

## Дослідження поведінки системи з відпрацьованим ядерним паливом у понадпроектний період зберігання

Проаналізовано зміну ізотопного складу актиноідів і джерел нейтронів у відпрацьованому ядерному паливі та зміну коефіцієнта розмноження нейтронів в період часу до 1000 років. Зроблено висновки щодо особливостей поведінки палива на такий тривалий період. Показано важливість проведення розрахунку критичності з урахуванням кредиту вигорання для формування завантаження палива на подальше зберігання.

Ключові слова: відпрацьоване ядерне паливо, ВВЕР, понадпроектний період, ізотопний склад, джерела нейтронів, кредит вигорання.

В. В. Гальченко

### Исследование поведения системы с отработанным ядерным топливом в сверхпроектный период хранения

Дан анализ изменения изотопного состава актиноидов и источников нейтронов в отработанном ядерном топливе, а также изменения коэффициента размножения нейтронов на период времени до 1000 лет. Сделаны выводы по особенностям поведения топлива на такой длительный период. Показана важность выполнения расчетов критичности с учетом кредита выгорания для формирования загрузки топлива на последующее хранение.

Ключевые слова: отработанное ядерное топливо, ВВЭР, сверхпроектный период, источники нейтронов, изотопный состав, кредит выгорания.

© В. В. Гальченко, 2017

Стратегією поводження з відпрацьованим ядерним паливом (ВЯП) в Україні передбачається його довготривале (протягом 100 років) «сухе» зберігання (стратегія «відкладеного» рішення). У деяких країнах, наприклад у Швейцарії, планується довгочасне зберігання у глибоких геологічних формаціях, на постійній основі, відповідним чином осклованих та розміщених у спеціальних контейнерах, відпрацьованих тепловидільних збірок (ВТВЗ) [1]. За «відкладеним» рішенням щодо тимчасового зберігання ВЯП стоїть або подальша переробка і утилізація ВЯП на спеціалізованому заводі, або подальший розвиток концепції постійного захоронення в глибоких геологічних формаціях.

Тому доцільно дослідити зміну коефіцієнта розмноження нейтронів протягом тривалого, більше 100 років, зберігання ВЯП, оскільки розпад актиноїдів, які накопилися в паливі, призводитиме до напрацювання ізотопів, які будуть як подільним матеріалом, так і поглиначами нейтронів, що й впливатиме на поведінку коефіцієнта розмноження.

**Постановка задачі.** Динаміці зміни коефіцієнта розмноження нейтронів у період витримки ВЯП до 100 років присвячено публікації [2–4] з урахуванням кредиту вигорання ВЯП. Показано, що перші 40 годин після зупинки реактора коефіцієнт розмноження у ВТВЗ зростає за рахунок  $\beta^-$ -розпаду  $^{239}\text{Np}$  і напрацювання  $^{239}\text{Pu}$ . Потім коефіцієнт розмноження нейтронів стабільно знижується протягом порядку 80 років внаслідок розпаду  $^{241}\text{Pu}$  (період напіврозпаду 14,4 року) і напрацювання  $^{241}\text{Am}$ . Після цього спостерігається тренд збільшення коефіцієнта розмноження нейтронів і його стабільне зростання для палива PWR на період до 10 000 років [2].

Виходячи з цього, подальше зростання коефіцієнта розмноження нейтронів для палива ВВЕР потребує дослідити його поведінку в період від 100 років витримки.

**Зміна параметрів системи в період витримки до 1000 років.** Зміна коефіцієнта розмноження нейтронів пов'язана зі зміною концентрації ізотопів, що діляться, з напрацюванням актиноїдів і продуктів поділу, які поглинають нейтрони, та наявністю джерел нейтронів. Щоб дослідити зміну зазначених характеристик з часом витримки, проведено серію розрахунків для ВТВЗ реакторів типу ВВЕР-1000.

У розрахунках зміни ізотопного складу та зміни джерел нейтронів з урахуванням часу витримки використано модуль ORIGEN-S [5] системи кодів SCALE-5 [6]. Розрахунки проводились як для ТВЗ реакторів типу ВВЕР-1000 зі сталевими напрямними каналами, так і для ТВЗА.

Поділ нейтронів обумовлюється створенням кількох умов, основні з яких — наявність подільного матеріалу та наявність джерел нейтронів. У відпрацьованому ядерному паливі джерелами нейтронів є нейтрони спонтанного поділу і нейтрони, які виникають у результаті  $(\alpha, n)$ -реакції. Зміну виходу відносної кількості нейтронів у реакції кожного типу у ВЯП наведено на рис. 1.

У перші 100 років кількість нейтронів (в абсолютних одиницях) від спонтанного поділу на порядок вища за кількість нейтронів від  $(\alpha, n)$ -реакції. До 200 років внесок кількості нейтронів від кожної реакції майже вирівнюється, після чого внесок від  $(\alpha, n)$ -реакції знижується, а від спонтанного поділу — збільшується (рис. 2).

Основними джерелами нейтронів у  $(\alpha, n)$ -реакції є  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  і  $^{244}\text{Cm}$ , хоча їх внесок з часом витримки суттєво перерозподіляється. Так, внесок  $^{244}\text{Cm}$  починає спадати і стає нульовим за, практично, 250 років. Внесок різних ізотопів в  $(\alpha, n)$ -реакції наведено на рис. 3.

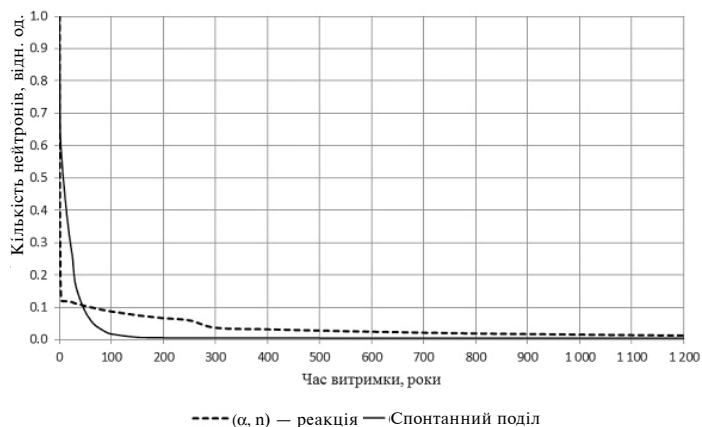


Рис. 1. Зміна виходу відносної кількості нейтронів у ВЯП з часом витримки в різних типах реакцій

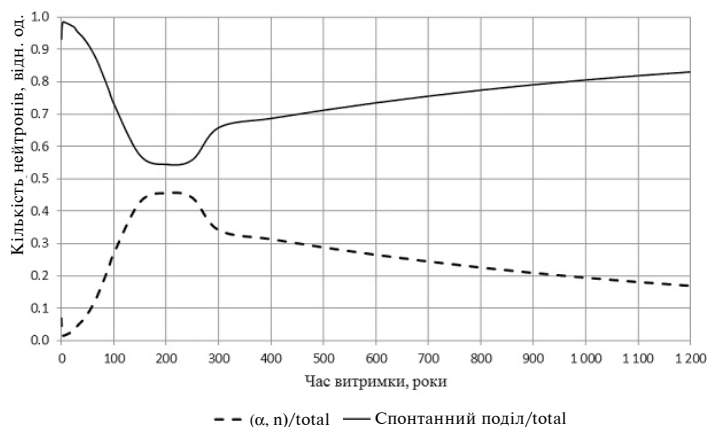


Рис. 2. Внесок у загальну кількість нейтронів від різного типу реакцій

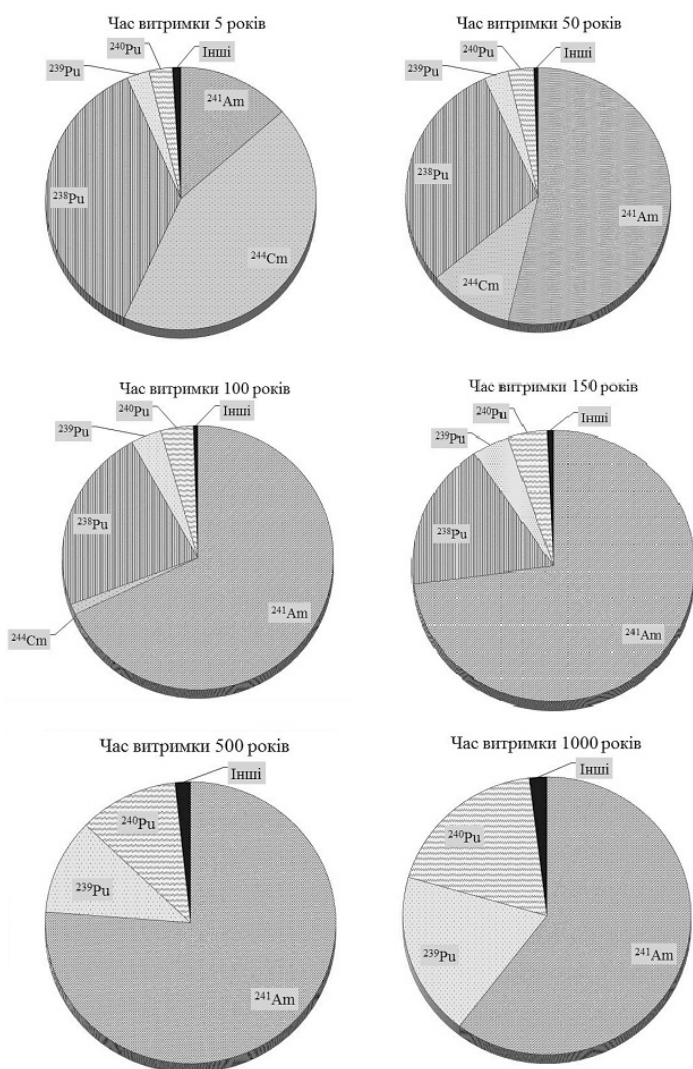


Рис. 3. Внесок різних ізотопів у вихід нейтронів у результаті (α, n)-реакції залежно від часу витримки

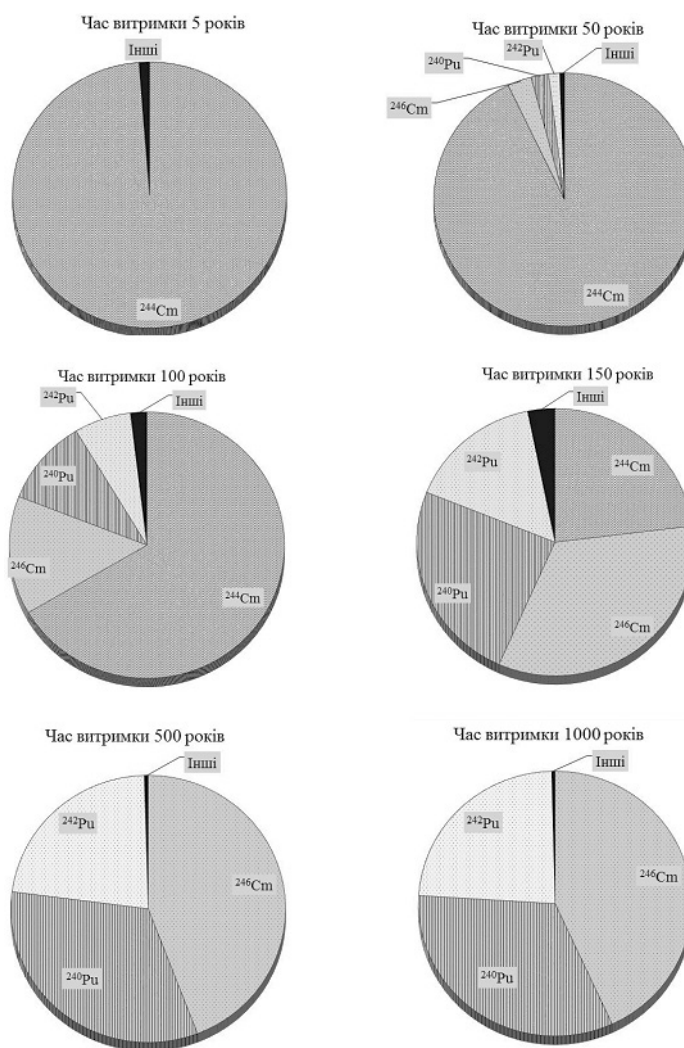


Рис. 4. Внесок різних ізотопів у вихід нейтронів у результаті спонтанного поділу залежно від часу витримки

У процесі спонтанного поділу основний внесок у джерело нейтронів перші 100 років належить практично  $^{244}\text{Cm}$ , а в подальшому —  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  і  $^{246}\text{Cm}$ : сумарний внесок цих ізотопів у потік нейтронів дорівнює фактично 100 % (рис. 4).

Зміна наведених характеристик для різного типу ТВЗ ідентична. Відповідні графіки наводяться для палива високого початкового збагачення по  $^{235}\text{U}$  (близько 4,4 % початкового збагачення).

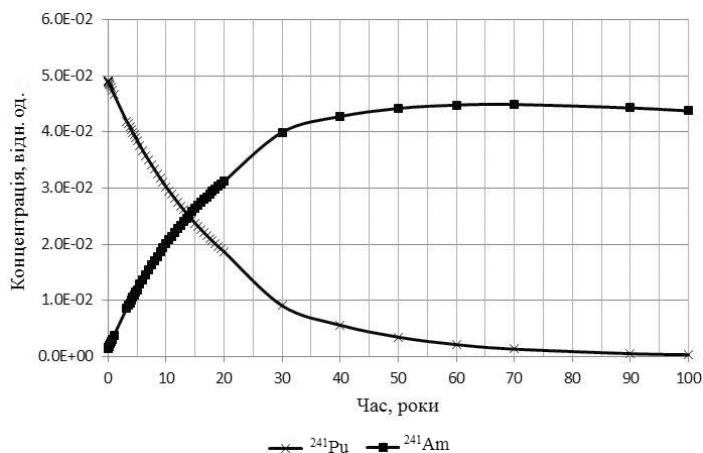


Рис. 5. Зміна відносної концентрації ізоотопів  $^{241}\text{Pu}$  і  $^{241}\text{Am}$  з часом (тут і далі концентрація ізоотопу зведена до маси  $^{235}\text{U}$  у свіжому паливі)

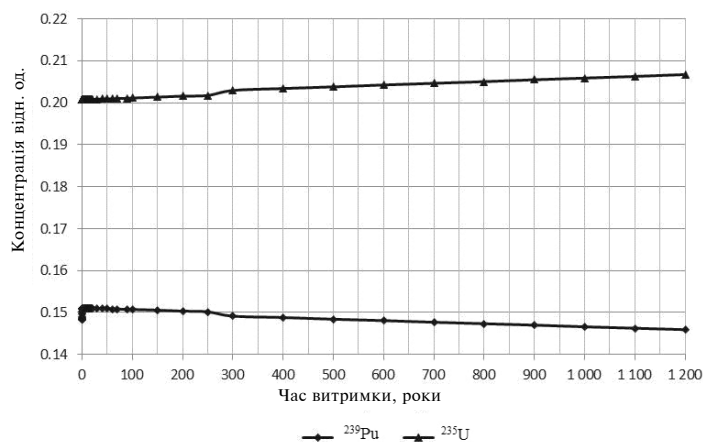
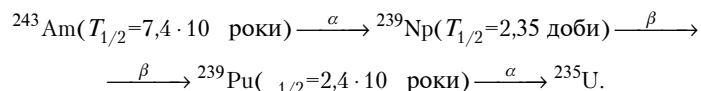


Рис. 6. Зміна відносної концентрації ізоотопів  $^{239}\text{Pu}$  і  $^{235}\text{U}$

**Подільні матеріали.** Основними подільними матеріалами у ВЯП є  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ . Ізотоп  $^{241}\text{Pu}$  має невеликий період напіврозпаду (14,4 року) і майже повністю розпадається за 100 років в  $^{241}\text{Am}$  (рис. 5), період напіврозпаду якого становить 432,2 року. Далі на періоді, що досліджується (1000 років), концентрація  $^{241}\text{Am}$  стабільно знижується до початкового рівня на момент вивантаження з реактора.

У процесі розпаду актиноідів в основному накопичуються ізоотопи  $^{233}\text{U}$  або  $^{234}\text{U}$ . Концентрація  $^{233}\text{U}$  в досліджуваній період збільшується на три порядки, хоча й залишається досить незначною в абсолютних одиницях.

Накопичення  $^{239}\text{Pu}$  відбувається в процесі розпаду  $^{243}\text{Am}$  (період напіврозпаду  $7,4 \cdot 10^3$  років) і  $^{243}\text{Cm}$  (період напіврозпаду 28,5 року), а накопичення  $^{235}\text{U}$  — в процесі розпаду  $^{239}\text{Pu}$  (період напіврозпаду  $2,4 \cdot 10^4$  років):



Розпад  $^{243}\text{Cm}$  відбувається за такою самою схемою, але його концентрація на два порядки нижча, ніж концентрація  $^{243}\text{Am}$ .

Оскільки періоди напіврозпаду  $^{243}\text{Am}$  і  $^{239}\text{Pu}$  досить тривалі, то їх концентрації змінюються незначно, але

концентрація  $^{239}\text{Pu}$  стабільно зменшується, а  $^{235}\text{U}$  — збільшується (рис. 6).

Отже, кількість подільних матеріалів у досліджуваній період змінюється різнопланово. Концентрація ізоотопу  $^{233}\text{U}$  змінюється досить суттєво, але його кількість залишається незначною, на чотири порядки меншою за концентрації ізоотопів  $^{239}\text{Pu}$  і  $^{235}\text{U}$ . Основними подільними матеріалами у ВТВЗ залишаються ізоотопи  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  і  $^{241}\text{Pu}$ .

**Зміна коефіцієнта розмноження нейтронів.** Розрахунки критичності для аналізу поведінки коефіцієнта розмноження нейтронів виконано з використанням модуля KENO-VI [7] системи кодів SCALE-5. Розглядалася система, яка складається з нескінченного ряду ВТВЗ, розміщених у чарунках зберігання. Таку схему зроблено з метою відійти від прив'язки до конкретного типу контейнерів для зберігання ВТВЗ та підкреслити загальність поведінки зміни коефіцієнта розмноження нейтронів незалежно від системи сухого зберігання ВЯП. Результати розрахунків коефіцієнта розмноження нейтронів для згаданої системи з ВЯП реактора типу ВВЕР-1000 лише з урахуванням «актиноїдного» кредиту вигорання наведено на рис. 7.

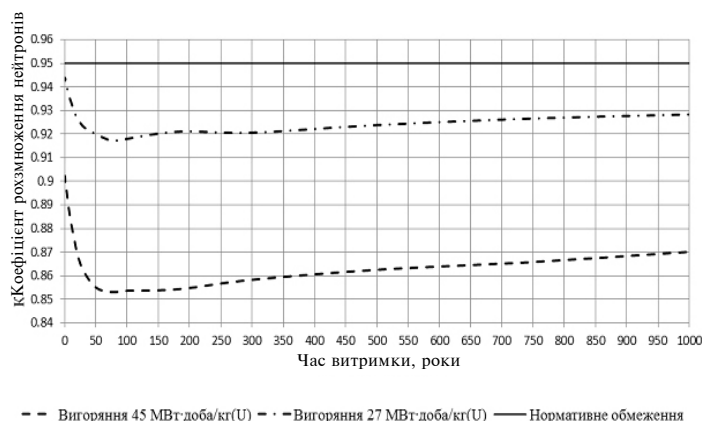


Рис. 7. Зміна коефіцієнта розмноження нейтронів для системи з відпрацьованим ядерним паливом в період часу до 1000 років (розрахунок тільки з урахуванням актиноїдного кредиту вигорання)

Таким чином, на період часу витримки 1000 років можна виділити такі етапи, які впливають на поведінку коефіцієнта розмноження нейтронів:

- 1) перші 40...50 годин після зупинки реакторної установки — зростання коефіцієнта розмноження нейтронів, що обумовлено  $\beta$ -розпадом  $^{239}\text{Np}$  з напрацюванням  $^{239}\text{Pu}$ ;
- 2) від 3 діб до 80...90 років — стабільне зниження коефіцієнта розмноження нейтронів внаслідок розпаду  $^{241}\text{Pu}$  і напрацювання  $^{241}\text{Am}$ , який є поглиначем нейтронів;
- 3) від 90 років до 250 років — збільшення коефіцієнта розмноження нейтронів, що пов'язано з розпадом  $^{241}\text{Am}$ ;
- 4) 250...1000 років — наприкінці третього етапу повністю розпадається ізоотоп  $^{244}\text{Cm}$ . Концентрації ізоотопів  $^{241}\text{Am}$  і  $^{240}\text{Pu}$  (період напіврозпаду 6537 років) стабільно зменшуються, коефіцієнт розмноження нейтронів стабільно зростає.

Виділення четвертого етапу пов'язане з уповільненням швидкості зростання коефіцієнта розмноження нейтронів.

## Висновки

Починаючи з 80—90 років витримки ВЯП, коефіцієнт розмноження нейтронів збільшується, що пов'язано з розпадом ізотопів, які діляться, і напрацюванням ізотопів, які є поглиначами нейтронів. На інтервалі 150—200 років коефіцієнт розмноження зростає з максимальною швидкістю. Надалі концентрація ізотопу  $^{244}\text{Cm}$  зменшується до нуля і крива зростання коефіцієнта розмноження набуває пологішого характеру. Але абсолютна величина коефіцієнта розмноження залишається меншою, ніж у момент вивантаження палива з реактора, та значно меншою від встановленого нормативними документами значення (див. рис. 7).

ТВЗ в басейні витримки зберігається певний час після вивантаження її з активної зони. У технічній політиці колишнього Радянського Союзу в сфері поводження з відпрацьованим ядерним паливом закладалася концепція радіохімічної переробки ВЯП для забезпечення повернення в ядерно-паливний цикл, тому спроектована місткість басейнів витримки на енергоблоках АЕС України була порівняно невеликою.

Наразі стратегією поводження з ВЯП в Україні передбачається довготривале «сухе» зберігання. На Запорізькій АЕС вже існує сховище «сухого» типу, а на етапі проектування — централізоване сховище на всіх енергоблоках реконструйовано басейни витримки (БВ) для збільшення місткості системи. У басейнах витримки розташовані ТВЗ з досить тривалим часом витримки; наприклад, у БВ енергоблока № 1 Хмельницької АЕС є ТВЗ з часом витримки 24 роки (40 ТВЗ типу 42FL з глибиною вигорання від 33 до 49 МВт·доба/кг (U)). Якщо додати до цього час будівництва і введення в експлуатацію сховища, отримуємо 30—40 років. Отже, після завершення проектного терміну експлуатації централізованого сховища матимемо ТВЗ в контейнерах, час витримки палива в яких буде на рівні 130—140 років. А завантаження контейнера саме таким паливом (з високим початковим збагаченням, тривалим терміном витримки і середнім вигоранням) може призвести до збільшення коефіцієнта розмноження системи.

Тим не менш, проведене дослідження показує, що навіть у цьому разі забезпечуватиметься підкритичність такої системи на рівні, який задовольняє вимогам нормативних документів.

## Список використаної літератури

1. Joint conventional on the safety of spent nuclear fuel management and on safety radioactive waste management. 5-th national report of Switzerland in according with article 32 of the Convention. October 2014. 96 p.
2. NUREG/CR-6811 ORNL/TM-2001/257 — Strategies for Application of Isotopic Uncertainties in Burnup Credit Prepared by I. C. Gauld Oak Ridge National Laboratory. 2003. 135 p.
3. Гальченко В. В., Макодим В. І., Соловійов В. В., Ількович В. В. Урахування вигорання ядерного палива при обґрунтуванні ядерної безпеки систем зберігання та транспортування відпрацьованого ядерного палива РВПК-1000. *Ядерна фізика та енергетика*. 2010. Т. 11, № 4. С. 415—420.

4. Гальченко В. В., Соловійов В. В., Городніча О. С. Урахування вигорання ядерного палива при обґрунтуванні ядерної безпеки систем зберігання відпрацьованого ядерного палива. *Ядерна та радіаційна безпека*. 2012. Вип. 2 (54). С. 45—50.

5. Hermann O. W., Westfall R. M. ORIGEN-S: SCALE System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms. NUREG/CR-0200, Revision 6, (ORNL/NUREG/CSD-2/V2/R6), Oak Ridge National Laboratory. 1998.

6. SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluations, ORNL/TM-2005/39, Version 5.1, November 2006. 732 p.

7. Hollenbach D. F., Petrie L. M., Landers N. F. KENO-VI: A General Quadratic Version of the KENO Program. ORNL/NUREG/CSD-2/V2/R7. 2004. Vol. II, Section F17. 572 p.

NUREG/CR-6781 ORNL/TM-2001/272 — Recommendation on the credit for cooling time in PWR burnup credit analyses. Prepared by J.C. Wagner and C.V. Parks. Oak Ridge National Laboratory. 2003.63 p.8.

## References

1. Joint Convention on the Safety of Spent Nuclear Fuel Management and on the Safety Radioactive Waste Management, 5-th National Report of Switzerland According to Article 32 of the Convention, October 2014, 96 p.
2. NUREG/CR-6811 ORNL/TM-2001/257, Strategies for Application of Isotopic Uncertainties in Burnup Credit Prepared by I. C. Gauld Oak Ridge National Laboratory, 2003, 135 p.
3. Galchenko, V.V., Makodym, V.I., Solovyov, V.V., Ilkovich, V.V. (2010), “Burnup Credit Consideration for Criticality Safety Justification of RBMK-1000 Spent Fuel Storage and Transport Systems [Urakhuvannya vyhoriannya yadernoho palyva pry obhruntuvanni yadernoi bezpeky system zberihannya ta transportuvannya vidpratsiovanoho yadernoho palyva RVPK-1000], Nuclear Physics and Atomic Energy, Vol. 11, No. 4, pp. 415—420. (Ukr)
4. Galchenko, V.V., Solovyov V.V., Gorodnycha O.S. (2012), “Burnup Credit Consideration for Nuclear Safety Justification of Spent Fuel Storage Systems” [Urakhuvannya vyhoriannya yadernoho palyva pry obhruntuvanni yadernoi bezpeky system zberihannya vidpratsiovanoho yadernoho palyva], Nuclear and Radiation Safety, No. 2 (54), pp. 45—50. (Ukr)
5. Hermann, O.W., Westfall, R.M. (1998), “ORIGEN-S: SCALE System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms”, NUREG/CR-0200, Revision 6, (ORNL/NUREG/CSD-2/V2/R6), Oak Ridge National Laboratory, 104 p.
6. SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluations, ORNL/TM-2005/39, Version 5.1, November 2006, 732 p.
7. Hollenbach, D.F., Petrie, L.M., Landers, N.F. (2004), “KENO-VI: A General Quadratic Version of the KENO Program”, ORNL/NUREG/CSD-2/V2/R7, Vol. II, Section F17, 572 p.
8. NUREG/CR-6781 ORNL/TM-2001/272. Recommendation on the Credit for Cooling Time in PWR Burnup Credit Analyses, Prepared by J.C. Wagner and C.V. Parks, Oak Ridge National Laboratory, 2003, 63 p.

Отримано 08.11.2016.