

ДОЛГОВРЕМЕННАЯ РАДИАЦИОННАЯ ЗАЩИТА ТВС С МОХ-ТОПЛИВОМ ОТ НЕКОНТРОЛИРУЕМОГО РАСПРОСТРАНЕНИЯ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

В.Б. Глебов, А.Н. Шмелев, В.А. Апсэ, П.В. Цветков, А.Е. Синцов

Московский государственный инженерно-физический институт (технический университет), г. Москва



Рассматривается подход к созданию внутреннего долговременного радиационного защитного барьера МОХ-топлива от распространения плутония, предполагающий подмешивание радионуклида U-232 к топливу в процессе его фабрикации и кратковременное облучение изготовленных ТВС в бланкете электроядерной установки.

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время наблюдается расширение использования смешанного уран-плутониевого оксидного топлива (МОХ-топлива) как перспективного направления утилизации реакторного плутония, находящегося в настоящее время в отработанном топливе урановых легководных реакторов. Кроме того, Россия и США разрабатывают программы утилизации избыточного оружейного плутония в энергетических реакторах, рассматривая эти программы как реальный путь для ядерного разоружения [1]. В связи с этими обстоятельствами проблема защиты плутония при использовании в составе МОХ-топлива становится все более актуальной.

Решение этой проблемы возможно, по всей видимости, на пути создания системы защитных барьеров различного типа. Среди них рассматриваются внутренние защитные радиационные барьеры для топливного материала.

Важным фактором, характеризующим радиационный защитный барьер, является длительность его действия. В работе [2] рассмотрена возможность создания внутреннего защитного барьера с помощью короткого облучения изготовленных ТВС с МОХ-топливом в бланкете электроядерной установки (ЭЛЯУ). Недостатком этого подхода является кратковременность действия защитного барьера, т.к. мощность экспозиционной дозы (МЭД) γ -излучения от накопления продуктов деления относительно быстро спадает. Поэтому, для создания долговременного защитного барьера требуются дополнительные меры. В числе возможных вариантов может рассматриваться подход с подмешиванием долгоживущих радионуклидов к топливу в процессе его изготовления. При этом очевидно, что операции по фабрикации МОХ-топлива, изготовлению твэлов и ТВС придется осуществлять в условиях повышенного фона γ -радиации. В связи с этим, количество добавляемых радионуклидов должно быть таким, чтобы выполнялись условия радиационной безопасности для персонала.

© В.Б. Глебов, А.Н. Шмелев, В.А. Апсэ, П.В. Цветков, А.Е. Синцов, 1999

Для современных производств по фабрикации МОХ-топлива радиационная безопасность обеспечивается за счет дистанционного обращения с ядерными материалами. Как следует, например, из [3], требование на допустимый уровень γ -излучения материала при этом соответствует величине МЭД 0.6 бэр/ч на расстоянии 1 м от изготовленной ТВС с МОХ-топливом. Это весьма жесткое требование практически исключает из рассмотрения радионуклиды, распад которых непосредственно сопровождается γ -излучением. В этом случае представляет интерес использование изотопа U-232 в качестве добавки к МОХ-топливу.

Дело в том, что уран-232 является начальным изотопом длинной цепочки распадов, причем жестким γ -излучением сопровождается распад некоторых дочерних радионуклидов в заключительных звеньях цепочки. Поэтому, γ -активность U-232 возрастает с временной задержкой, обусловленной накоплением эмиттеров жесткого γ -излучения, проходит через максимум примерно через 10 лет, а затем экспоненциально уменьшается с достаточно длительным периодом полураспада (~69 лет). Такое временное поведение γ -активности U-232 (точнее, его дочерних продуктов) удобно тем, что радиационный барьер оказывается умеренным по величине на стадии фабрикации топлива и изготовления ТВС и только затем нарастающим (и медленно спадающим после прохождения максимума) - на стадии хранения, транспортировки и подготовки к использованию на АЭС. Таким образом, добавление U-232 к МОХ-топливу позволяет иметь "окно" пониженной активности на стадии изготовления ТВС, которое затем постепенно "самозакрывается".

ОЦЕНКА ЗАЩИЩЕННОСТИ ТВС С МОХ-ТОПЛИВОМ, СОДЕРЖАЩИМ U-232

Современные технологии изготовления реакторного топлива характеризуются использованием высокопроизводительного оборудования, интенсивными потоками ядерных материалов и, как следствие, относительно коротким временем изготовления ТВС [4].

Если принять длительность цикла изготовления ТВС, равной 10 сут., то из ограничения на мощность дозы ТВС при изготовлении (0.6 бэр/ч) можно оценить предельно допустимое количество добавляемого в топливо U-232, и для этого случая оно составляет ~ 0.01%.

Для расчета радиационных характеристик облученного в ЭЛЮ МОХ-топлива использована функциональная цепочка SAS2H комплекса программ SCALE (версия 4.3) [5]. Эта цепочка позволяет выполнять расчет топливной композиции на каждый момент времени облучения в установке и одномерный транспортный расчет (1-D) системы с использованием двухступенчатой процедуры. На первой ступени рассматривается решетка топливных стержней, а на второй - решетка топливных сборок. Результаты транспортного расчета на каждом временном шаге по выгоранию используются при расчете изменения изотопного состава топлива в процессе облучения. По окончании расчета периода облучения топлива проводится одномерный анализ защиты, завершающийся расчетом его дозовых характеристик.

С помощью функциональной цепочки SAS2H произведены расчеты и оценено временное поведение МЭД на расстоянии 1 м от ТВС с МОХ-топливом, содержащим 0.01 % U-232 (рис.1). Показано, что величина МЭД при этом достигает 100 бэр/ч через 5 лет выдержки и не опускается ниже этой величины в течение последующих 20 лет. Этот уровень рассматривается Комиссией США по ядерному регулированию и МАГАТЭ как достаточный для самозащитенности отработанных ТВС ядерных реакторов [1]. Однако в течение первых 5 лет после изготовления величина МЭД ниже этого уровня защищенности, а в течение первого года не превышает и 30 бэр/ч.

Итак, добавление U-232 в количестве, допустимом для современного производства по фабрикации ядерного топлива, позволяет поддерживать защищенность

МОХ-топлива на указанном выше уровне в течение достаточно длительного времени, но в первые несколько лет имеется "окно", когда защищенность топлива существенно ниже требуемой.

Это "окно", желательное для процесса фабрики МОХ-топлива и изготовления ТВС, затем должно быть надежно "закрыто" на период до 5 лет, в течение которых барьер, обусловленный распадом U-232, еще только набирает силу. Этого можно добиться, если применить комбинированный подход к защите МОХ-топлива: сочетание подмешивания к топливу изотопа U-232 с операцией короткого облучения уже изготовленных ТВС в ЭЛЯУ. На рис.2 показан спад МЭД от ТВС, облученной в течение 90 сут. в бланкете ЭЛЯУ [2]. Видно, что первые два года составляющая МЭД от продуктов деления, накопившихся в облученной ТВС, существенно выше 100 бэр/ч, но в течение следующих двух лет спадает до величины ~50% от этого уровня защищенности. В сочетании же с дозой от дочерних продуктов распада U-232 суммарная МЭД становится достаточной для того, чтобы обеспечить защищенность МОХ-топлива на уровне не ниже 100 бэр/ч на протяжении всего 25-летнего периода.

Отмеченный выше уровень защитного радиационного барьера 100 бэр/ч определяется в нашем случае допустимой при фабрикации концентрацией U-232, а в конечном счете возможностями технологии фабрики МОХ-топлива. Например, на заводе по производству МОХ-топлива в Селлафилде (Великобритания) ис-

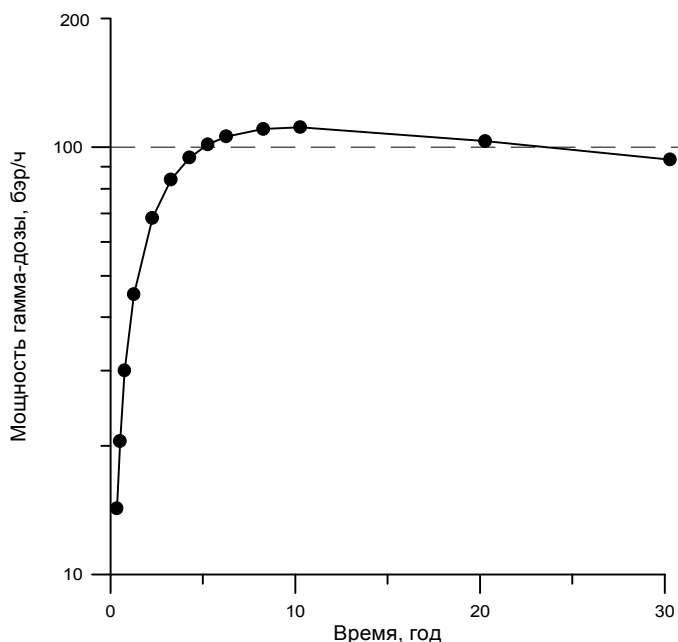


Рис.1. МЭД на расстоянии 1 м от необлученной ТВС с МОХ-топливом, содержащим 0.01% U-232

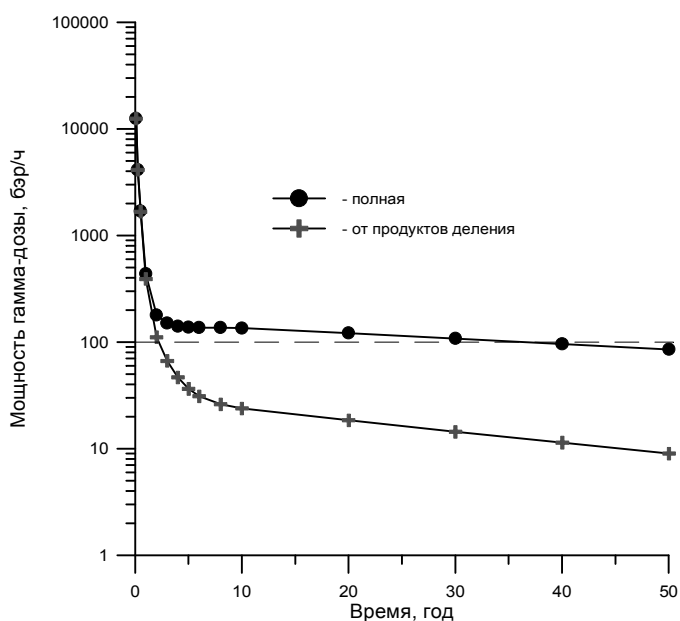


Рис.2. МЭД на расстоянии 1 м от облученной ТВС с МОХ-топливом, содержащим 0.01% U-232

пользуется полудистанционная технология. Эта технология позволяет осуществлять фабрикацию МОХ-топлива и изготовление ТВС при величине МЭД на расстоянии 1 м от изготовленной ТВС ~ 0.6 бэр/ч.

Конечно, уровень защитного барьера при необходимости может быть повышен, если потребуются. Но, при этом, пропорционально повысится уровень МЭД на стадии фабрикации МОХ-топлива, что потребует соответствующего усложнения технологии. Например, если в качестве критерия защищенности использовать величину 1000 бэр/ч для МЭД на расстоянии 1 м от ТВС, то содержание U-232 в топливе должно быть повышено до 0.1%, а МЭД на конец изготовления ТВС (10 сут.) составит 6 бэр/ч. Таким образом, величина МЭД, принятая как критерий защищенности, и МЭД на момент изготовления ТВС различаются примерно в 170 раз.

Здесь уместно еще раз подчеркнуть преимущество U-232 перед использованием γ -активных радионуклидов (например, Cs-137). Это преимущество связано с запаздывающим характером γ -излучения U-232. Незначительное на начальном этапе, оно затем нарастает по мере накопления γ -активных изотопов в цепочке распада U-232, достигает максимума и только после этого экспоненциально спадает с достаточно длительным периодом полураспада. В то же время интенсивность излучения γ -активных радионуклидов экспоненциально спадает с самого начала, т.е. с момента их введения в состав защищаемого топлива. Чтобы МЭД от ТВС, содержащей Cs-137, была на уровне 100 бэр/ч через 25 лет, МЭД на стадии изготовления должна быть примерно 180 бэр/ч, т.е. в 300 раз выше, чем в случае использования U-232.

Однако добавление U-232 требует облучения изготовленных ТВС в бланкете ЭЛЯУ для закрытия "окна", а применение γ -активных радионуклидов не требует этого облучения.

О ВЫДЕРЖКЕ ОБЛУЧЕННЫХ ТВС ПЕРЕД ОТПРАВКОЙ НА АЭС

После облучения в бланкете ЭЛЯУ защищенные ТВС с МОХ-топливом должны быть выдержаны в течение некоторого времени для снижения остаточного тепловыделения до уровня, приемлемого для их транспортировки в стандартных контейнерах. Известно [6], что стандартные контейнеры, используемые для транспортировки облученных ТВС реактора ВВЭР-1000, характеризуются следующими величинами допустимого удельного тепловыделения ТВС:

- при выдержке 0.5 года - 23 Вт/кг топлива;
- при выдержке 1 год - 12 Вт/кг топлива;
- при выдержке 2 года - 5.6 Вт/кг топлива.

Временное поведение тепловыделения распада в ТВС с МОХ-топливом после их облучения в ЭЛЯУ оценивалось по эмпирической формуле, приведенной в [7]:

$$W(t) = 0.07 \cdot W(0) \cdot [t^{-0.2} - (t + t_{\text{обл}})^{-0.2}], \quad (1)$$

где t - время после прекращения облучения, сек; $W(t)$ - удельное тепловыделение распада в момент времени t ; $W(0)$ - удельное тепловыделение при облучении; $t_{\text{обл}}$ - длительность облучения, сек.

Сравнительные расчеты с использованием программы SCALE подтвердили, что формула (1) удовлетворительно описывает остаточное тепловыделение облученных ТВС легководных реакторов для $t < 10^7$ сек (около 4 мес.).

Оценки, выполненные с помощью формулы (1), показали, что ТВС с МОХ-топливом, облученные в рассматриваемой ЭЛЯУ [2] в течение 90 сут., уже через 1 день после прекращения облучения имеют удельное тепловыделение на уровне 24 Вт/кг, а через 5 дней - на уровне 13 Вт/кг. Это означает, что необходимая выдержка облученных в ЭЛЯУ ТВС практически не создает временной задержки для их отправки на АЭС в стандартных контейнерах.

ОЦЕНКА ПРОИЗВОДИТЕЛЬНОСТИ ЭЛЯУ И ПОТРЕБНОСТИ В U-232

В установившемся режиме перегрузок производительность ЭЛЯУ по созданию внутреннего радиационного барьера в ТВС, по существу, определяется количеством ТВС в бланкете ЭЛЯУ и продолжительностью облучения ТВС.

Оценки, полученные в [2], показали, что ЭЛЯУ может обеспечить достаточную степень защищенности для 150 ТВС, загруженных в бланкет и облучаемых в течение 90 сут. Поскольку типичный легководный энергетический реактор мощностью 1 ГВт(э) требует для ежегодной перегрузки примерно 50 ТВС, подобная ЭЛЯУ способна обеспечивать защищенными ТВС парк легководных реакторов мощностью 12 ГВт(э). Это означает, что для обслуживания мировой ядерной энергетики потребуется возведение примерно 30 таких ЭЛЯУ.

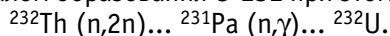
Для повышения производительности время облучения ТВС в ЭЛЯУ желательно иметь как можно меньше.

Очевидно, что сокращение длительности облучения привело бы к пропорциональному расширению парка обслуживаемых реакторов и к такому же снижению количества требующихся ЭЛЯУ. Но это сокращение длительности облучения не должно сопровождаться понижением уровня радиационной защищенности ТВС. Одним из возможных путей решения этой задачи может быть размещение ТВС в бланкете ЭЛЯУ с увеличенными зазорами между ними. Известно, что наличие водных зазоров между ТВС может приводить к всплеску тепловыделения в периферийных рядах твэлов. Этот эффект можно использовать для того, чтобы перераспределить накопление продуктов деления (источников γ -излучения) из внутренней области ТВС на ее периферию. Тем самым можно ослабить эффект внутреннего самопоглощения γ -излучения и либо повысить уровень защитного барьера, либо уменьшить длительность облучения ТВС в бланкете.

При содержании U-232 в МОХ-топливе на уровне 0.01% в свежей ТВС будет находиться ~50 г U-232. Как показали расчетные оценки выгорания U-232 в реакторах типа ВВЭР, к концу 3-летней кампании топлива содержание U-232 в выгружаемой ТВС уменьшится примерно вдвое. Поскольку при ежегодной перегрузке легководных реакторов заменяется третья часть ТВС активной зоны (~50 ТВС), то при переходе на защищенное МОХ-топливо в первые несколько лет потребуется 2.5 кг U-232/(ГВт(э)*год), а затем, когда рецикл U-232 будет замкнут, то с учетом 50%-выгорания - только 1.25 кг U-232/(ГВт(э)*год). В пересчете на мощность всей ядерной энергетики мира (360 ГВт(э) на конец 1998 года) потребность в U-232 составит 900 кг/год в течение переходного периода, а затем 450 кг/год для восполнения его выгорания.

О ПУТЯХ НАКОПЛЕНИЯ U-232

Изотоп U-232 образуется при нейтронном облучении тория одновременно с накоплением хорошо делящегося изотопа U-233 и, как правило, рассматривается в качестве нежелательного побочного продукта, сильно затрудняющего последующее использование U-233. Основным каналом образования U-232 при этом является цепочка:



Реакция $^{232}\text{Th}(n,2n)$ является пороговой (~6.5 МэВ). Поскольку доля столь высокоэнергетических нейтронов в спектре существующих тепловых и быстрых реакторов сравнительно мала, то и накопление U-232 в них невелико и составляет примерно 0.1% в отношении к U-233.

В качестве перспективы можно рассматривать накопление U-232 в термоядерных установках, где доля высокоэнергетической компоненты нейтронного спектра существенно больше, чем в энергетических ядерных реакторах. По оценкам [8], в термоядерном реакторе типа ITER с бланкетом, содержащим торий, можно накапливать ~0.3 ядра U-232 в расчете на одну (D,T)-реакцию в плазме. Это означает, что в термо-

ядерном реакторе типа ITER при номинальной нейтронной нагрузке на первую стенку (1 МВт/м^2) можно было бы нарабатывать около 2 т U-232 в год.

Поэтому производительности только одной термоядерной установки типа ITER по U-232 оказалось бы вполне достаточно для обслуживания всей ядерной энергетики мира как в переходном периоде, так и в стационарном режиме подгрузки U-232. Более того, имеющийся запас производительности может быть использован для 2-кратного усиления защищенности МОХ-топлива.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложен подход к созданию долговременного защитного радиационного барьера МОХ-топлива, включающей добавление радионуклида U-232 к топливу в процессе его фабрикации и операцию кратковременного облучения изготовленных ТВС в бланкете ЭЛЯУ. Полученные оценки позволяют сделать следующие выводы:

- Добавление U-232 к МОХ-топливу в количестве, допустимом для современной технологии его фабрикации, поддерживает защищенность топлива на уровне 100 бэр/ч через 5 лет после изготовления ТВС.

- “Окно” пониженной защищенности в первые годы после изготовления может быть “закрыто” кратковременным облучением ТВС в ЭЛЯУ. Выдержка ТВС после облучения в ЭЛЯУ не создает существенной временной задержки для их транспортировки на АЭС в стандартных контейнерах.

- Перспективным путем накопления U-232 для этих целей представляется облучение тория в бланкете термоядерной установки типа ITER. Производительности всего одной такой установки по U-232 вполне достаточно для обеспечения потребностей мировой ядерной энергетики существующего масштаба даже в условиях 2-кратного усиления защищенности МОХ-топлива.

Список литературы

1. Management and Disposition of Excess Weapons Plutonium. - Committee on International Security and Arms Control, National Academy of Sciences, National Academy Press, Washington, D.C., 1994.
2. Шмелев А.Н., Синцов А.Е., Глебов В.Б., Ансэ В.А. Использование электроядерных установок для обеспечения защиты ТВС с МОХ-топливом путем создания радиационного барьера // Известия вузов. Ядерная энергетика (в печати).
3. BNFL: Sellafield Visitor Information/Sellafield Plant. <http://www.bnfl.com/>.
4. Шаров М.Ю. Сотрудничество с американскими лабораториями по физической защите на ОАО “МСЗ”. Проблемы и успехи / Труды Международной конференции по учету, контролю и физической защите ядерных материалов (Обнинск, 9-14 марта 1997). - Т.3. - С.617-624.
5. SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation. NUREG/CR-0200, ORNL/NUREG/CSD-2/R5, Oak Ridge, January 1997.
6. Синев Н.М., Батуров Б.Б. Экономика атомной энергетики. Основы технологии и экономики ядерного топлива. - М.: Энергоатомиздат, 1984.
7. Технические проблемы реакторов на быстрых нейтронах / Под ред. Ю.Е. Багдасарова. - М.: Атомиздат, 1969, с.523-525.
8. Шмелев А.Н., Тихомиров Г.В., Куликов Г.Г. и др. О концепции международных научно-технических центров по утилизации плутония // Известия вузов. Ядерная энергетика. - 1998. - №4. - С.81-92.

Поступила в редакцию 19.05.99.

Realization of closed thorium fuel cycle with uranium-233 accumulation presupposes radiochemical reprocessing of an irradiated thorium composition (metal, oxide) by the extraction method.

The most preferable method is uranium-233 is counterflow process of extraction from concentrated solutions of 3% TBF into a light diluent with acid concentration of 4-5 m/l and process temperature of 45°C.

Irradiated thorium regeneration can also be conducted by the extraction using of 30% TBF into a light diluent with process temperature of ~50°C.

УДК 621.039.59:621.039.544.35

Technological Possibilities of Pyrochemical Fabrication of Fuel on the Base of Thorium Oxide \ V.S. Naumov, A.V. Bychkov, S.K. Vavilov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 6 pages, 2 tables. - References, 10 titles.

Possibilities of pyrochemical technologies to produce and regenerate fuel compositions based on thorium oxide are considered in the article. Some data on physical and chemical properties of thorium in the most important salt melts containing fission materials and fission fragment nuclides are presented. The experience of high-temperature process development to produce and regenerate MOX-fuel for BN reactors is generalized. Proposed electrochemical regeneration process in salt melts give a possibility to regain physical, mechanical and nuclear properties of the fuel and to use it in the form of granules for vibro-packing of fuel elements.

УДК 621.039.5

Long-Term Radiation Protection of MOX-Fuel Assemblies against Uncontrolled Proliferation of Nuclear Materials \ V.B. Glebov, A.N. Shmelev, V.A. Apse, P.V. Tsvetkov, A.E. Sintsov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 6 pages, 2 illustrations. - References, 8 titles.

An approach to creating the long-term inherent radiation barrier of MOX-fuel assemblies is proposed to prevent uncontrolled plutonium proliferation. This approach includes an admixture of radionuclide ^{232}U to MOX-fuel followed by a short-term irradiation of manufactured fuel assemblies in the blanket of accelerator-driven facility.

УДК 621.039.516.4

Closed Fuel Cycle of Russian NPP. Problems And Prospects \ V.M. Lebedev, N.N. Davidenko, A.I. Archangel'skaya; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 7 pages.

As a strategic problem of viability of nuclear power engineering, its competitiveness and small ecological danger it is necessary to consider its future development within the closed nuclear fuel cycle.

УДК 621.039.58

Analysis of Y2K Problem for VVER-1000 Reactors \ A.Yu. Prokhotsev; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 5 pages, 2 tables. - References, 3 titles.

The problem of change of dates from 1900s through 2000s and its influence on safety of NPP with reactors VVER-1000 is discussed. The analysis of the software of a qualitative estimation of dangers from origin date - dependent failure was made. The qualitative assessment of a significance of personnel' errors was carried out using SAPHIRE code Ver.6.59.

УДК 621.039.566

Operating Experience of Bilibino NPP EGP-6 Reactors \ I.S. Akimov, A.A. Dementiev, F.T. Tukhvetov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 6 pages, 1 illustration. - References, 7 titles.

The essential modifications of Bilibino NPP reactors during their 25-years life are described.

Besides radiation-induced dimensional changes of graphite blocks inside the reactors, disturbances of fission product release monitoring due to contamination of in-core materials with actinides, the search procedure of minor water leakage inside the reactor core are discussed.

The codes elaborated to provide the reactor operation with necessary computations are enumerated and the criticality calculations of ~80 critical reactor states are presented.