

УДК 539.173.4

РАСЧЕТ НЕЙТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ В ОТРАБОТАВШЕМ ЯДЕРНОМ ТОПЛИВЕ РЕАКТОРА ВВЭР-1200

© 2020 г. А. М. Петровский¹, *, Т. Н. Корбут¹, Э. А. Рудак¹, М. О. Кравченко¹

¹Государственное научное учреждение “Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны”
Национальной академии наук Беларуси, Минск, Республика Беларусь

*E-mail: apetrovski@sosny.bas-net.by

Поступила в редакцию 11.05.2020 г.

После доработки 02.06.2020 г.

Принята к публикации 26.06.2020 г.

Представлены результаты расчетов нейтронной активности отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) стационарных кампаний реакторов ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200 за счет реакций спонтанного деления и реакций (α, n). Получена аналитическая зависимость среднего числа образующихся в ОЯТ нейтронов, приходящихся на одну α -частицу в зависимости от энергии α -частицы. Нейтронная активность ОЯТ ВВЭР-1200 в несколько раз превышает значение для ВВЭР-1000 в первую очередь из-за увеличения наработки изотопа ^{244}Cm в топливе высокого выгорания.

DOI: 10.31857/S036767652010018X

ВВЕДЕНИЕ

Обращение с отработавшим ядерным топливом (ОЯТ) – важнейший вопрос, затрагивающий не только обеспечение ядерной и радиационной безопасности, но и проблему замыкания ядерного топливного цикла [1], являющуюся одной из ключевых в вопросах развития ядерной энергетики. Обращение с ОЯТ – один из наиболее значимых вопросов, привлекающих внимание экологических организаций и населения, что в современном мире представляет исключительную значимость и во многом определяет отношение к ядерной энергетике и ее развитию в различных странах и регионах.

ОЯТ характеризуется высоким уровнем радиоактивности. Продукты деления распадаются за счет β -распадов с сопутствующим γ -излучением. Актиниды в основном являются α -распадчиками. С малой вероятностью актиниды могут распадаться за счет спонтанного деления, при этом испуская в среднем 2–3 нейтрона [2], это обуславливает основную нейтронную активность ОЯТ в первые десятилетия после окончания топливной кампании [3]. В то же время, существенная нейтронная активность создается за счет (α, n) реакций на ядрах кислорода, входящего в состав уранового топлива UO_2 [3].

В представленной работе исследована нейтронная активность отработавшего топлива стационарной кампании реактора ВВЭР-1200, в сравнении с аналогичными расчетами для реактора ВВЭР-1000.

ВКЛАД РЕАКЦИЙ СПОНТАННОГО ДЕЛЕНИЯ В НЕЙТРОННУЮ АКТИВНОСТЬ ОЯТ

Основными нуклидами, вносящими значимый вклад в нейтронную активность за счет спонтанного деления, являются ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{242}Cm , ^{244}Cm . Справочные данные по этим нуклидам представлены в табл. 1 [4]. В табл. 2 представлены данные по наработке данных нуклидов в реакторах ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200 [5–7].

Обращает внимание сильное увеличение наработки изотопа ^{244}Cm в реакторе ВВЭР-1200, по сравнению с реактором ВВЭР-1000. Изотоп ^{244}Cm нарабатывается по цепочке: $^{238}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow ^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{241}\text{Pu} \rightarrow ^{242}\text{Pu} \rightarrow ^{243}\text{Am} \rightarrow ^{244}\text{Cm}$ путем последовательного захвата шести нейтронов. Ско-

Таблица 1. Основные нуклиды, вносящие вклад в нейтронную активность ОЯТ за счет спонтанного деления [4]

Нуклид	$T_{1/2}(\alpha)$, лет	Доля спонтанных делений χ_i	Число нейтронов на одно деление
^{238}Pu	87.7	$1.86 \cdot 10^{-9}$	2.2
^{240}Pu	6561	$5.7 \cdot 10^{-8}$	2.2
^{242}Pu	$3.73 \cdot 10^5$	$5.5 \cdot 10^{-6}$	2.2
^{242}Cm	0.446	$6.1 \cdot 10^{-7}$	2.5
^{244}Cm	18.11	$1.38 \cdot 10^{-6}$	2.73

Таблица 2. Нарботка актинидов, вносящих значимый вклад в нейтронную активность в ОЯТ реакторов ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200 [5–7]

Нуклид	m_{1000} , кг · г ⁻¹	m_{1200} , кг · г ⁻¹	A_{1000} , Бк · г ⁻¹	A_{1200} , Бк · г ⁻¹
²³⁸ Pu	0.18	0.62	$1.88 \cdot 10^{14}$	$6.46 \cdot 10^{14}$
²³⁹ Pu	6.94	7.15	$2.63 \cdot 10^{13}$	$2.71 \cdot 10^{13}$
²⁴⁰ Pu	2.28	3.45	$3.18 \cdot 10^{13}$	$4.81 \cdot 10^{13}$
²⁴² Pu	0.441	1.48	$1.08 \cdot 10^{11}$	$3.62 \cdot 10^{11}$
²⁴¹ Am	0.045	0.08	$9.5 \cdot 10^{12}$	$1.69 \cdot 10^{13}$
²⁴² Cm	0.014	0.041	$2.87 \cdot 10^{15}$	$8.41 \cdot 10^{15}$
²⁴⁴ Cm	0.038	0.286	$1.92 \cdot 10^{14}$	$1.45 \cdot 10^{15}$

рость наработки каждого последующего нуклида цепочки зависит от фактического количества предшествующего элемента. Таким образом, существенная величина скорости наработки определенного элемента цепочки возникает только после выстраивания всей цепочки его предшественников. Это приводит к тому, что ²⁴⁴Cm имеет сильно выраженную нелинейную динамику наработки.

Нейтронная активность за счет спонтанных делений

$$A_n(t) = \sum_i \chi_i \cdot A_i e^{-\lambda_i t}, \quad (1)$$

где χ_i – вероятность спонтанного деления, A_i – активность, λ_i – постоянная распада i -того нуклида.

Графики нейтронной активности за счет спонтанных делений в зависимости от времени выдержки отработавшего топлива стационарных кампаний реакторов ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200 представлены на рис. 1. Динамичный процесс в начале хранения обусловлен быстрым распадом изотопа ²⁴²Cm.

При выгораниях $40 \text{ МВт} \cdot \text{сут} \cdot \text{г}^{-1}$ реактора ВВЭР-1000 и $70 \text{ МВт} \cdot \text{сут} \cdot \text{г}^{-1}$ реактора ВВЭР-1200 нейтронные активности за счет спонтанного деления в первые 100 лет выдержки отличаются в 6–7 раз. Основной вклад в нейтронную активность – спонтанное деления ²⁴⁴Cm.

ВКЛАД РЕАКЦИЙ (α, n) В НЕЙТРОННУЮ АКТИВНОСТЬ ОЯТ

Значительная нейтронная активность создается также за счет (α, n) реакций на кислороде, входящим в состав уранового топлива UO₂. Сечения радиационного захвата (n, γ) ядер ¹⁶O, ¹⁷O, ¹⁸O пренебрежимо малы (сотые доли барна и ниже) [8], поэтому изменением соотношения различных изотопов кислорода в течение работы реактора можно пренебречь. Реакция ¹⁶O(α, n)¹⁹Ne имеет порог, превышающий энергию α -распадов, поэтому в ОЯТ она не идет. В основном нейтроны

образуются за счет реакции ¹⁸O(α, n)²¹Ne, доля ¹⁸O в природном кислороде составляет 0,2% [9]. Содержание ¹⁷O в природном кислороде значительно ниже и составляет 0.038%, иначе говоря, на 5 атомов ¹⁸O приходится примерно 1 атом ¹⁷O. Сечения реакций (α, n) в диапазоне возможных энергий α -частиц у ¹⁷O и ¹⁸O сопоставимы (рис. 2) [8], поэтому реакцию ¹⁷O(α, n)²⁰Ne также необходимо учитывать. В диапазоне возможных энергий α -частиц, изменение сечения реакций (α, n) имеет приблизительно линейный характер, что позволяет применить аппроксимацию функцией данного вида. Результаты линейных аппроксима-

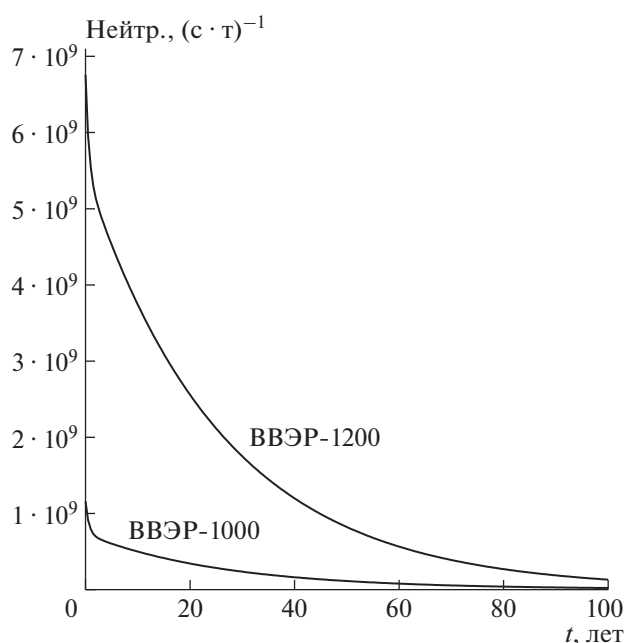


Рис. 1. Зависимости нейтронной активности за счет реакций спонтанного деления от времени хранения ОЯТ для отработавшего топлива стационарных кампаний реакторов ВВЭР 1000 и ВВЭР 1200.

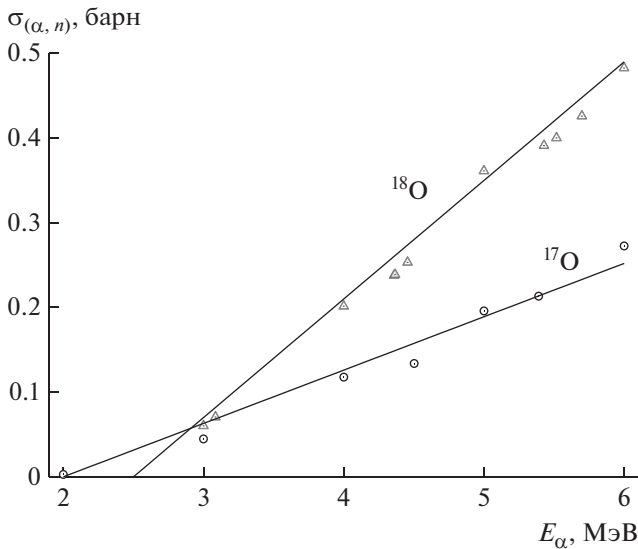


Рис. 2. Сечение реакций (α, n) на изотопах ^{17}O и ^{18}O [7].

ций зависимостей сечений реакций (α, n) на ^{17}O и ^{18}O — формулы (2) и (3) соответственно

$$\sigma_{(\alpha, n)}^{17\text{O}} = 0.063E_{\alpha} - 0.126 \text{ (барн)}, \quad (2)$$

$$2 \text{ МэВ} \leq E_{\alpha} \leq 6 \text{ МэВ},$$

$$\sigma_{(\alpha, n)}^{18\text{O}} = 0.063E_{\alpha} - 0.126 \text{ (барн)}, \quad (3)$$

$$2.5 \text{ МэВ} \leq E_{\alpha} \leq 6 \text{ МэВ},$$

где E_{α} — кинетическая энергия α -частицы. Ниже указанных диапазонов считаем, что сечения равны нулю.

В процессе замедления α -частица теряет энергию небольшими порциями (при энергии 5 МэВ требуется порядка $\sim 10^4$ актов ионизации для замедления α -частицы), поэтому можно считать, что она теряет энергию непрерывно, создавая флюенс во всем диапазоне возможных энергий от начальной до нуля. Пробег α -частицы в твердом веществе составляет единицы микрон, это позволяет считать, что рожденная в среде α -частица создает флюенс во всем диапазоне энергий приблизительно в точке своего рождения.

Согласно формуле Бете [10] линейные потери энергии нерелятивистской α -частицы равны

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi z_{\alpha}^2 n_e r_0^2 m_e c^2}{\beta^2} \times \left[\ln \left(\frac{2m_e c^2 \beta^2}{\bar{J}} \right) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 \right], \quad (4)$$

где $\bar{J} = 13.5Z_{\text{эфф}}$ — средний ионизационный потенциал (эВ), $Z_{\text{эфф}}$ — эффективный заряд вещества, m_e — масса электрона, $z_{\alpha} = 2$ — заряд α -частицы в единицах заряда электрона, r_0 — классиче-

ский радиус электрона, ρ — плотность вещества ($\text{г} \cdot \text{см}^{-3}$), $\beta = v/c$ — скорость α -частицы в единицах скорости света.

В [11] приведена удобная для численных расчетов формула

$$-\frac{dE}{dx} = 3.1 \cdot 10^{-2} \frac{z_{\alpha} \rho Z_{\text{эфф}}}{\beta^2 A_{\text{эфф}}} \times \left[11.2 + \ln \left(\frac{\beta^2}{Z_{\text{эфф}}(1 - \beta^2)} \right) - \beta^2 \right] \text{ МэВ} \cdot \text{м}^{-1}, \quad (5)$$

где $A_{\text{эфф}}$ — эффективное массовое вещества, ρ — плотность топлива в $\text{кг}/\text{м}^3$. Отношение $Z_{\text{эфф}}/A_{\text{эфф}}$ — величина, которая изменяется значительно меньше, чем каждый из параметров $Z_{\text{эфф}}$ или $A_{\text{эфф}}$ в отдельности ($Z_{\text{эфф}}/A_{\text{эфф}}$ при максимальном выгорании топлива $70 \text{ МВт} \cdot \text{сут} \cdot \text{т}^{-1}$ изменится на величину $\sim 0.7\%$), что позволяет без значимых потерь пренебречь изменением состава топлива в процессе выгорания.

Флюенс α -частиц энергии E_{α} (в диапазоне от E_{α} до $E_{\alpha} + dE_{\alpha}$) определяется как суммарный пробег частиц данной энергии к объему, в котором происходил пробег. Поскольку постановка задачи требует нахождения флюенса в единице массы ОЯТ (мы находим число нейтронов, рождающихся в единицу времени в единице массы топлива в результате реакции (α, n)), это позволяет исключить из рассмотрения плотность вещества, перейдя к массе как $\rho = m_{\text{T}}/V_{\text{T}}$, индекс “Т” означает, что величина относится к топливу.

В формуле (5) перейдем от скорости $\beta = v/c$ к энергии E_{α}

$$-\frac{dE}{dx} = 3.1 \cdot 10^{-2} \frac{E_{0\alpha} m_{\text{T}} Z_{\text{эфф}}}{E_{\alpha} V_{\text{T}} A_{\text{эфф}}} \times \left[11.2 + \ln \left(\frac{2E_{\alpha}}{Z_{\text{эфф}}(E_{0\alpha} - 2E_{\alpha})} \right) - \frac{2E_{\alpha}}{E_{0\alpha}} \right]. \quad (6)$$

Из формулы (6) получаем выражение для распределения флюенса по энергиям dx/V_m (минус в данном случае можно опустить)

$$\frac{dx}{V_{\text{T}}} = \frac{dE}{\varphi(E_{\alpha})}, \quad (7)$$

где с учетом $E_{\alpha} \ll E_{0\alpha} = M_{\alpha} c^2$

$$\varphi(E_{\alpha}) = 3.1 \cdot 10^{-2} \frac{E_{0\alpha} m_{\text{T}}}{E_{\alpha}} \times \frac{Z_{\text{эфф}}}{A_{\text{эфф}}} \left[11.2 + \ln \left(\frac{2E_{\alpha}}{Z_{\text{эфф}} E_{0\alpha}} \right) \right]. \quad (8)$$

Функцию $\varphi(E_\alpha)$ можно переписать, вычислив константы и рассчитав значения $Z_{эфф}/A_{эфф}$ для UO_2 . Окончательно она примет вид

$$\varphi(E_\alpha) = \frac{5.8 \cdot 10^2}{E_\alpha} \times \left[11.2 + \ln\left(\frac{E_\alpha}{4.0}\right) \right] \text{ МэВ} \cdot \text{м}^2 \cdot \text{кг}^{-1}, \quad (9)$$

где E_α в МэВ.

$1/\varphi(E_\alpha)$ согласно (7) показывает величину элементарного флюенса, создаваемого одной α -частицей в диапазоне энергий $(E_\alpha, E_\alpha + dE_\alpha)$. $1/\varphi(E_\alpha)$ представляет из себя практически линейную зависимость, ее аппроксимация методом наименьших квадратов приводит к функции простого вида

$$f(E_\alpha) = (1.41E_\alpha + 0.51) \cdot 10^{-4} \text{ МэВ}^{-1} \cdot \text{м}^{-2} \cdot \text{кг}, \quad (10)$$

отклонение аппроксимации (10) от $1/\varphi(E_\alpha)$ не превышает 1.5%. С учетом (10), выражение (7) можно переписать

$$\frac{dx}{V_T} = (1.41E_\alpha + 0.51) \cdot 10^{-4} dE, \quad (11)$$

Количество реакций (α, n) на один α -распад на ядрах X

$$N_{1\alpha}^X = \int_{E'}^{E_{0\alpha}} N_X f(E) \sigma_{(\alpha,n)}^X dE = N_X \cdot 10^{-4} \int_{E'}^{E_{0\alpha}} (1.41E + 0.51) \sigma_{(\alpha,n)}^X dE, \quad (12)$$

где N_X – число ядер X в килограмме топлива UO_2 , E' – начало диапазона интегрирования, при котором сечение реакции отлично от нуля (2 МэВ для ^{17}O и 2.5 МэВ для ^{18}O) (рис. 2).

Подставив сечения (2), (3), а также вычислив N_{17O} и N_{18O} с учетом их содержания в природном кислороде, проинтегрировав (12) получим выражение для количества нейтронов, образующихся в ОЯТ на одну α -частицу с энергией E_α

$$v(E_\alpha) = 3.86 \cdot 10^{-8} \times (1 - 0.167E_\alpha - 0.207E_\alpha^2 + 0.051E_\alpha^3), \quad (13)$$

Выражение (13) можно упростить, аппроксимировав его квадратичной функцией

$$v(E_\alpha) = (2.52E_\alpha^2 - 19.28E_\alpha + 38.71) \cdot 10^{-8}, \quad (14)$$

максимальное отклонение между (13) и (14) в диапазоне энергий 5.2–6.2 МэВ составляет 0.13%.

Следует отметить, что при различии энергий α -частиц $\sim 19\%$ (5.2 и 6.2 МэВ) среднее число образующихся за их счет нейтронов отличается более чем в 2 раза (формула (14)), поэтому усреднять

энергии α -частиц и затем применять (14) было бы некорректно.

Анализируя методику получения выражения (14) можно заметить, что основным источником возможных погрешностей является точность определения сечений реакций (α, n) в библиотеках ядерных данных (рис. 2), данная погрешность является неустранимой, а представленная методика по точности практически не уступает численным расчетам с помощью Монте-Карло кодов. Формула Бете на рассматриваемом диапазоне энергии является практически точной [12].

Нейтронная активность за счет реакций (α, n)

$$A_{(\alpha,n)}(t) = \sum_i v(E_{\alpha,i}) \cdot A_i, \quad (15)$$

где A_i – активность, $E_{\alpha,i}$ – энергия α -распада i -того нуклида.

Представленные в табл. 2 нуклиды, за исключением ^{241}Am , распадаются по экспоненциальному закону, ^{241}Am нарабатывается за счет β -распада ^{241}Pu , поэтому динамика его изменения описывается чуть сложнее

$$A(^{241}Am, t) = \alpha \cdot A_0(^{241}Pu) \cdot e^{-\lambda(^{241}Pu)t} + [A_0(^{241}Am) - \alpha \cdot A_0(^{241}Pu)] \cdot e^{-\lambda(^{241}Am)t}, \quad (16)$$

где $\alpha = \frac{\lambda(^{241}Am)}{\lambda(^{241}Am) - \lambda(^{241}Pu)}$.

Начальные активности ^{241}Pu в отработавшем топливе реакторов ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200 равны соответственно: $5.86 \cdot 10^{15}$ и $8.64 \cdot 10^{15}$ Бк \cdot т $^{-1}$ [5].

Зависимости нейтронной активности за счет (α, n) реакций от времени хранения ОЯТ для отработавшего топлива стационарных кампаний реакторов ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200 представим на рис. 3а, на рис. 3б показана суммарная нейтронная активность за счет спонтанного деления и (α, n) реакций. Динамичные участки в первые 2–2.5 года, как и в случае спонтанного деления, обусловлены распадом высокоактивного ^{242}Sm . В это время топливо находится в бассейне выдержки, поэтому данный изотоп не ставит дополнительных проблем при обращении с ОЯТ.

На рис. 4 представлен относительный вклад изотопов юрия (^{242}Sm и ^{244}Sm) в суммарную нейтронную активность. Как можно видеть, практически вся нейтронная активность в первые десятилетия хранения ОЯТ реактора ВВЭР-1200, как за счет спонтанного деления, так и за счет реакций (α, n) обеспечивается изотопами юрия. Проблема сильного увеличения нейтронной активности, как показали представленные расчеты, будет актуальна для уранового топлива высокого выгорания.

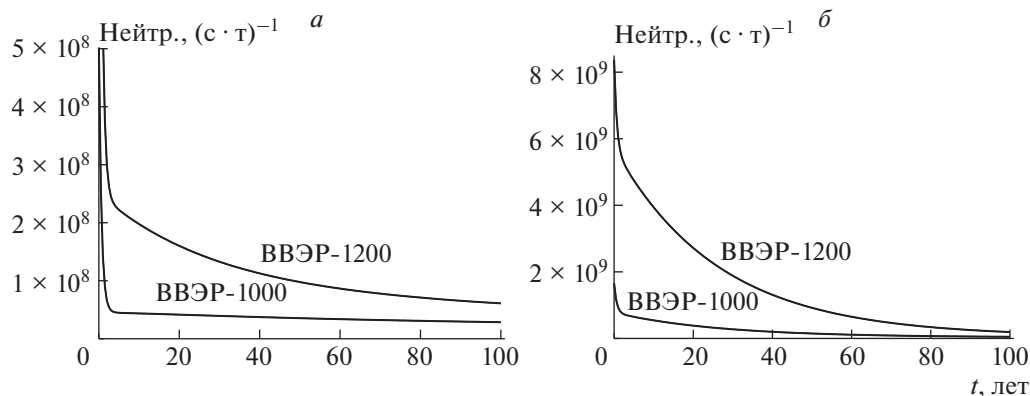


Рис. 3. Зависимости нейтронной активности за счет (α, n) реакций (а) и суммарной нейтронной активности (б) от времени хранения ОЯТ для отработавшего топлива стационарных кампаний реакторов ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200.

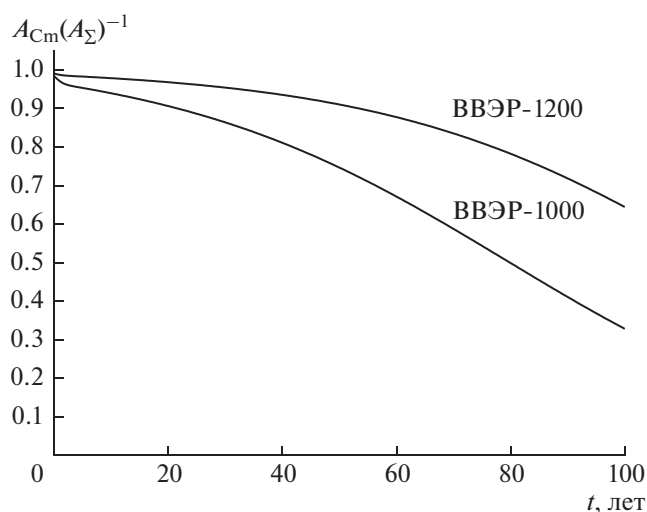


Рис. 4. Относительный вклад изотопов кюрия ^{242}Cm и ^{244}Cm в суммарную нейтронную активность.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Получены нейтронные активности ОЯТ реакторов ВВЭР-1000 и ВВЭР-1200 за счет спонтанного деления и реакции (α, n) .

Для расчета нейтронной активности ОЯТ за счет (α, n) была применена аналитическая методика, точность которой практически не уступает численным расчетам. Показано, что среднее число нейтронов, образующихся на один α -распад в ОЯТ практически полностью определяется только энергией α -частицы.

В реакторе ВВЭР-1200 при выгорании $70 \text{ МВт} \cdot \text{сут} \cdot \text{т}^{-1}$, изотоп ^{244}Cm нарабатывается в количествах на порядок превышающие его наработку в реакторе ВВЭР-1000. Данный изотоп вносит основной вклад в нейтронную активность ОЯТ в первые десятилетия хранения топлива.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kazim M., Moniz E.J., Forsberg C.W. et al. The future of nuclear power cycle. Cambridge: MIT, 2011. 240 p.
2. Otuka N., Dupont E., Semkova V. et al. // Nucl. Data Sheets. 2014. V. 120. P. 272.
3. Oku T., Iijima Sh., Naito Y. et al. Data book for calculating neutron yields from (α, n) reaction and spontaneous fission. JAERI-1324, 1992. 268 p.
4. <https://www.oecd-nea.org/dbdata/jeff/jeff33/index.html>.
5. Piatrouski A., Rudak E., Korbut T., Kravchenko M. // J. Phys. Conf. Ser. 2018. V. 1133. Art. № 012009.
6. Петровский А.М., Рудак Э.А., Корбут Т.Н. // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. С. 108; Petrovskii A.M., Rudak E.A., Korbut T.N. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. P. 1335.
7. Петровский А.М., Рудак Э.А., Корбут Т.Н. // Яд. физ. и инжиниринг. 2017. Т. 8. С. 118.
8. Rochman D., Koning A.J., Sublet J.Ch. et al. // Proc. Int. Conf. on Nucl. Data for Sci. and Tech. (Bruges, 2016).
9. <https://periodictable.com/Isotopes/008.17/index.wt.html>.
10. Bethe H., Ashkin J. // in: Experimental nuclear physics. N.Y.: J. Wiley, 1953. P. 253.
11. <http://nuclphys.sinp.msu.ru/partmat/pm01.htm>.
12. Nikjoo H., Uehara Sh., Emfietzoglou D. Interaction of radiation with matter. Boca Raton: CRC Press, 2012.