

РАСЧЕТ ОСТАТОЧНОГО ЭНЕРГОВЫДЕЛЕНИЯ В ОТРАБОТАВШЕМ ЯДЕРНОМ ТОПЛИВЕ И РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДАХ

О.Б. Дугинов

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



Разработан метод прямого расчета остаточного энерговыделения в отработавшем ядерном топливе и радиоактивных отходах, исходя из текущего изотопного состава. Данный метод позволяет представить информацию по энерговыделению нуклидов в виде табулированных данных, что упрощает задачу оценки энерговыделения.

ВВЕДЕНИЕ

Для успешного функционирования атомной энергетики, способной к долговременному и широкомасштабному развитию, необходимо решить ряд важных проблем. Одной из наиболее сложных и срочных задач является безопасное захоронение радиоактивных отходов (РАО), вновь образующихся и образованных в прошлом от реализации оборонных ядерных технологий и работы АЭС.

Риск, связанный с использованием ядерной энергии, обусловлен возможностью попадания различного количества радионуклидов в среду обитания. Поэтому на протяжении всего времени хранения РАО необходимо гарантировать обеспечение надежной изоляции отходов от окружающей среды, защиту настоящего и будущих поколений, биологических ресурсов от радиационного воздействия сверхустановленных пределов. Такая гарантия может быть обеспечена, если на всем сроке хранения отходов хранилище обеспечивает надежность захоронения. Одним из факторов, влияющих на целостность хранилища РАО, является тепловая и радиационная стойкость материалов хранилища или сред, в которых происходит захоронение РАО. Поэтому необходимо знать, контролировать и прогнозировать процессы тепловыделения в радиоактивных отходах и отработавшем ядерном топливе.

СУЩЕСТВУЮЩИЕ МЕТОДЫ РАСЧЕТА ОСТАТОЧНОГО ЭНЕРГОВЫДЕЛЕНИЯ

Для расчета остаточного энерговыделения в зависимости от времени выдержки топлива обычно используются различные аппроксимационные зависимости от простых до достаточно сложных, учитывающих предысторию облучения и доли деления на различных изотопах.

Мощность остаточного энерговыделения в топливе как функцию от времени расхолаживания t можно рассчитать

$$W_{\text{ост}}(T, t) = \int_0^T \frac{W(\tau)}{E_{\text{дел}}} f(\tau + t) d\tau, \quad (1)$$

где $W_{\text{ост}}(T, t)$ – мощность остаточного энерговыделения (Вт), T – время облучения топлива в реакторе (с), $E_{\text{дел}}$ – энергия на один акт деления делящегося материала (МэВ), τ – время начала процесса расхолаживания, $W(\tau)$ – история изменения мощности реактора за время T (Вт), $f(\tau + t)$ – аппроксимационная функция, определяющая скорость спада остаточного энерговыделения после единичного деления одного ядра тяжелого элемента (МэВ/с).

Существует достаточно много зависимостей $f(t)$ от простых, вида $2.66 \cdot t^{-1.2}$ (формула Вей-Вигнера), до сумм нескольких десятков экспонент. В работе [1] по методике разложения по экспоненциальным полиномам была свернута по периодам полураспада информация по большому количеству (порядка 500) цепочек распада различных продуктов деления. Функция, аппроксимирующая остаточное энерговыделение для единичного акта деления, представляется в виде:

$$f_i(t) = \sum_{j=1}^{31} A_{i,j} \exp(-L_j t), \quad 0,1 \text{ с} \leq t \leq 300 \text{ лет}, \quad (2)$$

здесь индекс i означает деление какого изотопа и под воздействием нейтрона какой энергии учитывается в остаточном энерговыделении; коэффициенты A и L получены путем аппроксимации суммой из 31-ой экспоненты табулированных данных [2] по остаточному энерговыделению. В работах [3, 4] было показано, что точность такой аппроксимации достаточно высока и лежит в пределах точности табулированных данных.

В целом для расчета энерговыделения в отработавшем топливе можно использовать аппроксимационные зависимости вида (2), но для расчета энерговыделения в радиоактивных отходах их использовать сложно, т.к. состав отходов может варьироваться в зависимости от технологии переработки, сроков хранения и т.д. Кроме того, источники образования отходов могут быть различными: реакторными и не реакторными.

Также следует отметить, что аппроксимации существуют только для продуктов деления, не учитывают энерговыделение от трансурановых элементов и выгорание продуктов деления в процессе кампании. Все это приводит к тому, что использование аппроксимационных зависимостей для расчета остаточного энерговыделения в облученном топливе приводит к занижению оценки (см. рис. 1).

Еще одна причина невозможности использовать для расчета остаточного энерговыделения в радиоактивных отходах аппроксимационных различных зависимостей – это невозможность осуществить привязку к единичному акту деления. Очень часто информация о режимах облучения, сроках хранения, способах переработки и т.д. утеряна или известна не в полном объеме. Все вышеперечисленное подталкивает к разработке нового метода расчета энерговыделения, который позволил бы рассчитывать энерговыделение в отработавшем топливе или РАО без использования аппроксимационных зависимостей, основываясь только на текущем изотопном составе.

МАРКОВСКИЕ ПРОЦЕССЫ С НЕПРЕРЫВНЫМ ВРЕМЕНЕМ И ДОХОДАМИ

В процессе эволюции нуклидного состава ядерного топлива превращения одних нуклидов в другие совершаются через случайные интервалы времени. Обозначим

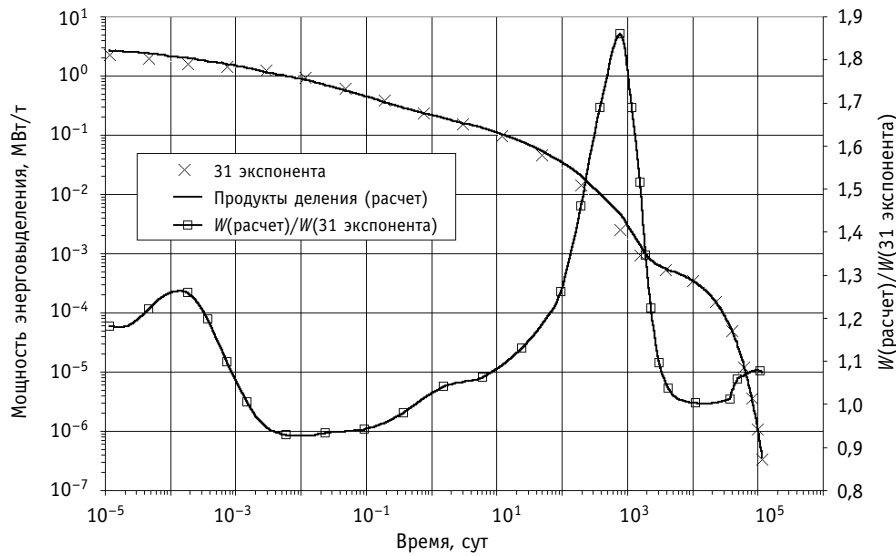


Рис.1. Энерговыделение продуктов деления

через a_{ij} скорость перехода нуклида i в нуклид j , когда $i \neq j$. Величины a_{ij} определяются следующим образом. За бесконечно малый интервал времени dt i -й нуклид будет совершать переход в нуклид j с вероятностью $a_{ij}dt$ ($i \neq j$). Вероятность двух или более переходов за время dt имеет порядок $(dt)^2$ или выше, и предполагается, что она бесконечно мала, если dt выбирается достаточно малым. Очевидна связь этого определения с обычными допущениями для пуассоновского процесса. Теперь можно описать марковский процесс с непрерывным временем [5] матрицей скоростей переходов A с компонентами a_{ij} , диагональные элементы которой определяются по формуле

$$a_{ii} = -\sum_{j \neq i} a_{ij}. \quad (3)$$

Предположим, что система нуклидов, описываемая марковским процессом с N состояниями, выделяет r_{ij} эВ энергии, когда исчезает нуклид i и образуется нуклид j . Величина r_{ij} называется доходом системы при переходе из состояния i в состояние j . Марковский процесс теперь порождает последовательность доходов, соответствующих переходам одного нуклида в другой. Доход является, таким образом, случайной величиной с распределением вероятностей, управляемой вероятностными связями марковского процесса [5]. Введем определение *непосредственно выделяемой энергии* и *полной выделяемой энергии*.

Непосредственно выделяемая энергия – это энергия, которая выделится при переходе нуклида i в любой другой нуклид j . Определяется следующим образом:

$$q_i = \sum_{j \neq i} a_{ij} r_{ij}, \quad (4)$$

где r_{ij} – энергия, которая выделяется при исчезновении нуклида i и образовании нуклида j .

Полная выделяемая энергия – это энергия, которая выделится за время t , если в системе есть стартовый нуклид i :

$$v_i(t+dt) = \left(1 - \sum_{i \neq j} a_{ij} dt\right) \cdot v_i(t) + \sum_{i \neq j} a_{ij} dt \cdot [r_{ij} + v_j(t)]. \quad (5)$$

Под полной выделяемой энергией понимается энергия, которую выделит целая цепочка последовательных ядерных превращений, порожденная i -м стартовым нуклидом.

Выясним, как получается уравнение (5). В течение интервала времени dt система может либо остаться в состоянии i , либо совершить переход в некоторое состояние j . Если она останется в состоянии i в течение времени dt , то выделится энергия $v_i(t)$, которую она принесет за оставшиеся t единиц времени. Вероятность того, что система останется в состоянии i в течение интервала dt равна 1 минус вероятность того, что за это время она совершит переход: $1 - \sum_{i \neq j} a_{ij} dt$. С другой стороны, за время dt

система может совершить переход в некоторое состояние $j \neq i$ с вероятностью $\sum_{i \neq j} a_{ij} dt$.

В этом случае выделится r_{ij} эВ энергии плюс энергия $v_j(t)$, которая будет получена за оставшееся время, если бы начальным было состояние j . Произведение вероятностей и доходов нужно просуммировать по всем состояниям $j \neq i$, чтобы получить полное значение выделенной энергии.

Используя соотношение (3), перепишем уравнение (5) следующим образом:

$$v_i(t+dt) = v_i(t) + a_{ii}v_i(t)dt + \sum_{j \neq i} a_{ij}r_{ij}dt + \sum_{j \neq i} a_{ij}v_j(t)dt.$$

Путем несложных преобразований это выражение можно привести к виду:

$$\frac{dv_i(t)}{dt} = q_i + \sum_{j=1}^N a_{ij}v_j(t), \quad i = 1, 2, \dots, N. \quad (6)$$

Таким образом, полная выделяемая энергия нуклида $v_i(t)$ удовлетворяет системе неоднородных дифференциальных уравнений с постоянными коэффициентами и определяется из нее, если известны $v_i(0)$.

МАТРИЦА ДОХОДОВ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ОСТАТОЧНОГО ЭНЕРГОВЫДЕЛЕНИЯ НУКЛИДОВ

Для описания процессов радиоактивного распада используется модель межизотопных переходов, предложенная в работе [6]. Для применения к построенной модели межизотопных переходов теории доходов, необходимо определить правила, по которым будет формироваться матрица доходов. В случае, если нас интересует в какой степени тот или иной нуклид влияет на энергосодержание, матрица доходов (R) для учитываемых реакций может быть задана в следующем виде: для β^- , β^+ , α -распадов и испускания γ -кванта или запаздывающего нейтрона доход r равен выделяемой при этом энергии — E_{β^-} , E_{β^+} , E_{α} , E_{γ} и E_n соответственно.

Определив доходы таким образом, можно оценить величину вклада каждого нуклида в остаточное энергосодержание.

Как упоминалось, суммарную энергию, которую нуклид выделил к моменту времени t , можно определить по формуле (6). Под термином «суммарная энергия нуклида» понимается энергия, которую выделила целая цепочка последовательных ядерных превращений, порожденная этим нуклидом (стартовым) [6].

Обычно под радиационными характеристиками нуклидов понимают величины, характеризующие отдельный нуклид как источник α -, β -, γ -излучения в момент времени t . Применение теории марковских цепей с доходами позволяет взглянуть под другим углом на понятие «радиационная характеристика нуклида», а именно, рассмотреть не отдельно взятый нуклид, а всю цепочку ядерных превращений, порожденную данным нуклидом. Такой подход заметно упрощает задачу оценки энергосодержания,

т.к. позволяет представить информацию по энерговыделению нуклидов в виде табулированных данных, нормированных на одно ядро стартового нуклида.

Для расчета суммарной энергии нуклида необходимо знать энергию, которая выделяется при переходе нуклида i в любой другой нуклид j , определяемую по формуле (4). Это средняя энергия, выделяемая в результате радиоактивного распада. Если быть точным, то величина, определяемая по формуле (4) и приводимая в различных библиотеках ядерных данных, это средняя энергия радиоактивного распада, складывающаяся из средних энергий трех основных типов распада: \bar{E}_β , \bar{E}_α и \bar{E}_γ . Сумма этих трех составляющих и дает значение энергии (за исключением энергии нейтрино), выделяемой при распаде. Эти три составляющих можно определить так:

$$\bar{E}_\beta = E_{\beta^-} + E_{\beta^+} + E_{\bar{\nu}}$$

$$\bar{E}_\alpha = E_\alpha + E_{SF} + E_p + E_n$$

$$\bar{E}_\gamma = E_\gamma + E_{x-ray} + E_{ann.rad}$$

где \bar{E}_β – средняя энергия, выделяемая при β^- , β^+ -распаде и e^- захвате соответственно; \bar{E}_α – средняя энергия, выделяемая при α -распаде, спонтанном делении тяжелых ядер, испускании протонов и запаздывающих нейтронов соответственно; \bar{E}_γ – средняя энергия, выделяемая за счет γ -излучения, рентгеновского излучения и аннигиляции.

РАСЧЕТ ОСТАТОЧНОГО ЭНЕРГОВЫДЕЛЕНИЯ

В работах [3, 4] было показано, что аппроксимация остаточного энерговыделения суммой из 31 экспоненты находится в хорошем соответствии с табулированными данными по остаточному энерговыделению. Поэтому верификацию разработанного метода прямого расчета остаточного энерговыделения проведем в сравнении с 31 экспонентой. На рис.1 представлены результаты расчета остаточного энерговыделения продуктов деления в 1 т топлива реактора ВВЭР-1000 после 1 года нахождения в активной зоне и относительное отличие результатов. Поскольку аппроксимационные зависимости учитывают энерговыделение только продуктов деления, то для корректного сравнения результатов были учтены порядка 900 продуктов деления.

Видно, что результаты, полученные по разработанной методике, качественно совпадают с аппроксимационной зависимостью. Необходимо отметить, что в большинстве зависимостей для оценки остаточного энерговыделения не учитывают трансмутацию нуклидов за счет поглощения нейтронов. В реальных условиях изотопный состав ядерного топлива заметно изменяется за счет захвата нейтронов, что не может не сказаться на оценке остаточного энерговыделения. Все это приводит к тому, что использование аппроксимационных зависимостей для расчета тепловыделения в облученном ядерном топливе приводит к заметному занижению оценки на определенных интервалах времени. Так, сразу после быстрого сброса мощности реактора (например, в результате срабатывания аварийной защиты) аппроксимационная зависимость занижает энерговыделение на 25%. Максимальное отличие в 1.85 раза наблюдается через 2,5 года выдержки, что также согласуется с результатами работ [4, 7] (1.35 и 1.4 соответственно). Большее отличие результатов данной работы обусловлено тем, что учитывалось порядка 900 продуктов деления, в то время как в других работах количество учитываемых нуклидов не превышало 300.

Погрешность полученных результатов обусловлена, главным образом, неточностью данных по периодам полураспада и энерговыделению нуклидов, которая лежит в пределах 5%. Отметим, что для решения системы (6) применяется экспоненциаль-

ный метод, основанный на точном представлении решения в аналитической форме и вычислении матричной экспоненты. Этот метод особенно эффективен для жестких систем уравнений и позволяет получать результаты с точностью 1–3% (применительно к данной задаче).

Зависимость мощности энерговыделения от времени выдержки для продуктов деления, актинидов и всего топлива показана на рис. 2.

Из рисунка следует, что в течение 250 лет выдержки уровень энерговыделения

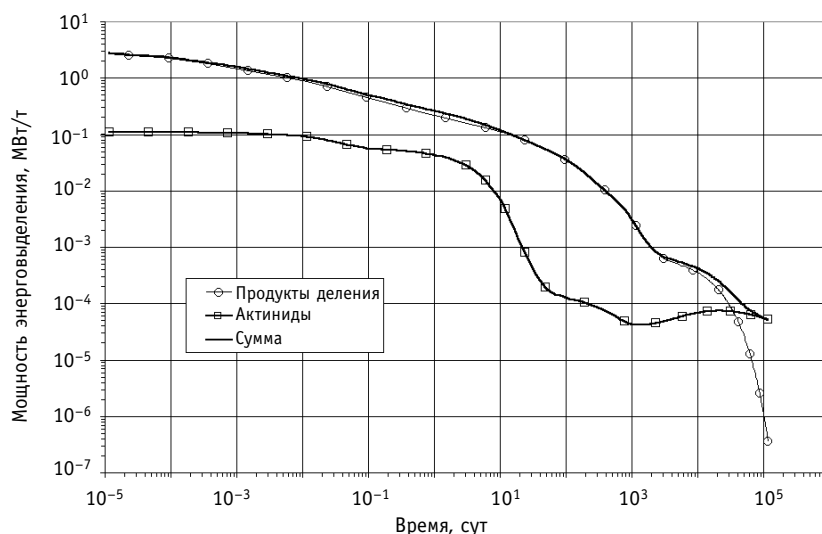


Рис. 2. Зависимость мощности энерговыделения от времени выдержки для продуктов деления, актинидов и всего топлива

определяют продукты деления, а после этого периода времени доминируют актиниды. Графики подтверждают тот факт, что в процессе облучения топлива за счет захвата на уране образуется достаточное количество нестабильных актинидов, вклад которых в остаточное энерговыделение может оказаться значительным и пренебрегать им нельзя. Этот вклад неравномерен и существенным образом зависит от типа используемого топлива, в частности, от обогащения и времени облучения. Существующие аппроксимационные зависимости этого не учитывают.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Наиболее точная оценка остаточного энерговыделения отработавшего ядерного топлива и радиоактивных отходов может быть получена только в результате прямого расчета. Аппроксимационные зависимости дают заниженные результаты, применимые только при условии точного знания режимов облучения топлива, не учитывают процессов трансмутации и выделения тепла от актинидов и не могут быть использованы для корректного моделирования остаточного энерговыделения.

Разработанный метод прямого расчета остаточного энерговыделения позволяет провести расчет, исходя из текущего изотопного состава. Представление информации по энерговыделению нуклидов в виде табулированных данных унифицирует и заметно упрощает задачу оценки тепловыделения в отработавшем ядерном топливе или радиоактивных отходах.

Литература

1. Fission Product Decay Power – AESJ Recommendation, 1992.
2. Nuclear Data Center JAEA. http://www.ndc.tokai.jaeri.go.jp/DHTable/index_E.html.
3. Даниловский И.В., Карпов В.А. К выбору эмпирических зависимостей для расчета остаточного тепловыделения продуктов деления различных делящихся нуклидов: Препринт ИАЭ-5092/4. – М., 1990.
4. Давиденко В.Д., Цибульский В.Ф. Детальный расчет остаточного энерговыделения: Препринт ИАЭ-6256/5. – М., 2002.
5. Ховард Р. Динамическое программирование и марковские процессы – М.: Сов. радио, 1964.
6. Дугинов О.Б. Марковская модель эффективного осколка деления/Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата технических наук. – Обнинск: ИАТЭ, 2004.
7. Tasaka K. Effects of Neutron Capture Transformations on the Decay Power of Fission Products// Nucl. Sci. Eng. – 1977. – V. 62. № 1. – P. 167-174.

Поступила в редакцию 11.04.2006

УДК 621.039.54

Calculation of the Decay Power in Used Fuel and Radioactive Waste Products \O.B. Duginov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2006. – 7 pages, 2 illustrations. – References – 7 titles.

The method of direct calculation of the decay power in used fuel and radioactive waste products based on present isotopic composition is considered in this paper.

УДК 621.039.534

Heat Emission From Lead Heat-Transfer to Longitudinal Circulated Pipe \A.V. Beznosov, A.A. Molodtsov, A.V. Semyonov, A.V. Nazarov, S.U. Savinov, O.O. Kudrin, V.I. Rachkov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2006. – 8 pages, 6 illustrations. – References – 1 title.

The results of experimental research of the local characteristics of the heat emission from the lead heat-transfer to longitudinal circulated cooled pipe placed in annular gap are presented. Experimental investigations were conducted under conditions of change and control of oxygen admixture concentration in the range of conditions typical for heavy liquid metal coolant power circuits. The research target is valid design formulas for engineering calculation of the heat-exchange surfaces. The investigations were carried out under following conditions: lead temperature 400-500°C, coolant average speed 0.1-1.5 m/s, Pr number meaning 0.0123-0.021, Pe number meaning 500-700. The heat flow changes were in range 35-80KW/m². The controlled oxygen admixture concentration was changed in range 10⁻⁵-10⁻⁴ to 10⁰ thermodynamic oxygen activity and above the oxygen admixture saturation caused plumbic ochre deposition on heat-exchange surface.

УДК 621.039.51

Some Results of Experimental Investigations of Boiling Crisis at the Low and Negative Coolant Discharge \S.M. Dmitriev, A.A. Kokurin, D.G. Kresov, A.V. Kuprijanov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2006. – 6 pages, 4 illustrations. – References – 8 titles.

The preliminary analysis of results received at experimental investigations of boiling crisis under conditions of the direct and reverse water discharge through simplified model of heat-generating assembly is submitted.

УДК 61:544.582

Radionuclide Impurities in Albumin ¹⁶⁶Ho-Microspheres Irradiated by Thermal Neutrons \V.M. Petriev, M.Yu. Orlov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). – Obninsk, 2006. – 8 pages, 3 illustrations, 5 tables. – References – 18 titles.

State Institution Medical Radiological Research Center RAMS, Obninsk, Russia

The possibility is demonstrated to obtain albumin micro-spheres labeled with ¹⁶⁶Ho. These micro-spheres are the potential preparation for intra-tissue radionuclide therapy of malformations. The labeled micro-spheres are obtained from the micro-spheres containing stable ¹⁶⁵Ho. The activities are estimated of other radionuclides which can be formed during thermal neutron irradiation of micro-spheres. The activity of ¹⁶⁶Ho is growing with the increase of stable ¹⁶⁵Ho concentration in the micro-spheres and with the irradiation time increase.

It was demonstrated that the activities all other radioactive impurities formed are negligible in comparison with ¹⁶⁶Ho activity. The calculations were performed for ¹⁶N, ¹⁹O, ²⁰F, ³⁷S, ³⁸Cl, ¹⁶²Tb, ³³P, ³⁵S, ³H, ^{166m}Ho. The radiochemical admixtures which generated by the neutron activation of lanthanides containing in the used Ho are insignificant also

The irradiation time was estimated which is necessary for the activity equal to 80% from the saturation activity. This time is equal to 3 – 4 days for neutron flux density equal to 5.10¹³ 1/cm².s.

The low values of impurity activity is connected with the low activation cross sections and low abundance of these nuclides.