

## РАСЧЕТНЫЙ АНАЛИЗ АКТИВАЦИИ ОБОЛОЧКИ ТВЭЛА РЕАКТОРА ТИПА ВВЭР

**А.В. Корзунин\*, С.А. Субботин\*\***

*\*Обнинский государственный технический университет атомной энергетики,  
г. Обнинск*

*\*\*РНИЦ «Курчатовский институт», г. Москва*



Оценено изменение удельной активности оболочки твэла реактора типа ВВЭР. Проведен анализ вклада отдельных изотопов, в том числе рассматривая их как продукты активации изотопов химических элементов изначально входящих в состав сплава. Предложено обоснование возможного использования облученного и выдержанного впоследствии сплава для создания оболочек твэлов с использованием МОХ-топлива.

### ВВЕДЕНИЕ

Реализация концепции устойчивого развития человечества заключается в обеспечении сбалансированного подхода к четырем измерениям устойчивого развития: экономическому, экологическому, социальному и институциональному [1]. При рассмотрении вопросов соответствия ядерной энергетики (ЯЭ) требованиям устойчивого развития одним из основных моментов является изучение материального баланса в ЯЭ в рамках этой концепции. Важной составляющей материального баланса являются конструкционные материалы. Измерения экологии и экономики могут предъявить значимые требования к использованию такого рода материалов в энергетике будущего.

Наиболее распространенный тип реактора из эксплуатируемых на настоящий момент это реактор типа PWR или ВВЭР. На конец 90-х годов 20 века, в структуре цены ТВС ВВЭР-1000, сборка ТВС составляла 46.2%. В себестоимости сборки ТВС, 26.3% затрат шло на материалы, в том числе на сплав циркония с ниобием [2, с. 242], который является основным конструкционным материалом активной зоны реакторов этого типа. Рано или поздно, в случае широкого использования этого материала в активных зонах ядерных реакторов может возникнуть проблема ограниченности ресурса для его использования в различных сферах человеческой деятельности. Возникает вопрос о возможности возврата этого конструкционного материала в производство энергии в целях

- недопущения накопления большого количества радиоактивного сплава, не подходящего к использованию в других сферах человеческой деятельности;
- возможного уменьшения экономических затрат на производство конструкционных материалов;
- уменьшения экономических затрат и экологического риска, связанных с хранением материалов.

Основной проблемой для возврата этого материала в цикл является потенциальная необходимость использования более сложных технологий для работы с ним, чем для работы с материалом, полученным обычным способом. Эта сложность и необходимость вообще зависит от радиоактивных свойств этого материала.

Большое значение имеет устранение причин увеличения радиоактивности материала.

Целью исследования являлся изотопный анализ характеристик радиоактивности этого материала в зависимости от времени. Проведены ядерно-физические расчеты изменения изотопного состава оболочки. Сделано сравнение радиоактивности оболочки твэла и частного случая свежего МОХ-топлива. По результатам расчетов были сделаны рекомендации по составу сплава, возможности рециклирования.

### ОБЪЕКТ ИССЛЕДОВАНИЯ

Для исследования был выбран сплав Э-110, из которого изготовлены оболочки твэлов реактора ВВЭР-1000. Используемые характеристики этого реактора представлены в табл. 1, 2.

Таблица 1

#### Используемые характеристики реактора ВВЭР-1000

Тепловая мощность реактора, МВт	3125
Обогащение топлива, принятое для расчетов, %	3.3
Загрузка реактора топливом ( $UO_2$ ), кг	75000

Таблица 2

#### Химический состав исследуемого сплава

Материал	Содержание примесных и легирующих элементов, % (масс.)						
	Sn	Fe	Cr	O	C	Si	N
Zr-1% Nb (Э-110)	0.05	0.05	0.02	0.06	0.075	0.075	0.0045

### МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Для изменения изотопного состава имеют значение процессы радиоактивного распада и ядерных взаимодействий. При расчете радиоактивных распадов применительно к данному исследованию требуется большая библиотека характеристик изотопов. Что касается расчета ядерных взаимодействий, то здесь, кроме характеристик библиотеки важна также применимость расчета скорости реакций для задач такого рода.

Для проведения расчета изменения изотопного состава и расчета активности исследуемого сплава использовалась программа ORIGEN2.2 [3]. Эта программа широко используется и совершенствуется с 70-х годов 20 века. В программе методом матричной экспоненты решается система обыкновенных неоднородных дифференциальных уравнений первого порядка, описывающая изменение количества изотопов во времени. Используемая библиотека содержит данные по более чем 1700 изотопам, взятым из ENDF/B и ENSDF. Сечения реакций актинидов пересчитываются в зависимости от среднего выгорания ядерного материала на

каждый временной шаг. При заданной мощности программой рассчитывается усредненный поток по всему времени выгорания, причем выход энергии при делении рассчитывается как функция атомного номера и атомной массы ядра. Разработчиками предоставлен большой выбор баз данных по сечениям в зависимости от типа реактора.

Для классификации облученного материала использовались «Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности» (ОСПОРБ-99) [4]. Согласно этому документу, бета-излучающие отходы относятся к низкоактивным, если их удельная активность менее  $10^3$  кБк/кг, к среднеактивным, если эта величина находится от  $10^3$  до  $10^7$  кБк/кг, и к высокоактивным, если выше  $10^7$  кБк/кг. Исходя из состава оболочки (легкие ядра), следует ожидать, что продукты активации будут именно бета-излучающими. Не вводятся никаких ограничений на использование в хозяйственной деятельности любых твердых материалов, сырья и изделий при удельной активности радионуклидов в них менее 0.3 кБк/кг.

### ОПИСАНИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

Проведенный расчет удельной активности материала оболочки твэла показал (рис. 1), что во время и сразу после 3 лет облучения этот материал может быть отнесен к высокоактивным отходам (период I) [4]. Далее, после 7 лет выдержки (период II), он становится среднеактивным, и эта активность остается в пределах того же порядка, в течение не менее 100 лет (период III).

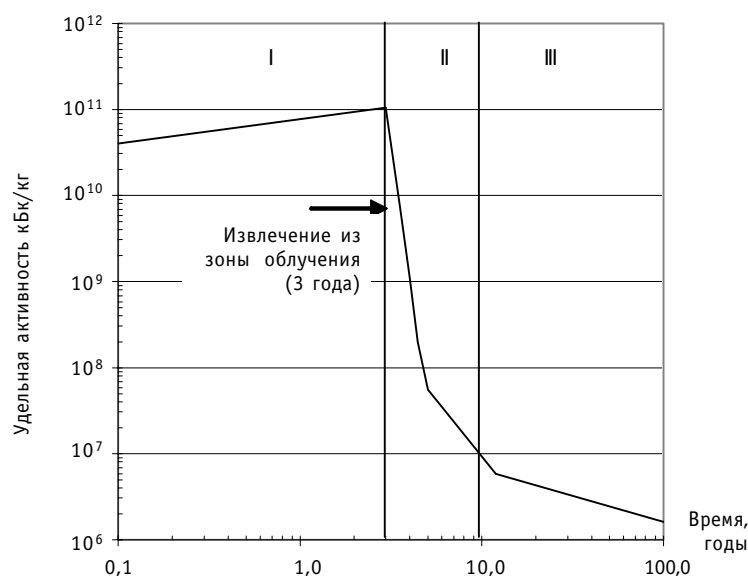


Рис. 1. Изменение удельной активности материала оболочки твэла в период облучения и во время выдержки

На протяжении всего рассматриваемого интервала активность определяется следующими изотопами:  $^{14}\text{C}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{90}\text{Y}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{97}\text{Zr}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{95\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{97}\text{Nb}$ ,  $^{97\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{113\text{m}}\text{In}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{119\text{m}}\text{Sn}$ ,  $^{121\text{m}}\text{Sn}$ ,  $^{123}\text{Sn}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{125\text{m}}\text{Te}$ . Но, если рассмотреть периоды, выделенные на рис. 1, то на каждом из них только часть из этих изотопов является определяющей. В период выгорания удельная активность определяется изотопами  $^{95}\text{Nb}$  ( $\sim 10^{10}$  кБк/кг),  $^{95}\text{Zr}$  ( $\sim 10^{10}$  кБк/кг),  $^{97}\text{Zr}$  ( $\sim 10^{10}$  кБк/кг). В период II можно исключить из рассмотрения  $^{14}\text{C}$  ( $\sim 10^4$  кБк/кг),  $^{60}\text{Co}$  ( $\sim 10^4$  кБк/кг),  $^{93}\text{Zr}$  ( $\sim 10^4$  кБк/кг),  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  ( $\sim 10^3$ - $10^4$  кБк/кг), и  $^{121\text{m}}\text{Sn}$  ( $\sim 10^3$  кБк/кг). На этапе III, до

~20 лет выдержки, активность определяется всеми указанными изотопами, а затем преобладающую роль начинает играть  $^{94}\text{Nb}$  ( $\sim 10^6$  кБк/кг), некоторый вклад дают изотопы  $^{14}\text{C}$  ( $\sim 10^4$  кБк/кг),  $^{93}\text{Zr}$  ( $\sim 10^4$  кБк/кг) и  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  ( $\sim 10^4$  кБк/кг), активность последнего растет на всем рассматриваемом интервале.

Из всех элементов, указанных в табл. 2, наибольший вклад, наработку активных изотопов вносят Sn, Fe и N. Вклад продуктов активации Sn и Fe в общую удельную активность меньше 0.2% во время облучения и во времена порядка 100 лет с начала выдержки, но в первые 10 лет выдержки они имеют определяющее значение (рис. 2). Продукты активации N не являются определяющими на рассматриваемом интервале, но уже после 7 лет выдержки их вклад в активность приблизительно равен вкладу в активность продуктов активации Zr, и это положение сохраняется на всем оставшемся интервале.

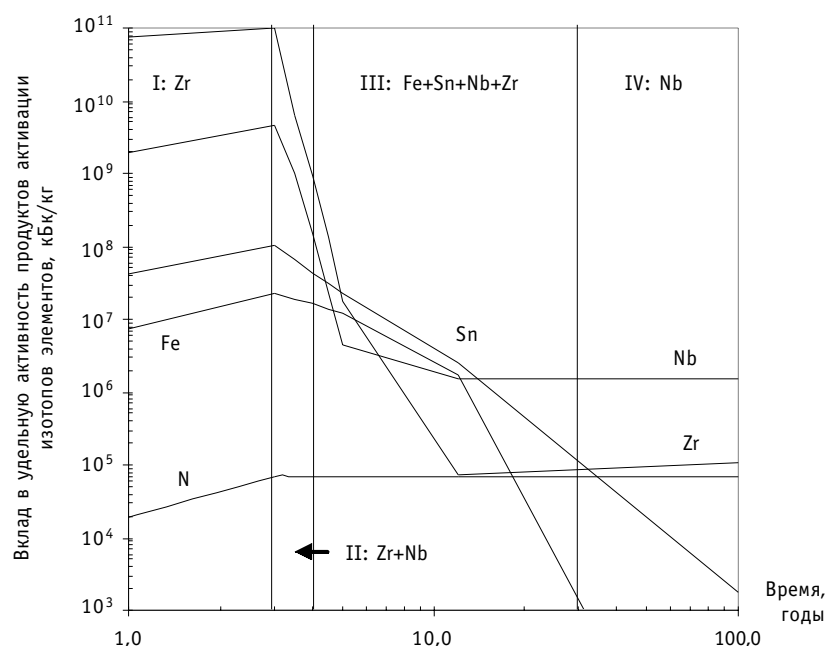


Рис. 2. Изменение вклада в суммарную удельную активность от продуктов активации изотопов различных химических элементов

Одной из известных топливных композиций является MOX-топливо. Вариант такой композиции представлен в табл. 3. Изготовление этого топлива требует специальных условий, что и показал расчет по программе ORIGEN2.2. Удельная активность непосредственно этой композиции равна  $5.8 \cdot 10^{10}$  кБк/кг, а после ее 5-летней выдержки удельная активность спадает лишь до  $4.6 \cdot 10^{10}$  кБк/кг. Можно ожидать, что ограничения на работу с таким материалом будут гораздо серьезнее, чем ограничения на работу с исследуемым сплавом, выдержанным в течение 8 лет до удельной активности  $\sim 10^6$  кБк/кг (рис.1).

Таблица 3

#### Состав исследуемого MOX-топлива

Содержание изотопов, %							
$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
0.6	86.1	0.5	5.6	4.1	1.4	1.5	0.2

## ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Высокая ( $\sim 10^{11}$  кБк/кг) удельная активность облученной оболочки спадает до величин порядка  $10^6$  кБк/кг за 7 лет. Дальнейшая выдержка не дает уменьшения порядка величины удельной активности. Решающий вклад в активность при хранении более 20-ти лет дает Nb. В то же время активность Zr в течение всего временного интервала столь высока, что даже без примесей он не может быть отнесен к низкоактивным отходам. Несмотря на то, что продукты активации Fe и Sn вносят основной вклад в активность в первые 10 лет выдержки, порядок величины этого вклада и вклада продуктов активации Nb на этом интервале равны. Содержание N в сплаве таково, что вклад в активность  $^{14}\text{C}$  не имеет определяющего значения на рассматриваемом интервале, но при длительной выдержке этот вклад приблизительно равен вкладу изотопов Zr. Удельная активность МОХ-топлива, даже выдержанного в течение 5 лет, примерно в 10000 раз выше удельной активности исследуемого материала 8-летней выдержки.

## ВЫВОДЫ

Радиоактивность, приобретаемая исследуемым сплавом в результате облучения, такова, что даже при долговременной ( $\sim 100$  лет) выдержке он не может быть использован в хозяйственной деятельности без ограничений. Это относится и к Zr, очищенному от остальных химических элементов.

Снижение содержания Fe и Sn в изготавливаемом сплаве снизит удельную активность сплава в первые 20 лет после облучения, но не окажет существенного влияния на ее порядок.

Отделение Nb после облучения приведет к снижению удельной активности на порядок после 20–30 лет выдержки.

Если руководствоваться радиоактивностью, то ограничения на работу с МОХ-топливом должны быть гораздо существеннее, чем на работу с исследуемым сплавом более чем полуторалетней выдержки. Исходя из этого, к рассмотрению предлагается использование такого облученного и выдержанного сплава для изготовления оболочек твэлов для этого топлива.

## Литература

1. Methodology for the Assessment of Innovative Nuclear Reactors and Fuel Cycles (Report of Phase 1B (first part) of the International Project on Innovative Nuclear Reactors and Fuel Cycles (INPRO)): IAEA TECDOC-1434, 2004.
2. Лебедев В.М. Ядерный топливный цикл: технологии, безопасность, экономика. – М.: Энергоатомиздат, 2005. – 316 с.: ил.
3. Croff A. G. ORIGEN2: A Versatile Computer Code for Calculating the Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials//Nuclear Technology. – 1983. – 62. – С. 335–351.
4. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ): 2.6.1. Ионизирующее излучение, радиационная безопасность СП 2.6.1. 799-99 – М.: Минздрав России, 2000. – 98 с.

Поступила в редакцию 02.06.2006

#### **УДК 621.039.53**

*Calculated Analysis of WWER Type Fuel Cladding* \A.V. Korzunin, S.A. Subbotin; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2006. – 5 pages, 2 illustrations, 3 tables. – References – 4 titles.

Change of specific radioactivity of WWER reactor type fuel cladding was estimated. Analysis of the contribution of nuclides was performed. This analysis includes consideration them as activation products of the nuclides of the initial chemical elements. Substantiation of re-use of this cladding(alloy) as MOX-fuel cladding was proposed.

#### **УДК 539.125.523.348**

*Modeling of the Multiparticle Preequilibrium Nucleon Emission* \J.M. Martirosyan; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2006. – 6 pages, 3 illustrations. – References – 4 titles.

New exciton model of preequilibrium decay (MCP), that allows to compute the spectra of multiparticle emission during the establishment of statistical equilibrium, is proposed. Testing of the offered model in comparison with results of calculations on the basis of classical exciton model for the one preequilibrium nucleons – neutron and/or proton is executed. Reliability of multiparticle preequilibrium emission spectra is qualitatively estimated.

#### **УДК 539.125**

*Calculation of Multiparticle Preequilibrium Emission Spectra* \J.M. Martirosyan; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2006. – 6 pages, 4 illustrations. – References – 17 titles.

Systematic comparison of the results of calculations on the basis of exciton model of multiparticle preequilibrium decay with the experimental spectra of nucleons from (p, xn), (p, xp), (n, xn) and (n, xp) reactions in a wide projectile energy region from 10 up to 60 MeV for targets from <sup>27</sup>Al up to <sup>209</sup>Bi was carried out.

#### **УДК 621.039.52**

*Comparison of Ball-Poured Core with Pin-Holder Core of the Sodium-Cooled Fast Reactor* \G.B. Usynin, A.A. Kravchenko; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2006. – 9 pages, 3 illustrations, 2 tables. – References – 7 titles.

The ball-poured located in a tank and supported by hydrodynamic force of the coolant at a level of the top abutment lattice is considered. Simplicity of the design and small size of the fuel element allow to reprocess it immediately after extraction from the core at the nuclear plant size. Layer thickness, fuel composition and the design of the fuel element are defined by the following factors: maintenance of the criticality, required level of power, necessity of breeding. The ball-poured core with traditional pin-holder core are compared.

#### **УДК 621.039.56**

*The System of Monitoring of the Under-Critical Condition of the Industrial Uranium-Graphite Reactor: the Results of Tests* \V.V. Shidlovskiy, P.M. Gavrilov, A.A. Thiganov, A.G. Kohomskij, V.B. Chukanov, M.V. Antonenko, I.V. Shamanin, V.N. Nesterov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2006. – 7 pages, 7 illustrations. – References – 2 titles.

The description of the system of monitoring of the under-critical condition of the Industrial Uranium-Graphite Reactor (PUGR) and modes of its operation are listed. The technique of check of pulse channels and definitions of their operational factors are stated. The fast power factor of reactivity was estimated. As a result of carrying out the experiments on dump of rods in under-critical condition of reactor parameters of translation of a reactor into under-critical condition have been estimated. The plan of carrying out the minimization of influence of spatial effects and increase of accuracy of definition of parameters of this fast process were offered and realized.