

# НОРМАТИВНЫЕ ПАРАМЕТРЫ ЯДЕРНОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ПРИ ОБРАЩЕНИИ С ОТХОДАМИ, СОДЕРЖАЩИМИ ПЛУТОНИЙ И НИЗКООБОГАЩЕННЫЙ УРАН

**С.С. Кречетов, В.С. Внуков**

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



Определены параметры ядерной безопасности при обращении с отходами, содержащими плутоний и низкообогащенный уран. 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. Приведены рекомендованные нормативные параметры при обращении с отходами.

Для обоснования ядерной безопасности хранилищ и мест захоронения радиоактивных отходов, содержащих делящиеся материалы, используются нормативные параметры, т.е. безопасная концентрация делящихся материалов (г/л), безопасное удельное содержание делящихся материалов в отходах (г/кг), безопасная поверхностная плотность делящихся материалов в отходах (г/см<sup>2</sup>), при которых  $K_{эф}$  мест захоронения  $\leq 0.95$ .

Эти нормативные параметры были определены в работе [1] для отходов, содержащих высокообогащенный уран. В настоящей работе рассмотрены отходы, содержащих плутоний и уран с обогащением менее или равным 5% по <sup>235</sup>U. Рассматривались 2 состава плутония: первый содержит 100% <sup>239</sup>Pu, второй 76% <sup>239</sup>Pu,  $\geq 12\%$  <sup>240</sup>Pu,  $\leq 12\%$  <sup>241</sup>Pu.

Поскольку на практике состав отходов может содержать различные химические элементы, были выбраны смеси делящихся материалов с наиболее эффективными замедлителями нейтронов: водой, графитом, бериллием. Кроме того рассмотрены смеси делящихся материалов с "рассеивателями" нейтронов, имеющими малое сечение поглощения в тепловой части спектра нейтронов, которые наиболее часто встречаются в составе отходов. В качестве таковых выбраны SiO<sub>2</sub>, MgF<sub>2</sub>, Pb.

При расчетах концентраций принимались следующие значения плотностей материалов: воды – 1 г/см<sup>3</sup>, графита – 1.65 г/см<sup>3</sup>, бериллия – 1.85 г/см<sup>3</sup>, свинца – 11.3 г/см<sup>3</sup>, MgF<sub>2</sub> – 1.6 г/см<sup>3</sup>, SiO<sub>2</sub> – 1.6 г/см<sup>3</sup> (значения плотности для MgF<sub>2</sub> и SiO<sub>2</sub> соответствуют 60% от теоретической плотности; это объясняется тем фактом, что в природе рассмотренные материалы при теоретической плотности встречаются редко).

Нормативные параметры для таких смесей определяются с помощью расчетов  $K_{эф}$  по аттестованным программам. Однако из-за низких значений концентраций деля-

щихся материалов в смеси с материалами, входящими в состав отходов, погрешность расчетов не известна из-за отсутствия критических экспериментов в этой области. Поэтому нормативные параметры были рассчитаны с помощью двух независимых программ ММКФК-2 [2] и SCALE 4.4a [3].

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 МОФИТТГ 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 процессов 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 табл. 1-3 приведены полученные результаты расчетов по определению безопасной концентрации.

Таблица 1

**Сравнительные результаты расчетов по определению безопасной концентрации плутония Pu (100%- $^{239}\text{Pu}$ ) для различных смесей по программам SCALE 4.4a и ММКФК-2**

Состав смеси	$C_{\text{Pu}} \cdot 10^{-3}$ , г/см <sup>3</sup>	$K_{\infty}$ , ММКФК-2	$K_{\infty}$ , SCALE 4.4a			Д , %		
			27 групп	44 групп	238 групп	27 групп	44 групп	238 групп
Pu+H <sub>2</sub> O	6.5	0.9441	0.9547	0.9495	0.9482	0.91	0.57	0.43
Pu +C	0.085	0.9459	0.9682	0.9538	0.9510	2.36	0.84	0.54
Pu +Be	0.306	0.9457	0.9541	0.9554	0.9532	0.89	1.03	0.79
Pu +Pb	2.450	0.9476	0.8990	0.8793	0.8872	5.13	7.21	6.04
Pu +SiO <sub>2</sub>	0.630	0.9490	0.9531	0.9402	0.9425	0.43	0.93	0.69
Pu +MgF <sub>2</sub>	0.350	0.9427	0.9552	0.9633	0.9614	1.33	2.19	1.98

$C_{\text{Pu}}$  – концентрация  $^{239}\text{Pu}$ , г/см<sup>3</sup>; Д -  $((K_{\infty}^{\text{ММКФК-2}} - K_{\infty}^{\text{SCALE}}) / K_{\infty}^{\text{ММКФК-2}}) \cdot 100$ , %.

При определении безопасной поверхностной плотности расчеты проводились для бесконечной одномерной пластины с метровым бетонным отражателем снизу и сверху. Выбор бетона в качестве отражателя обусловлен тем, что стены хранилища могут быть выполнены из бетона и отражающая способность (альbedo) бетона выше, чем у воды или земли.

Расчеты по определению безопасной поверхностной плотности проводились следующим образом: для определенной концентрации делящегося материала (урана, плутония) определялась толщина пластины, при которой  $K_{\infty}$  системы равнялось 0.95. Исходя из данной толщины пластины определялась безопасная поверхностная плотность. Процедура выполнялась до тех пор, пока не набиралось достаточное количество точек для построения зависимости безопасной поверхностной плотности от кон-

Таблица 2

**Сравнительные результаты расчетов по определению безопасной концентрации плутония \*Pu (76%- <sup>239</sup>Pu, 12%- <sup>240</sup>Pu, 12%- <sup>241</sup>Pu) для различных смесей по программам SCALE 4.4a и ММКФК-2**

Состав смеси	C <sub>Pu</sub> ·10 <sup>-3</sup> , г/см <sup>3</sup>	K <sub>∞</sub> , ММКФК-2	K <sub>∞</sub> , SCALE 4.4a			Д  , %		
			27 групп	44 групп	238 групп	27 групп	44 групп	238 групп
*Pu+H <sub>2</sub> O	7.5	0.9458	0.9537	0.9517	0.9492	0.84	0.62	0.36
*Pu+C	0.095	0.9463	0.9681	0.9556	0.9512	2.30	0.98	0.52
*Pu+Be	0.340	0.9435	0.9505	0.9538	0.9517	0.74	1.09	0.87
*Pu+Pb	4.700	0.9426	0.9251	0.9068	0.9019	1.86	3.80	4.32
*Pu+SiO <sub>2</sub>	0.900	0.9486	0.9579	0.9571	0.9562	0.98	0.90	0.80
*Pu+MgF <sub>2</sub>	0.450	0.9441	0.9525	0.9627	0.9595	0.89	1.97	1.63

C<sub>Pu</sub> – концентрация плутония, г/см<sup>3</sup>; Д - ((K<sub>∞</sub><sup>ММКФК-2</sup> - K<sub>∞</sub><sup>SCALE</sup>)/ K<sub>∞</sub><sup>ММКФК-2</sup>)·100, %.

Таблица 3

**Сравнительные результаты расчетов по определению безопасной концентрации урана обогащением 5% <sup>235</sup>U для различных смесей по программам SCALE 4.4a и ММКФК-2**

Состав смеси	C <sub>U</sub> ·10 <sup>-3</sup> , г/см <sup>3</sup>	K <sub>∞</sub> , ММКФК-2	K <sub>∞</sub> , SCALE 4.4a			Д  , %		
			27 групп	44 групп	238 групп	27 групп	44 групп	238 групп
U(5)+H <sub>2</sub> O	257.0	0.9476	0.9534	0.9476	0.9469	0.44	0.00	0.07
U(5)+C	3.160	0.9457	0.9387	0.9510	0.9531	0.74	0.56	0.78
U(5)+Be	11.500	0.9463	0.9270	0.9396	0.9429	2.04	0.71	0.36

C<sub>U</sub> – концентрация урана, г/см<sup>3</sup>; Д - ((K<sub>∞</sub><sup>ММКФК-2</sup> - K<sub>∞</sub><sup>SCALE</sup>)/ K<sub>∞</sub><sup>ММКФК-2</sup>)·100, %.

центрации делящегося материала. Далее из графика определялась минимальная по концентрации безопасная поверхностная плотность.

В табл. 4-6 приведены значения K<sub>эф</sub> при соответствующей минимальной безопасной поверхностной плотности для каждой из смесей, полученные при помощи расчетных программных комплексов ММКФК-2 и SCALE 4.4a.

Таблица 4

**Сравнительные результаты расчетов по определению безопасной поверхностной плотности Pu (100%-<sup>239</sup>Pu) по программам ММКФК-2 и SCALE 4.4a**

Состав смеси	ξ, г/см <sup>2</sup>	K <sub>эф</sub> , ММКФК-2	K <sub>эф</sub> , SCALE 4.4a			Д  , %		
			27 групп	44 групп	238 групп	27 групп	44 групп	238 групп
Pu+H <sub>2</sub> O	0.1680	0.9439	0.9503	0.9495	0.9474	0.7	0.6	0.37
Pu+C	0.0312	0.9460	0.9475	0.9411	0.9586	1.33	0.52	0.16
Pu+Be	0.0364	0.9461	0.9023	0.8939	0.9009	4.63	5.52	4.78
Pu+Pb	1.7600	0.9462	0.9060	0.8630	0.8816	4.25	8.79	6.83
Pu+SiO <sub>2</sub>	0.2770	0.9464	0.9457	0.9418	0.9511	0.07	0.49	0.50
Pu+MgF <sub>2</sub>	0.1463	0.9483	0.9358	0.9585	0.9545	1.32	1.08	0.65

ξ - поверхностная плотность, г <sup>239</sup>Pu на см<sup>2</sup>; Д - ((K<sub>эф</sub><sup>ММКФК-2</sup> - K<sub>эф</sub><sup>SCALE</sup>)/K<sub>эф</sub><sup>ММКФК-2</sup>)·100, %.

Таблица 5

**Сравнительные результаты расчетов по определению безопасной поверхностной плотности \*Pu (76%-  $^{239}\text{Pu}$ , 12%-  $^{240}\text{Pu}$ , 12%-  $^{241}\text{Pu}$ ) по программам MMKFK-2 и SCALE 4.4a**

Состав смеси	$\xi$ , г/см <sup>2</sup>	$K_{\text{эф}}$ , MMKFK-2	$K_{\text{эф}}$ , SCALE 4.4a			Д , %		
			27 групп	44 групп	238 групп	27 групп	44 групп	238 групп
*Pu+H <sub>2</sub> O	0.2040	0.9480	0.9459	0.9458	0.9438	0.22	0.23	0.44
*Pu+C	0.0352	0.9495	0.9630	0.9474	0.9522	1.42	0.22	0.28
*Pu+Be	0.0387	0.9489	0.9029	0.8969	0.9041	4.85	5.48	4.72
*Pu+Pb	2.6480	0.9481	0.9193	0.8740	0.8950	3.04	7.82	5.60
*Pu+SiO <sub>2</sub>	0.5424	0.9462	0.9648	0.9743	0.9711	1.97	2.97	2.63
*Pu+MgF <sub>2</sub>	0.2123	0.9464	0.9395	0.9609	0.9538	0.73	1.53	0.78

$\xi$  - поверхностная плотность, г \*Pu на см<sup>2</sup>; Д -  $((K_{\text{эф}}^{\text{MMKFK-2}} - K_{\text{эф}}^{\text{SCALE}})/K_{\text{эф}}^{\text{MMKFK-2}}) \cdot 100$ , %.

Таблица 6

**Сравнительные результаты расчетов по определению безопасной поверхностной плотности урана обогащением 5%  $^{235}\text{U}$  по программам MMKFK-2 и SCALE 4.4a**

Состав смеси	$\xi$ , г/см <sup>2</sup>	$K_{\text{эф}}$ , MMKFK-2	$K_{\text{эф}}$ , SCALE 4.4a			Д , %		
			27 групп	44 групп	238 групп	27 групп	44 групп	238 групп
U(5)+H <sub>2</sub> O	7.861	0.9453	0.9332	0.9375	0.9368	1.28	0.83	0.90
U(5)+C	1.262	0.9489	0.9308	0.9449	0.9441	1.91	0.42	0.51
U(5)+Be	1.533	0.9474	0.8923	0.8968	0.9062	5.82	5.34	4.35

$\xi$  - поверхностная плотность, г U(5) на см<sup>2</sup>; Д -  $((K_{\text{эф}}^{\text{MMKFK-2}} - K_{\text{эф}}^{\text{SCALE}})/K_{\text{эф}}^{\text{MMKFK-2}}) \cdot 100$ , %.

Таблица 7

**Нормативные параметры ядерной безопасности**

Состав смеси	Безопасная концентрация, г/л			Безопасное удельное содержание, г/кг			Безопасная поверхностная плотность, г/см <sup>2</sup>		
	I	II	III	I	II	III	I	II	III
Pu+H <sub>2</sub> O	6.5	6.5	6.5	-	-	-	0.1680	0.1739	0.168
Pu+C	-	-	-	0.052	0.051	0.051	0.0312	0.0311	0.031
Pu+Be	-	-	-	0.165	0.162	0.162	0.0364	0.0396	0.036
Pu+Pb	-	-	-	0.217	0.268	0.217	1.7600	2.3479	1.760
Pu+SiO <sub>2</sub>	-	-	-	0.394	0.399	0.394	0.2770	0.2737	0.273
Pu+MgF <sub>2</sub>	-	-	-	0.219	0.213	0.213	0.1463	0.1442	0.144
*Pu+H <sub>2</sub> O	7.4	7.4	7.4	-	-	-	0.2040	0.2063	0.204
*Pu+C	-	-	-	0.058	0.057	0.057	0.0352	0.0351	0.035
*Pu+Be	-	-	-	0.184	0.181	0.181	0.0415	0.0451	0.041
*Pu+Pb	-	-	-	0.416	0.456	0.416	2.6480	3.1914	2.648
*Pu+SiO <sub>2</sub>	-	-	-	0.563	0.550	0.550	0.5424	0.4890	0.489
*Pu+MgF <sub>2</sub>	-	-	-	0.275	0.263	0.263	0.2123	0.2079	0.208
U(5)+H <sub>2</sub> O	257	257	257	-	-	-	7.8610	8.0919	7.861
U(5)+C	-	-	-	1.915	1.885	1.885	1.2620	1.2497	1.249
U(5)+Be	-	-	-	6.216	6.265	6.216	1.5330	1.7272	1.533

I- значение, полученное по программе MMKFK-2; II- значение, полученное по программе SCALE 4.4a; III- рекомендуемый нормативный параметр

В табл. 7 приведены значения нормативных параметров ядерной безопасности, рассчитанные по программам ММКФК-2 и SCALE 4.4a, и рекомендованные значения нормативных параметров.

Анализ полученных данных показывает, что для рассмотренных материалов, которые могут находиться в составе отходов, расхождение между нормативными параметрами, полученными по рассмотренным программам расчета, достаточно мало при использовании их на практике, за исключением смесей, содержащих свинец.

При выборе рекомендованных значений был принят принцип консервативности, т.е. использованы минимальные значения нормативных параметров, полученные по программам ММКФК-2 и SCALE 4.4a.

### **Литература**

1. *Кречетов С.С., Внуков В.С.* Исследование методов обоснования ядерной безопасности при обращении с радиоактивными отходами, содержащими ядерные материалы // Известия вузов. Ядерная энергетика – 2001.- №4. - С.71-76.
2. *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.
3. A Modular Code System for performing Standardized Computer Analysis for Licensing Evaluation, NUREG/CR-0200. 1982.

Поступила в редакцию 03.04.2002

assessment practice, but may be employed in research projects. A comparison of chemical and radioactivity data with generic guideline values or quality criteria derived from toxicity data. Bioassays with material from the contaminated site as a supplement to chemical and radioactivity analysis.

#### **УДК 621.039.586:536.42**

*Numerical Modelling of Pin Meltdown in View of Molten Cladding Relocation in BN Reactor Core under beyond Design Accident* \ G.N. Vlasichev, G.B. Usinin; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering). - Obninsk, 2002. - 9 pages, 5 illustrations. - References, 9 titles.

The technique of account of emergency process of pin heating and melting is developed in view of molten cladding relocation at the termination of coolant flow in fuel assembly of the fast reactor with sodium coolant. The calculation analysis of meltdown process of separate most heat-stressed pin of central assembly in BN reactor core is executed in view of molten cladding relocation under beyond design accident with loss of power providing without operation of all means of effect on reactivity. In model of the given work evaporation of sodium in addition is taken into account. In result, the melting times of pin cladding and fuel are received in view of molten cladding relocation, freezing of its material on more cold pin sites and frozen crust melting. The fuel melting sequence on core height received as a result of previous cladding relocation to the bottom part of core, will result in occurrence and preservation during any of time of a configuration of pin materials in most heat-stressed assemblies, bringing in the greatest contribution in reactivity.

#### **УДК 621.039.5**

*Markov Chain with Rewards for Selection Most Significant Fission Products. General model* \ Yu. V. Volkov, O. B. Duginov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). - Obninsk, 2002. - 8 pages, 1 illustration, 1 table. - References, 4 titles.

The Markov model with rewards for description of isotope transitions is developed. The iterative method for determination the most significant route (strategies) of isotope transitions according to given criterion which bring the largest effect has been proposed.

#### **УДК 621.039.7**

*Norms of Criticality Safety at Handling with Wastes, Containing Plutonium and Uranium of Low Enrichment* \ S.S. Krechetov, V.S. Vnukov; Editorial board of Journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2002. – 5 pages, 7 tables. – References, 3 titles

Norms of criticality safety are determined at handling with the wastes containing plutonium and uranium of low enrichment. Calculations of the safe specific contents, the safe areal density are carried out at the analysis of nuclear safety of radioactive wastes. Various mixes of the radioactive wastes containing water, graphite, beryllium, dioxide silicon and others are considered. Recommended norms of criticality safety are given at handling with wastes.

#### **УДК 621.039.7:66.081.3**

*Experimental Investigation of Possibility of Concentrated Liquid Radwaste Disposal of  $^{137}\text{Cs}$  by Sorption Method with Following Immobilization of Sorbents into Geocement Rock* \ T.O. Mishevets, N.G. Bogdanovich, O.V. Starkov, E.E. Konovalov, D.L. Tyutyunnikov, V.P. Emelyanov, V.V. Molchanov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering). - Obninsk, 2002. - 5 pages, 1 table. - References, 8 titles.

The preliminary examinations on a technological regime of the discharge by inorganic sorbents from  $^{137}\text{Cs}$  of model and actual solutions IPPE concentrated liquid radioactive wastes (CLRW) are held. Three are explored such as sorbents: natural silica-alumina sorbent clinoptilolite, modified ions of sodium (KLN-Na) or copper and ferri ferrocyanides (KLN-FC); synthetic ferrocyanide sorbents Thermoxide-35 and NGS.

In experiments with usage of model solutions CLRW the prospects of applying for discharging concentrated liquid radioactive wastes by synthetic ferrocyanide Thermoxide-35 and NGS is affirmed. The applying KLN for getter extraction of cesium is possible at the containment of salts