МАТЕМАТИКА

УДК 621.039.546.8

DOI: 10.21779/2542-0321-2020-35-1-7–12

П.А. Зайченко

Моделирование нуклидного состава тепловыделяющей сборки после облучения в исследовательском реакторе

Димитровградский инженерно-технологический институт – филиал НИЯУ МИФИ; Россия, 433511, Ульяновская обл., г. Димитровград, ул. Куйбышева, 294; zaychenko.p.a@mail.ru

В статье представлены основные результаты решения задачи по моделированию нуклидного состава тепловыделяющей сборки (ТВС) после облучения в активной зоне исследовательского реактора. Описана практическая реализация расчетной модели на примере реальных характеристик тепловыделяющей сборки и нейтронно-физических характеристик действующего исследовательского реактора. Расчетное моделирование позволило определить перечень нуклидов облученной тепловыделяющей сборки. На основе анализа полученных данных проведена классификация нуклидов по типу распада и излучения, энергии и виду излучаемых частиц. На основе расчетов при необходимости возможно создание базы данных по тепловыделяющим сборкам с целью контроля отдельных нуклидов или их групп, общей активности в любой момент времени, оценки величины плотности потока нейтронного излучения, обусловленного накоплением в топливе при облучении младших актиноидов (нептуний, америций и др.).

Основное внимание в работах по моделированию или созданию программ расчета нуклидного состава тепловыделяющих сборок уделено ТВС промышленных реакторов типа ВВЭР, РБМК и БН. Анализ современных источников научно-технической информации показывает, что работы по определению активности облученных ТВС исследовательских реакторов ведутся менее активно по сравнению с исследованиями по моделированию нуклидного состава ТВС промышленных реакторов. Известные источники указывают на существующие программы расчета активности для конкретных типов тепловыделяющих сборок.

Реализованная в настоящей статье расчетная модель универсальна, поскольку она применима для любого типа тепловыделяющей сборки водоохлаждаемого исследовательского реактора. В совокупности это позволяет сделать вывод о том, что данная разработка обладает новизной.

Ключевые слова: *изотоп, ТВС, активность, излучение.*

Введение

Решение задачи по моделированию нуклидного состава тепловыделяющих сборок (ТВС) после облучения в исследовательском реакторе (ИР) позволяет оценить влияние различных нуклидов на общую активность, провести классификацию нуклидов в зависимости от периода полураспада, типа излучения и его интенсивности. В таком случае возможно отслеживание нуклидного состава каждой ТВС с момента загрузки в активную зону реактора и до ее переработки либо захоронения. На основе результатов моделирования возможно формирование и поддержание в актуальном состоянии базы данных характеристик ТВС, выгруженных из активной зоны исследовательского реактора.

Расчетная модель

Активность отработавшего ядерного топлива (ОЯТ), выгружаемого из активной зоны исследовательского реактора, зависит от [1]:

- используемого топливного цикла и состава свежего топлива;
- глубины выгорания;
- мощности, с которой работал реактор перед остановкой.

Перед началом моделирования необходимо проанализировать материальный состав тепловыделяющей сборки. Содержание нуклидов в «свежей» ТВС зависит в основном от обогащения и типа топлива: для дисперсионного топлива дополнительно необходимо учесть материал матрицы. Кроме того, нужна информация о сплавах [2], из которых изготовлены головка, хвостовик, кожух (при наличии) и оболочки твэлов тепловыделяющей сборки. Для этого формируется перечень всех сплавов, входящих в состав сборки, определяется масса каждого химического элемента. Затем по известному природному содержанию стабильных изотопов в химическом элементе и определенной на предыдущем шаге массе элемента рассчитывается масса каждого из изотопов. Каждый из химических элементов представлен либо одним стабильным изотопом (^{27}Al), либо, как в случае с железом, – целым комплексом изотопов: ^{54}Fe (5,84 %), ^{56}Fe (91,68 %), ^{57}Fe (2,17 %) и ^{58}Fe (0,31 %).

После формирования общего перечня нуклидов, входящих в состав «свежей» ТВС, необходимо определить плотность потока нейтронов в топливе в трех энергетических диапазонах – тепловом, промежуточном и быстром.

Моделирование превращения ядер при облучении ТВС в активной зоне реализовано в программе ChainSolver [3], которая позволяет учитывать не только время работы реактора на мощности, но и время остановки между кампаниями. При этом начальная цепочка превращений была оптимизирована – из нее убраны промежуточные короткоживущие изотопы с малым периодом полураспада, что проиллюстрировано на рис. 1.

Рис. 1. Фрагмент цепочки превращения ядер при облучении до (а) и после (б) оптимизации

Как видно из рис. 1, радиоактивный ^{90}Sr (период полураспада $T_{1/2} \sim 28,9$ лет) претерпевая β -распад, превращается в ^{90}Y (период полураспада $T_{1/2} \sim 64$ часа), который в процессе β -распада превращается в стабильный ^{90}Zr . Подобным образом проводится анализ всей моделируемой цепочки превращений. Затем в необходимые вкладки заносятся ранее определенные массы каждого изотопа, время работы реактора на определенном уровне мощности и длительность остановок.

Конечный результат формируется в отдельном Excel-файле, что значительно упрощает обработку и анализ данных в дальнейшем.

Результаты

В качестве примера реализации описанной расчетной схемы смоделированы условия облучения тепловыделяющей сборки, аналогом которой является ТВС ИРТ-3М [4]. Условия облучения смоделированы на основе открытой информации по реактору ИР-8 [5]. Представлять подробно результаты расчета (несколько сотен нуклидов и их характеристик) в рамках данной статьи нет необходимости. Для проведения анализа достаточно выделить группу нуклидов, имеющих наибольшие значения по двум критериям: активность и период полураспада. Суммарная активность нуклидов, представленных в табл. 1, составляет порядка 10^{16} Бк. Перечень нуклидов, удовлетворяющих описанным выше условиям, представлен в табл. 1.

Таблица 1. Характеристика нуклидов, вносящих ключевой вклад в общую активность облученной ТВС

Нуклид	Активность, Бк	Период полураспада, сутки	Энергия β -распада, кэВ	Энергия γ -кванта, кэВ (вероятность его появления, %)
Nb-95	$3,92 \cdot 10^{15}$	34,99	925,6	765,79 (100,00 %)
Ce-141	$2,85 \cdot 10^{15}$	32,50	580,7	145,44 (48,20 %)
Zr-95	$2,07 \cdot 10^{15}$	64,032	1124,8	756,73 (54,00 %)
Y-91	$1,98 \cdot 10^{15}$	58,51	1544,8	1204,77 (0,30 %)
Sr-89	$1,78 \cdot 10^{15}$	50,57	1495,1	908,96 (0,01 %)
Ru-103	$1,35 \cdot 10^{15}$	39,26	763,4	497,08 (90,90 %)
Ce-144	$4,84 \cdot 10^{14}$	284,90	318,7	133,51 (11,09 %)
Pm-147	$9,42 \cdot 10^{13}$	956,30	224,1	121,22 ($2,8 \cdot 10^{-3}$ %)
Ru-106	$2,82 \cdot 10^{13}$	373,59	39,4	–
Cs-137	$1,50 \cdot 10^{13}$	11010,96	1175,6	661,65 (85,10 %)
Sr-90	$1,46 \cdot 10^{13}$	10548,50	546,0	–
Cs-134	$8,59 \cdot 10^{12}$	751,90	2058,7	604,72 (99,62 %)
Kr-85	$2,77 \cdot 10^{12}$	3931,05	687,1	514,00 (0,43 %)
Sb-125	$1,21 \cdot 10^{12}$	1003,75	766,7	427,87 (30,00 %)

Наибольший интерес с точки зрения обращения с облученной ТВС представляют изотопы, подверженные β -распаду (с учетом сопутствующего γ -излучения). По этой причине в рамках данной работы они объединены в общую группу. Указанные в табл. 1 нуклиды вносят основной вклад в активность облученной ТВС, начиная с момента выгрузки в бассейн выдержки [6]. Стоит отметить, что указанное значение не является единственным: каждый из нуклидов может испускать до нескольких γ -квантов с определенной энергией и вероятностью его появления. Поэтому в крайний правый столбец табл. 1 внесено значение энергии γ -кванта, появление которого наиболее вероятно по сравнению с остальными γ -квантами, характерными для данного нуклида. Таким образом, все нуклиды из табл. 1 являются β -излучателями, в ходе распада которых также происходит сопутствующее γ -излучение. Исключением являются Sr-90 и Ru-106 – источники β -излучения [7, 8]. Средняя энергия γ -кванта в представленной выборке составляет ~ 478 кэВ.

Значительная опасность γ -излучающих нуклидов обусловлена высокой проникающей способностью данного вида излучения. Например, поток γ -квантов с энергией порядка 1 МэВ ослабляется слоем алюминия толщиной 6 см в $\sim 2,71$ раза [9]. Следовательно, с учетом характеристик рассмотренной ТВС γ -излучение будет незначительно ослабляться оболочкой и топливной матрицей.

При значительном сроке выдержки соотношение вклада в общую активность начинается изменяться: α -излучающие нуклиды, имеющие по сравнению с β -излучателями больший период полураспада, увеличивают свой вклад в общую активность. Суммарная активность α -излучающих нуклидов составила $4,10 \cdot 10^9$ Бк, что на 7 порядков меньше β - и сопутствующего ему γ -излучения.

В табл. 2 представлены характеристики α -излучающих нуклидов.

Таблица 2. Основные характеристики α -излучающих нуклидов

Нуклид	Активность, Бк	Период полураспада, лет	Энергия α -частиц, кэВ (вероятность ее выхода, %)
Pu-239	$1,91 \cdot 10^9$	$2,41 \cdot 10^4$	5156,6 (73,3 %) 5144,3 (15,1 %)
Pu-240	$1,07 \cdot 10^9$	$6,56 \cdot 10^3$	5123,7 (27,1 %) 5168,2 (72,8 %)
Pu-238	$8,93 \cdot 10^8$	87,70	5456,3 (28,9 %) 5499,0 (70,9 %)
U-236	$5,19 \cdot 10^7$	$2,34 \cdot 10^7$	4445,0 (25,9 %) 4494,0 (73,8 %)
U-235	$1,26 \cdot 10^7$	$7,04 \cdot 10^9$	4397,8 (55,0 %) 4366,1 (17,0 %)
U-238	$6,77 \cdot 10^6$	$4,47 \cdot 10^9$	4151,0 (20,9 %) 4198,0 (79,0 %)
Am-241	$1,86 \cdot 10^6$	432,2	5485,6 (84,5 %) 5442,8 (13,0 %)
Np-237	$1,03 \cdot 10^6$	$2,14 \cdot 10^6$	4788,0 (47,9 %) 4771,0 (25,0 %)
Pu-242	$1,44 \cdot 10^5$	$3,75 \cdot 10^5$	4856,2 (22,4 %) 4900,5 (77,5 %)
U-234	$1,27 \cdot 10^5$	$2,45 \cdot 10^5$	4722,4 (28,4 %) 4774,6 (71,4 %)

Нуклиды, подверженные α -распаду, отличаются большим периодом полураспада. Среди особенностей можно отметить их способность к спонтанному делению, в результате которого образуются осколки и несколько нейтронов. К примеру, 1 г ^{240}Pu за счет спонтанного деления создает поток нейтронов $0,92 \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$ [10]. С учетом реакции (α, n) это значение возрастает на $1,41 \cdot 10^2 \text{ с}^{-1}$ [11], а суммарное значение потока нейтронов на 1 г ^{240}Pu – до $1,06 \cdot 10^3 \text{ с}^{-1}$.

В связи с тем, что нейтрон за счет электрической нейтральности обладает большой проникающей способностью [12], может возникнуть необходимость проведения оценки величины потока нейтронов от облученной ТВС. В рамках данной работы это не было рассмотрено. Подробная оценка ожидаемого выхода нейтронов за счет (α, n) реакции представлена в [11].

Заключение

В работе представлены основные результаты моделирования нуклидного состава ТВС после облучения в исследовательском реакторе. Проведена оценка вклада различных нуклидов в общую активность тепловыделяющей сборки. Результаты моделирования могут послужить основой базы данных о нуклидном составе ТВС, что позволит оперативно проводить оценку величины β - и сопутствующего γ -излучения на требуемый момент времени после выгрузки.

Дальнейшее развитие модели предполагает:

- реализацию расчетной оценки ожидаемого выхода нейтронов за счет спонтанного деления и реакции (α, n);
- учет ослабления γ -излучения при прохождении им через топливо и оболочку как для ТВС со стержневыми ТВЭлами, так и для сборок с трубчатыми ТВЭлами.

Литература

1. Зайченко П.А., Малков А.П., Куприянов А.В. Анализ накопления радиоактивных веществ в облучённых тепловыделяющих сборках реактора СМ // Тезисы докладов. Всероссийская молодёжная конференция «Научные исследования и технологические разработки в обеспечение развития ядерных технологий нового поколения» / Акционерное общество «Государственный научный центр – НИИ атомных реакторов». – Димитровград, 2018. – 164 с.
2. Колосков М.М., Долбенко Е.Т., Каширский Ю.В. и др. Марочник сталей и сплавов. – М.: Машиностроение, 2001. – 672 с.
3. Radiation Safety Information Computational Center Newsletters [Электронный ресурс] // Oak Ridge National Laboratory. – 2013. – № 583. – Р. 1–2. Режим доступа: <https://rsicc.ornl.gov/Newsletters/news.13/news13december.pdf>
4. Юлдашев Б.С., Салихбаев У.С., Досимбаев А.А., Байтелесов С.А. Эксплуатация ВВР-СМ с диоксидурановым топливом 36%-ного обогащения // Атомная энергия. – 2005. – Т. 99, № 2. – С. 147–152.
5. Ковальчук М.В., Ильгисонис В.И., Штромбах Я.И., Курский А.С., Андреев Д.В. Развитие реакторной экспериментальной базы НИЦ «Курчатовский институт»: от пуска Ф-1 до 60-летия реактора ИР-8 // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика ядерных реакторов. – 2017. – № 3. – С. 4–17.
6. Дмитриев С.К., Аникин М.Н., Лебедев И.И., Колесова О.К. Разработка программного обеспечения для оценки активности и нуклидного состава ТВС типа ИРТ-3М во время хранения. // Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека: материалы V Международной конференции ФГАОУ ВО «Национальный исследовательский Томский политехнический университет» // РАН, Институт геологии и минералогии им. В.С. Соболева СО РАН, ФГУП «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами», ФГУП «Урангео» и др. ООО «СТТ». – Томск, 2016. – 808 с.
7. Ушаков В.И. Радиоактивные отходы. Технологические основы. – М.: Издательские решения, 2018. – 148 с.
8. Крышев И.И. Эколого-геофизические аспекты ядерных аварий. – М.: Гидрометеопиздат, Моск. отделение, 1992. – 215 с.
9. Изотопы: свойства, получение, применение: в 2 т. Т. 1 / под ред. В.Ю. Баранова. – М.: Физматлит, 2005. – 600 с.
10. Shultis J.K., Faw R.E. Fundamentals of Nuclear Science and Engineering. – N.Y.: CRC Press, 2016. – 660 p.

11. Райлли Д. Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов. – М.: Бинном, 2000. – 720 с.

12. Савельев И.В. Курс общей физики. Т. 3. Квантовая оптика. Атомная физика. Физика твердого тела. Физика атомного ядра и элементарных частиц. – СПб.; М.; Краснодар: Лань, 2008. – 406 с.

Поступила в редакцию 24 сентября 2019 г.

UDC 621.039.546.8

DOI: 10.21779/2542-0321-2020-35-1-7–12

Modeling the Nuclide Composition of Fuel Assemblies after Irradiation in a Research Reactor

P.A. Zaychenko

Dimitrovgrad Engineering and Technological Institute of the National Research Nuclear University MEPhI; Russia, Dimitrovgrad, Kuibyshev st., 294; zaychenko.p.a@mail.ru

The paper presents the main results of solving the problem of modeling the nuclide composition of the fuel assembly (FA) after irradiation in the research reactor core. The practical implementation of the calculation model is described on the example of the actual characteristics of the fuel assembly and the neutron-physical characteristics of the current research reactor. Numerical simulations made it possible to determine the list of nuclides of the irradiated fuel assembly. Based on the analysis of the data obtained, nuclides are classified according to the type of decay and radiation, energy and type of emitted particles. Based on the calculated data, if necessary, it is possible to create a database on fuel assemblies in order to control individual nuclides or their groups, total activity at any time, estimate the neutron flux density, caused by the accumulation of minor actinides in the fuel during irradiation (neptunium, americium, etc.).

The main attention in modeling or developing programs for calculating the nuclide composition of fuel assemblies was given to fuel assemblies of industrial reactors such as WWER, RBMK and BN. The analysis of modern scientific and technical information sources shows that the work on determining the activity of irradiated fuel assemblies in research reactors is less active compared with the studies on modeling the nuclide composition of fuel assemblies in industrial reactors. Well-known sources point to the existing programs for calculating activity for specific types of fuel assemblies.

The calculation model implemented in this article is universal because it is applicable to any type of fuel assembly of a water-cooled research reactor. In aggregate, it confirms the novelty of study.

Keywords: *isotope, fuel assembly, activity, radiation.*

Received 24 September 2019