

ИССЛЕДОВАНИЕ МЕТОДОВ ОБОСНОВАНИЯ ЯДЕРНОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ПРИ ОБРАЩЕНИИ С РАДИОАКТИВНЫМИ ОТХОДАМИ, СОДЕРЖАЩИМИ ЯДЕРНЫЕ МАТЕРИАЛЫ

С.С. Кречетов, В.С. Внуков

ГНЦ РФ – Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского, г. Обнинск



Исследованы методы расчета ядерной безопасности при обращении с отходами, содержащими ядерные материалы. Проведены расчеты безопасного удельного содержания, безопасной поверхностной плотности, используемых при анализе ядерной безопасности отходов. Рассмотрены различные смеси отходов, содержащих воду, графит, бериллий, оксид кремния и другие, с ураном высокого обогащения. Приведены рекомендации по нормативным параметрам при обращении с отходами.

Безопасное обращение с радиоактивными отходами является актуальной проблемой ядерной энергетики. По данной проблеме исследуются и обсуждаются разные способы обращения с отходами и их воздействия на окружающую среду.

Отходы образуются при добыче урана и получении уранового концентрата, изотопного обогащения, изготовлении ядерного топлива, конверсии оксидов урана в гексафторид урана, переработке радионуклидов, образующихся в активной зоне АЭС в результате нейтронного захвата и деления тяжелых нуклидов ядерного топлива, а также вследствие активации нейтронами некоторых нуклидов, входящих в состав замедлителя, теплоносителя и конструкционных материалов.

Вопросам ядерной безопасности при обращении с отходами не уделялось достаточного внимания ввиду малой концентрации урана или плутония в отходах. Однако при определенном стечении обстоятельств, например, при увеличении концентрации урана или плутония в процессе хранения или кондиционирования, а также при отсутствии контроля ядерных материалов в оборудовании, отходы могут представлять собой угрозу ввиду возможности образования самоподдерживающейся цепной реакции деления (СЦР). Поэтому необходимо рассмотреть условия, при которых в процессе обращения с отходами, содержащими малое количество делящихся материалов в виде урана и плутония, может возникнуть СЦР. Необходимо провести исследования влияния на $K_{эф}$ состава отходов, влажности, распределения делящихся материалов, типа контейнеров, способов переработки, плотности, обогащения и т.д.

В рассмотрение включаются типичные отходы заводов топливного цикла, из которых по технико-экономическим соображениям не имеет смысла извлекать делящиеся материалы, предприятия, где хранят, захоранивают, битумируют, цементируют, остекло-

ывают отходы, в том числе и содержащие делящиеся материалы. К ним можно отнести жидкие отходы с концентрацией урана-235 1-5 мг/л, сбрасываемые в хвостохранилища или конденсируемые, а также низко и среднеактивные твердые отходы с делящимися материалами в виде нерастворимых осадков, резины, графита, керамики печей, полиэтиленовых изделий и т.д.

При низком удельном содержании делящихся материалов в отходах объемы захораниваемых отходов составляют тысячи кубометров в отдельных местах, а суммарное количество делящихся материалов – десятки, сотни, тысячи килограммов, что не исключает возможности возникновения СЦР. Процессы, происходящие с отходами, являются индивидуальными для каждого места захоронения, зависят от типа отходов (жидкие, твердые), ряда химических и физических процессов и требуют исследований в каждом конкретном случае. Кроме того, ввиду многообразия видов отходов и неопределенности их состава трудно точно определить состав смесей для анализа ядерной безопасности.

Хранилища отходов можно разбить на следующие типы.

1. Хранилища жидких отходов. Примерами таких хранилищ являются хранилище отходов в Хэнфорде, наливные хранилища жидких отходов на высокоактивных заводах топливного цикла, хранилища жидких отходов, которые закачиваются на большие глубины (ГХК, СХК, НИИАР), и другие. Решение вопросов ядерной безопасности жидких РАО для отдельных хранилищ описано в работах [1-5]. Ядерная безопасность в них обеспечивается ограничением концентрации ДМ в сливаемых растворах, концентрацией ДМ в осадках. Например, при анализе ядерной безопасности емкостей с жидкими высокоактивными отходами в Хэнфорде параметром безопасности была выбрана концентрация плутония. Важным вопросом является также выбор состава отходов, который обеспечивает консервативные оценки.

2. Хранилище твердых отходов. В настоящее время современным способом обращения с твердыми отходами является их хранение в бочках. Решение вопросов ядерной безопасности хранилищ РАО в бочках изложено в [4, 6-8]. При обращении с отходами важно знать численные значения безопасных параметров ядерной безопасности. Так захоронение жидких отходов под землю на опытно-промышленном полигоне в НИИАР удовлетворяет требованиям ядерной безопасности при суммарной концентрации нуклидов плутония, урана-235, америция, кюрия не более 0,01 мг/л. Это значение определяется технологией обращения с отходами. Для твердых отходов параметром ядерной безопасности, который часто используется, является удельное содержание граммов ДМ на килограмм отходов.

Очевидно количественные критерии ядерной безопасности изменяются в широких пределах.

В целом для обеспечения ядерной безопасности необходимо решение следующих задач:

- развитие методов расчетов коэффициентов размножения систем, содержащих малые концентрации делящихся материалов в смесях с различными нуклидами, входящими в состав отходов, верификация методов расчета;
- разработка ограничительных пределов и параметров ядерной безопасности для отходов;
- построение физических и математических моделей для расчета последствий проектных и запроектных аварий в могильниках и хранилищах отходов;
- разработка рекомендаций для создания правил ядерной безопасности при обращении с отходами.

В настоящей работе рассмотрены вопросы, связанные с определением погрешностей методов расчета $K_{эф}$, которые используются при анализе ядерной безопасности

хранилищ с отходами.

В качестве тестируемой программы выбрана программа ММКФК-2 [9], широко используемая для анализа ядерной безопасности предприятий топливного цикла. Программа ММКФК-2 верифицирована в достаточно широкой области отношений объемов замедлителя и делящегося материала, однако для очень низких значений концентраций делящихся материалов в смеси с материалами, входящими в состав отходов, погрешность расчетов не известна из-за отсутствия критических экспериментов в этой области.

Поэтому на данном этапе единственной возможностью определения погрешностей расчета является сравнение расчетов по другой независимой апробированной программе. В качестве такой программы выбрана программа SCALE 4.4a [10].

Комплекс программ ММКФК-2 предназначен для решения методом Монте-Карло в многогрупповом приближении стационарного (прямого и сопряженного), а также нестационарного и квазистационарного уравнений переноса нейтронов и гамма-квантов в сложных трехмерных геометриях. В комплексе программ ММКФК-2 перенос нейтронов в эпитепловой (или во всей) области энергии смоделирован в подгрупповом приближении по программе МКРА с использованием 26-групповой библиотеки констант БНАБ-78,85. Термализация при $E < 1 \text{ эВ}$ моделировалась в 40-групповом приближении с использованием физического модуля МОФИТГ и библиотеки констант ТЕПКОН-90. Среди геометрических модулей, входящих в комплекс программ ММКФК-2, использовались модули HRAN-2 и PRSAZ.

Программный комплекс SCALE 4.4a разработан Оак-Риджской лабораторией для анализа критичности, защиты и теплопередачи ядерного оборудования и различных типов упаковок. В программе SCALE 4.4a для проведения расчетов на критичность были использованы управляющие модули CSAS1X, CSAS26, включающие в себя модули XSDRNP и KENO V. В расчетах использованы 27-групповая библиотека нейтронных сечений ENDF/B-IV и 44-, 238-групповые библиотеки нейтронных сечений ENDF/B-V.

В качестве исследуемых количественных критериев ядерной безопасности выбраны безопасная концентрация урана (г/л) для жидких отходов, удельное содержание урана (г/кг), которое используется в анализах ядерной безопасности больших трехмерных хранилищ или могильников твердых отходов, а также безопасная поверхностная плотность урана (г/см²) в хранилищах твердых отходов, где длина и ширина хранилища много больше толщины (высоты).

В целях консервативности рассматривалось обогащение урана, равное 100% по урану-235. Расчеты проводились для смесей урана с хорошо известными замедлителями нейтронов, которые могут входить в состав отходов: водой, графитом, бериллием. Кроме того, рассматривались смеси урана с рассеивателями нейтронов, выбранными по следующим признакам: малое сечение поглощения в тепловой части спектра нейтронов; наиболее часто встречающиеся в составе отходов. В качестве таковых выбраны Pb, SiO₂, MgF₂. Для определения безопасных концентраций и удельных содержаний урана, при которых $K_{\infty} \leq 0.95$, расчеты проводились для бесконечной гомогенной системы, в которой равномерно расположен уран. Расчеты проводились для цилиндрической ячейки произвольно выбранных размеров.

При расчетах концентраций принимались следующие значения плотностей материалов: воды – 1 г/см³, графита – 1.65 г/см³, бериллия – 1.85 г/см³, свинца – 11.3 г/см³, MgF₂ – 1.6 г/см³, SiO₂ – 1.6 г/см³ (значения плотности для MgF₂ и SiO₂ соответствуют 60% теоретической плотности; это обусловлено тем, что в природе данные материалы редко встречаются с плотностью, соответствующей теоретической).

В табл. 1 приведены полученные результаты расчетов по определению безопасной концентрации или удельного содержания урана в смесях.

Таблица 1

Сравнительные результаты расчетов по определению безопасной концентрации урана-235 по программам SCALE 4.4a и ММКФК-2

Состав смеси	$C_U \cdot 10^{-3}$, г/см ³	K_{∞} , ММКФК-2	K_{∞} , SCALE 4.4a			$ \sigma $, %		
			27 групп	44 групп	238 групп	27	44	238
²³⁵ U+H ₂ O	11.050	0.9498	0.9470	0.9497	0.9505	0.30	0.01	0.08
²³⁵ U+C	0.1395	0.9499	0.9486	0.9557	0.9551	0.14	0.61	0.55
²³⁵ U+Be	0.504	0.9500	0.9288	0.9444	0.9451	2.23	0.59	0.52
²³⁵ U+Pb	4.200	0.9473	0.9262	0.8848	0.9068	2.23	6.60	4.28
²³⁵ U+SiO ₂	1.354	0.9489	0.9338	0.9278	0.9303	1.59	2.22	1.96
²³⁵ U+MgF ₂	0.682	0.9495	0.9401	0.9568	0.9579	0.99	1.09	0.89

Примечание. C_U – концентрация урана-235, г/см³; σ - $((K_{\infty}^{\text{ММКФК-2}} - K_{\infty}^{\text{SCALE}}) / K_{\infty}^{\text{ММКФК-2}}) \times 100$, %.

Для определения безопасной поверхностной плотности расчеты проводились для бесконечной одномерной пластины с метровым бетонным отражателем снизу и сверху. Выбор бетона обусловлен тем, что стены хранилища, как правило, выполнены из бетона и отражающая способность (альбедо) бетона выше, чем у воды или земли.

Расчеты по определению безопасной поверхностной плотности проводились следующим образом: для определенной концентрации урана-235 определялась толщина пластины, при которой K_{∞} системы равнялось 0.95. Исходя из данной толщины пластины определялась поверхностная плотность при данной концентрации урана. Данная процедура проводилась до тех пор, пока не набиралось достаточное количество точек для построения зависимости безопасной поверхностной плотности от концентрации урана-235.

На рис.1-4 приложения приведены результаты расчетов безопасной поверхностной плотности для различных смесей.

В табл. 2 приведены значения $K_{эф}$ при соответствующей минимальной поверхностной плотности для каждой из смесей, полученные при помощи расчетных программных комплексов ММКФК-2 и SCALE 4.4a.

Результаты расчетов, приведенных в табл. 1,2, показывают, что использование 238-групповой библиотеки нейтронных сечений приводит к уменьшению расхождения меж-

Таблица 2

Сравнительные результаты расчетов по определению безопасной поверхностной плотности по программам ММКФК-2 и SCALE 4.4a

Состав смеси	ξ , г/см ²	$K_{эф}$, ММКФК-2	$K_{эф}$, SCALE 4.4a			$ \sigma $, %		
			27 групп	44 групп	238 групп	27	44	238
²³⁵ U+H ₂ O	0.2890	0.9485	0.9419	0.9450	0.9438	0.70	0.37	0.50
²³⁵ U+C	0.0513	0.9471	0.9399	0.9422	0.9513	0.76	0.52	0.44
²³⁵ U+Be	0.0603	0.9460	0.8730	0.8809	0.890	7.72	6.88	5.92
²³⁵ U+Pb	2.7190	0.9479	0.9392	0.8830	0.9132	0.92	6.15	3.66
²³⁵ U+SiO ₂	0.6200	0.9487	0.9397	0.9419	0.9511	0.95	0.72	0.25
²³⁵ U+MgF ₂	0.2940	0.9468	0.9249	0.9498	0.9456	2.31	0.31	0.13

Примечание. ξ – поверхностная плотность, г ²³⁵U на см²; σ - $((K_{эф}^{\text{ММКФК-2}} - K_{эф}^{\text{SCALE}}) / K_{эф}^{\text{ММКФК-2}}) \times 100$, %.

ду результатами, полученными по программе MMKFK-2 и SCALE 4.4a. При определении безопасной концентрации по результатам расчетов, приведенных в табл. 1, видно, что для смесей урана с водой, углеродом, бериллием и MgF_2 различие в $K_{эф}$, полученное с помощью MMKFK-2 и SCALE 4.4a, составляет менее 0.9%, поэтому результаты, полученные по программе MMKFK-2, могут быть рекомендованы в качестве нормативных параметров ядерной безопасности для этих смесей. Для смесей урана со свинцом и SiO_2 , где различия более существенны, необходимы дальнейшие исследования для выяснения причин такого большого расхождения, однако и в этом случае значения $K_{эф}$, полученные с помощью программы MMKFK-2 могут быть использованы для анализа ядерной безопасности, т. к. они являются консервативным оценками.

Анализ результатов расчетов по определению безопасной поверхностной плотности, приведенных в табл. 2, показывает, что расхождение между результатами полученными по программам MMKFK-2 и SCALE 4.4a, составляет не более 0.5%, для смесей урана с водой, углеродом, SiO_2 и MgF_2 поэтому эти результаты могут быть также рекомендованы в качестве нормативных параметров ядерной безопасности для данных смесей.

В случае же определения безопасной поверхностной плотности для смесей урана со свинцом и бериллием, где наблюдаются существенные расхождения, необходимы дальнейшие исследования для выяснения причин такого большого расхождения. Но даже в этом случае значения $K_{эф}$, полученные с помощью программы

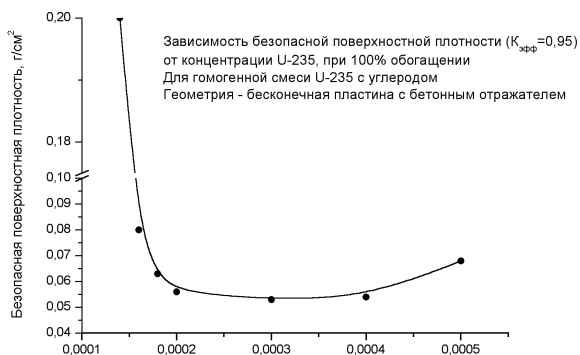


Рис. 1. Концентрация урана-235, г/см³

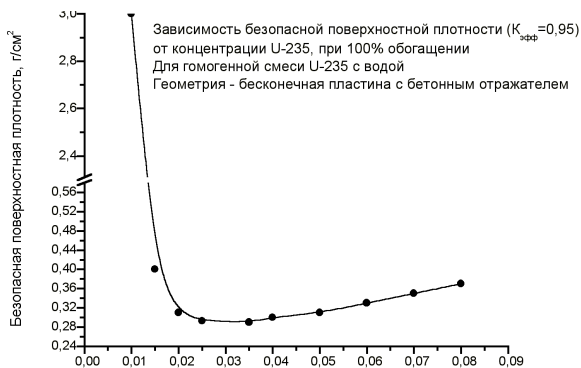


Рис. 2. Концентрация урана-235, г/см³

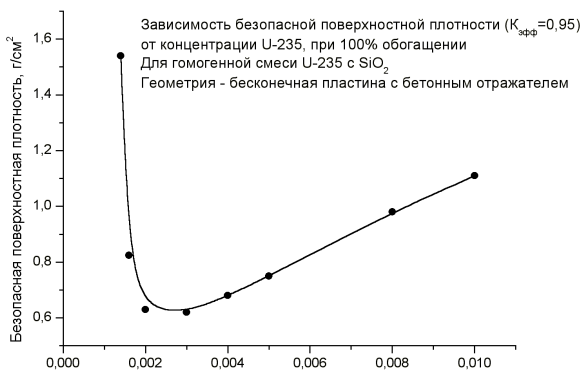


Рис. 3. Концентрация урана-235, г/см³

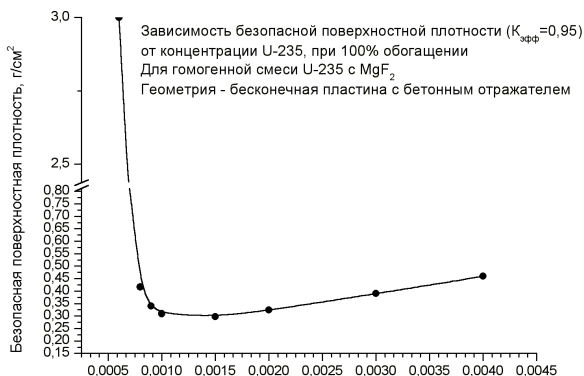


Рис. 4. Концентрация урана-235, г/см³

Таблица 3

Рекомендованные нормативные параметры ядерной безопасности

Состав смеси	Безопасная концентрация, г/л	Безопасное удельное содержание, г/кг	Безопасная поверхностная плотность, г/см ²
²³⁵ U+H ₂ O	9.0	-	0.29
²³⁵ U+C	-	0.08	0.05
²³⁵ U+Be	-	0.27	0.06
²³⁵ U+SiO ₂	-	0.8	0.62
²³⁵ U+Pb	-	0.4	2.7
²³⁵ U+MgF ₂	-	0.4	0.29

ММКФК-2, могут быть использованы для анализа ядерной безопасности, т. к. они являются консервативными оценками.

В табл. 3 приведены рекомендованные значения нормативных параметров ядерной безопасности.

Литература

1. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. – М.: ИздАТ, 1994.
2. Rogers A., Harris H., Kavin N. at al. Criticality parameters for tank waste evaluation: Proc. of the Topical Meeting of Criticality Safety Challenges in the Next Decade, Chelan, Washington, 1997. – P. 40-47.
3. Greenborg J., Barney C., Rogers C. Hanford tank farm nuclear criticality review: Proc. of the Topical Meeting of Criticality Safety Challenges in the Next Decade, Chelan, Washington, 1997. – P. 48-55.
4. Внуков В.С., Сичкарук О.В., Чукасли Л.И. Ядерная безопасность при обращении с радиоактивными отходами, содержащими делящиеся материалы//Атомная энергия. – Май 2000. – Т. 88. - Вып. 5. - С. 362-370.
5. Kouzmine S. at al. Criticality evaluation of deep-hole disposal of fissile-containing liquid radioactive waste. Criticality Safety Challenges in the Next Decade, Washington, 1997. – P. 88.
6. Fiona M. Olilvie, Neil Harris British Nuclear Fuel plc Sellafield, Seascale Cumbria, CA201PG, Handling and disposal of decommissioning wastes at BNFL Sellafield. - P. 31-35.
7. Hopper C., Parks C. Potential for and consequences of criticality resulting from hydrogeochemically concentrated fissile uranium blended with soil in low-level waste disposal facilities: Proc. of the Topical Meeting of Criticality Safety Challenges in the Next Decade, Chelan, Washington, 1997, p 73-79.
8. Anno J., Simonneau M., Gnerre D. Criticality safety study of Pu contaminated carbon waste stored in 100L steel drums. The Fifth International Conference on Nuclear Criticality Safety. Vol. II, Albuquerque, New Mexico, USA, 1995. – P. 11.29-11.35.
9. Полевой В.Б., Леонтьев В.В., Овчинников А.В. и др. ММКФК-2 – комплекс программ для решения методом Монте-Карло задач переноса нейтронов в физике реакторов (ММКФК-2-BASE), ОФАП ЯР, № 00371. – М., 1996.
10. A Modular Code System for performing Standardized Computer Analysis for Licensing Evaluation, NUREG/CR-0200. 1982.

Поступила в редакцию 5.11.2001

УДК 621.039.58:519

Development of Mathematical Model of Non-Equilibrium Two-Phase Flow for NPP Safety Analysis \ A.A. Kazantsev, V.A. Levchenko, V.V. Sergeev, V.V. Hudasko; Editorial board of Journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001. – 13 pages, 8 illustrations. – References, 13 titles

It is necessary to have models, which will allow to calculate non-steady non-equilibrium thermal-hydraulic processes in NPP in real-time mode for calculation of processes in NPP simulators. The problems of obtaining of closing multiplication factors for non-steady thermal-hydraulic equations for simulator models under conditions of boiling are considered. It was made attempt of receiving of one-dimensional equations for the description of processes with taking into account the nonequilibriums of parameters and spatial non-uniformity of physical processes.

УДК 621.039.53

Determination of Amount of Sampling through Factor of Sample at Supervision on Registration and Control of Nuclear Materials \ A.M. Dmitriev, O.V. Krivosheina; Editorial board of Journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001. – 7 pages, 5 tables. – References, 4 titles

In article the way of account of sample volume through factor of sample is offered at checks of sets of registration units with a nuclear material on mass contents U-235 in registration unit with reference to the Russian nuclear installations. Meanings of factor of sample are given for various probabilities of detection of threshold amount of a nuclear material.

УДК 621.039.7:546

Heterogeneous immobilization for rise of actinide waste concentration in their long-lived storage materials \ A.A. Kozar; Editorial board of Journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001. – 10 pages, 3 illustrations. – References, 21 titles

Heterogeneous immobilization of actinide wastes is considered, that is their inclusion into carrier-matrix as particles of separate phase. The calculation of track generation intensity in matrix has been carried out on the base of the analysis of possible directions of heavy nuclei output from spherical and cylindrical waste particles. It is shown, that existence of closed area without damages in matrix is possible if volumetric actinide contents is less of 50% or 75% for spherical or cylindrical waste particles accordingly. The dependences of the ratio of doze loading for heterogeneous and homogeneous matrices on actinide particle sizes are received. It is determined, that each order of increase in actinide phase sizes corresponds to approximately one order of doze loading reduction, starting with particle radius of 10^{-5} m, when damage amount decreases in 5 times.

УДК 621.039.7

Research of methods of the substantiation of nuclear safety at handling with radioactive wastes, containing nuclear materials \ S.S. Krechetov, V.S. Vnukov; Editorial board of Journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy, Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2001. – 6 pages, 3 tables, 4 illustrations. – References, 10 titles

Methods of calculation of nuclear safety are investigated at handling with radioactive wastes containing nuclear materials. Calculations of the safe specific contents, the safe areal density, used are carried out at the analysis of nuclear safety of radioactive wastes. Various mixes of wastes containing water, graphite, beryllium, dioxide silicon and others, with uranium of high enrichment are considered. Recommendations for normative parameters are given at investigated at handling with wastes.