Narodowego Centrum Badań Jądrowych z Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA) oraz Aix-Marseille University projekt GAMMA MAJOR. Celem projektu było określenie skuteczności francuskich kodów obliczeniowych, TRIPOLI4 oraz APOLLO2, wykorzystywanych do symulacji transportu neutronów i fotonów gamma. Dzięki temu projektowi strona polska mogła pozy-

skać wiedze i doświadczenie potrzebne do obliczeń oraz poszerzyć doświadczenie zwiazane z pomiarami grzania jądrowego w reaktorze. Strona francuska natomiast, realizując ten program, miała okazję uzyskać odpowiedź na pytanie dotyczące skuteczności kodów wykorzystywanych w obliczeniach dla reaktora Jules Horowitz. Ten nowoczesny reaktor badawczy jest w trakcie budowy we francuskim ośrodku Cadarache na południu Francji. Ze względu na dużą moc reaktora 70-100MW oraz wyjątkowo wysoką jej gęstość w rdzeniu – spodziewane jest także wysokie grzanie od fotonów gamma w obszarze instrumentów badawczych, umieszczonych dookoła rdzenia. Dotychczasowe programy (kody) obliczeniowe dotyczyły powielania, spowalniania i transportu neutronów w rdzeniu reaktora. Fotony gamma, ze względu na złożoność procesu tworzenia oraz transportu, były przeważnie pomijane w obliczeniach. Było to także związane z czasem obliczeń, który zwiększał się wielokrotnie jeśli było brane pod uwagę także promieniowanie gamma. Dziś dzięki rozwojowi technologii oraz wiedzy stało się to możliwe, a nawet wymagane ze względu na bezpieczeństwo (możliwość przegrzania i uszkodzenia instrumentów badawczych) oraz jakość prowadzonych projektów badawczych.



**Rys. 3.** Konfiguracja rdzenia reaktora MARIA w grudniu 2015 r. **Fig. 3.** MARIA reactor core configuration in December 2015

W reaktorze MARIA do tej pory nie były wykorzystywane francuskie kody (TRIPOLI4 i APOLLO2), konieczne stało się więc stworzenie od podstaw dwóch modeli obliczeniowych: pierwszego do symulacji transportu neutronów i fotonów gamma w rdzeniu oraz drugiego do obliczeń składu izotopowego w elementach paliwowych na różnym poziomie wypalenia. Model reaktora MARIA został stworzony z pełnym odzwierciedleniem jej geometrii - to znaczy że wszystkie płaszczyzny bloków, szczelin, elementów paliwowych, prętów regulacyjnych i kanałów do napromieniań mają zachowaną swoją geometrię oraz kąty nachylenia. Było to szczególnie skomplikowane ze względu na kształt rdzenia reaktora MARIA, który posiada kształt ściętego stożka. Cały model reaktora MARIA składa się z ponad 9 tys. komórek, 4 tys. Płaszczyzn oraz ponad 150 różnych materiałów. Każdy element paliwowy składa się z 15 warstw podzielonych w pionie na 5 poziomów uwzględniających wypalenie poszczególnych elementów paliwowych. Przykładowe wyniki obliczeń wykonanych kodem TRIPOLI4 pokazano na rys.4.

W celu określenia precyzji obliczeń zostały przeprowadzone dwa specjalne eksperymentalne cykle paliwowe w reaktorze MARIA we wrześniu 2014 r. oraz listopadzie 2015 r. Do pomiarów wykorzystano ponadprzeciętną ilość instrumentów pomiarowych w tym: kalorymetr Karolina, gamma-termometr, komorę jonizacyjną, detektory emisyjne (kolektrony) rodowy i wanadowy, detektory aktywacyjne oraz dwa francuskie kalorymetry w tym jeden o innowacyjnej konstrukcji. Podkreślić należy że kalorymetr Karolina został zaprojektowany i wykonany w całości w NCBJ przez zespół reaktora MARIA. Dzięki innowacyjnej metodzie kalibracyjnej możliwym stało się wyskalowanie kalorymetru przed włożeniem do rdzenia reaktora. Jak pokazały pomiary kalorymetr ten, mimo swej prostoty, potwierdził zbieżność pomiarów z wykorzystywanymi w wielu instalacjach jądrowych, gamma termometrem i francuskimi kalorymetrami.



**Rys.4.** Obliczony rozkład mocy w poszczególnych płytkach elementów paliwowych MR-5/485 za pomocą kodu TRIPOLI4 **Fig. 4.** Power distribution inside fuel element MR-5/485 plates, calculated by TRIPOLI4 code

Cały projekt został ukończony w 2015 r. Współpraca z francuskimi partnerami przyniosła korzyści, które przekroczyły pierwotne plany. Przeprowadzono dwie kampanie 32

pomiarowe, skonstruowano dwie niezależne instalacje pomiarowe, umieszczone w sześciu kanałach do napromieniań w rdzeniu reaktora i wykonano blisko 100 pojedynczych pomiarów, których analiza będzie mogła być wykorzystywana w następnych latach do badania efektywności obliczeń także innymi kodami obliczeniowymi. W ubiegłym roku eksploatowane było tylko paliwo typu MC-5, wyprodukowane przez francuską firmę AREVA. Jest to paliwo 5-cio rurowe, zawierające 485 g uranu o wzbogaceniu 19,75% w izotop U-235, a więc paliwo niskowzbogacone. Paliwo to jest bardzo dobrej jakości i dzięki temu możliwe jest głębsze jego wypalanie, przewyższające 50%, co zdecydowanie podnosi efektywność ekonomiczną eksploatacji reaktora.



Aktywność uwolnionych gazów szlachetnych [Bq]

**Rys. 5.** Roczne uwolnienia gazów szlachetnych z reaktora MARIA w ciągu ostatnich dziesięciu lat **Fig. 5.** Yearly noble gases emission from MARIA reactor in the last 10 years

Istotną zmianą przeprowadzoną w konfiguracji rdzenia reaktora było wycofanie z eksploatacji ruchomych elementów paliwowych (REP-ów) i zastąpienie ich elementami nieruchomymi, jak pozostałe elementy paliwowe. Zmiana ta podyktowana była niewykorzystywaniem RE-P-ów do realizacji długich cykli paliwowych jak było planowane przy konstrukcji reaktora, a stwarzały one sporo problemów eksploatacyjnych.

Poziomy uwolnień do atmosfery, przedstawione na rys. 5 i 6, wynosiły:

- emisja gazów szlachetnych (głównie Ar-41) 9,3·10<sup>12</sup> Bq, co stanowiło 0,9% limitu uwolnień,
- emisja jodów 3,2·10<sup>7</sup> Bq, co stanowiło 0,6% rocznego limitu uwolnień.

W 2015 r. 98 pracowników reaktora otrzymało dawkę mierzalną na całe ciało (Hp-10) zawierającą się w granicach 0,15-5,44 mSv, a 8 pracowników dawkę mierzalną na skórę (Hp-0,07) w granicach 1,25÷2,12 mSv, przy granicach dopuszczalnych wynoszących odpowiednio 20 i 500 mSv.

W czasie pracy reaktora wystąpiło w 2015 r. 8 krótkotrwałych przerw w pracy, przy czym w dwóch przypadkach istniała konieczność skrócenia cykli pracy. Wyłączenia te spowodowane były nieszczelnościami w układzie chłodzenia kanałów paliwowych. Na rys. 7 przedstawiono dwa parametry mówiące o dyspozycyjności reaktora MA-RIA na przestrzeni ostatnich 10 lat.

(1) stosunek liczby przepracowanych godzin do sumy liczby przepracowanych godzin i liczby godzin nie-

planowanych wyłączeń w 2015 r. (A<sub>1</sub>), wynosił 98%,

(2) stosunek liczby godzin pracy reaktora do liczby godzin w 2015 r.  $(A_2)$  wynosił 54,5%.

Istotną zmianą przeprowadzoną w roku ubiegłym w układach technologicznych reaktora, była modernizacja układu wentylacji reaktora, która polegała na zainstalowaniu przetwornic częstotliwości, na silnikach wentylatorów w układzie wentylacji wyciągowej i nawiewnej z pompowni reaktora, które umożliwiają płynną regulację przepływu powietrza przez wentylatory. Przetwornice te oraz wcześniej zainstalowane przetwornice na jednej parze wentylatorów w układzie wentylacji z hali reaktora, włączone zostały w układ automatycznej kontroli podciśnień w pomieszczeniach technologicznych reaktora. Dzięki temu, istnieje możliwość automatycznego dostosowywania wydatków przepływającego powietrza przez wentylator do zadanych wartości podciśnienia. Sposobność ta jest szczególnie istotna w sytuacjach awaryjnych uwolnień gazowych substancji promieniotwórczych do pomieszczeń technologicznych ponieważ, w takich stanach, nie można uwalniać dużych ilości skażonego powietrza do środowiska, a miałoby to miejsce przy pracy wentylatorów z pełnym przepływem. Zainstalowanie przetwornic daje możliwość automatycznej redukcji wydatków powietrza wyrzucanego do środowiska w sytuacjach awaryjnych, która inicjowana jest na skutek sygnałów dozymetrycznych wskazujących na przekroczenie dopuszczalnych granic skażeń powietrza usuwanego do środowiska.

W ramach upowszechniania wiedzy o atomistyce w 2015 r. reaktor MARIA zwiedziło ok. 5000 uczniów szkół średnich i studentów uczelni wyższych z terenu całej Polski. Dla niektórych grup studenckich z wyższych uczelni zorganizowano również ćwiczenia praktyczne z zakresu fizyki reaktorowej i ochrony przed promieniowaniem jonizującym.

4.00E+08 3,50E+08 3,00E+08 2.50E+08 2.00E+08 BAktywność 1,50E+08 1.00E+08 5,00E+07 0,00E+00 2006 2007 2010 2012 2013 2014 2015 2008 2005 2011

Aktywność uwolnionych jodów [Bq]

**Rys. 6.** Roczne uwolnienia jodów z reaktora MARIA w ciągu ostatnich dziesięciu lat **Fig. 6.** Yearly iodines emission from MARIA reactor in the last 10 years



**Rys. 7.** Roczne wskaźniki pracy reaktora MARIA od 2005 r. **Fig. 7.** Yearly factors of reactor MARIA operation since 2005

Podsumowując, należy stwierdzić, że praca reaktora w 2015 r. przebiegała bez większych zakłóceń, potwierdzając jego dobrą dyspozycyjność oraz bezpieczną eksploatację.

mgr inż. Andrzej Gołąb, mgr inż. Mikołaj Tarchalski, Narodowe Centrum Badań Jądrowych, Otwock-Świerk 33