УДК 621.039.543.6

ПОЛЕ НЕЙТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ И РАДИАЦИОННАЯ ОБСТАНОВКА ВБЛИЗИ ОБЛУЧЁННЫХ КЕРАМИЧЕСКИХ УРАНОВЫХ ТОПЛИВ UO_2, UC и UN

И.В. Шаманин, П.М. Гаврилов*, В.В. Мартынов*, С.В. Беденко, С.А. Нефёдов**, Ф.В. Гнетков

Томский политехнический университет
*ФГУП «Горно-химический комбинат», г. Железногорск
**ОАО «Концерн Росэнергоатом» Белоярская АЭС, г. Заречный
E-mail: bedenko_s@phtd.tpu.ru

Проведен сравнительный анализ дозовых характеристик полей нейтронов облучённых керамических урановых соединений. Предложена процедура расчета нейтронной составляющей радиационных характеристик облучённого керамического ядерного топлива. Установлены причины существенных отличий вкладов (α,n)-реакций в интенсивность нейтронного излучения облучённых UO_2, UC и UN. Проведено сравнение результатов моделирования параметров поля излучения вблизи укомплектованного транспортного контейнера ТК-13 с результатами радиометрических экспериментов.

Ключевые слова:
(α,n)-реакции, источники нейтронов, облучённое керамическое ядерное топливо, интенсивность нейтронного излучения, мощность дозы излучения, транспортный контейнер.

Key words:
(α,n)-reactions, neutron source, power dose radiation, irradiated ceramic nuclear fuel, transport container.

Состояние исследований

Современная ядерная энергетика базируется на тепловых водо-водяных энергетических реакторах, использующих в качестве топлива обогащенный уран в форме диоксида. Вовлечение уран-плутониевого топлива в ядерно-топливный цикл напрямую связано с использованием быстрых реакторов, доля которых в парке действующих реакторов пока невелика [1].

Задачи эффективного использования урана и плутония, перспектива использования смешанного карбидного, нитридного и оксидного топлив, особенности регламентов технологических операций по обращению с этими видами топлива в условиях функционирования ядерной энергетики на основе быстрых реакторов были показаны еще в середине 90-х годов прошлого века [1, 2].

Сегодня наиболее важным фактором, стимулирующим разработку проектов по совершенствованию топлива, является увеличение глубины выгорания топлива. Уже достигнуты значения выгорания 58...60 МВт·сут/т, планируется повысить до выгорания 70 МВт·сут/т при переходе на кампании топлива 3×1,5 (три цикла облучения по полтора года) и 5×1 (пять циклов облучения по одному году) [2].

Увеличение глубины выгорания как стандартного UO_2, так и новых видов керамического топлива $(U,Pu)O_2$, UN/(U–Pu)N, UC/(U–Pu)C вызовет увеличение количества аккумулированных в нём продуктов деления и трансурановых элементов, что, в свою очередь, будет являться причиной изменения параметров поля ионизирующих излучений вблизи этих топлив. Очевидно, что для новых керамических урановых топлив потребуется разработка новых конструкций не только тепловыделяющих элементов (твэл) и тепловыделяющих сборок (ТВС), но и транспортных контейнеров (ТК), обладающих иными защитными характеристиками.

К настоящему времени в РФ и за рубежом увеличилось количество исследований и реакторных испытаний нитридного и карбидного топлив. Успешно проведены и проводятся реакторные испытания мононитридного топлива в EBRII, Феникс, БР-10, БОР-60 и др. при различных теплонапряженностях и выгораниях [2]. Однако объем проводимых исследований и изучение свойств этих видов топлив гораздо меньше аналогичных работ по оксидному топливу. Еще меньше работ посвящено радиационным характеристикам этого топлива.

При обращении с облученным ядерным топливом (ОЯТ) для обеспечения радиационной безопасности в первую очередь решались задачи защиты от потоков высокоэнергетических γ-квантов, так как интенсивность γ-излучения на несколько порядков выше интенсивности нейтронного излучения. Вопрос защиты от γ-излучения ОЯТ можно считать решённым. Менее изученным остается вопрос защиты от нейтронов, образующихся в результате протекания (α,n)-реакций на легких ядрах ОЯТ; спонтанного деления ядер урана и трансурановых элементов в ОЯТ; фотонейтронов, образующихся в результате протекания фотоядерных процессов (фотоядерное деление, реакции типа (γ,xn)).

Интенсивность γ-излучения превышает интенсивность нейтронного излучения вблизи ОЯТ. Но с увеличением глубины выгорания интенсивность нейтронного излучения возрастает быстрее, чем интенсивность γ-излучения. Это объясняется тем, что продукты деления, которые определяют параметры γ-активности, накапливаются практически пропорционально глубине выгорания, а накопление младших актиноидов (Np, Am и Cm), в основном образующих нейтронное излучение, происходит нелинейно. Зависимость их концентрации в ОЯТ от глубины выгорания можно аппроксимировать полиномом 4-й степени, степенными и пока-

зательными функциями [3]. Кроме того, интенсивность γ-излучения ОЯТ по мере его выдержки спадает быстрее, чем интенсивность нейтронной составляющей. По этой причине нейтронное излучение при некоторых условиях может вносить заметный вклад в общую активность ОЯТ.

Источник нейтронного излучения ОЯТ имеет сложную структуру. Задачу определения источника нейтронного излучения можно существенно упростить, если рассматривать не нестабильные изотопы, содержащиеся в ОЯТ, а только те из них, которые в совокупности вносят определяющий вклад в данный тип излучения.

При исследовании полей нейтронов облученного керамического ядерного топлива особый интерес вызывает (α,n)-реакция на лёгких ядрах керамического топлива (O, C и N). Для облученного диоксида урана составляющая от (α,n)-реакции не превышает 18...20 % (реакторы типа ВВЭР, РБМК) [3, 4], для быстрых реакторов вклад (α,n)-реакции может достигать 80...90 % [4]. При этом необходимо учитывать не только интенсивность нейтронного излучения, но и спектральные характеристики потока нейтронов, образующихся в реакциях (α,n), т. к. для (α,n)-реакции на кислороде, азоте и, в особенности, на углероде энергетический спектр нейтронов гораздо «жестче» в сравнении со спектром спонтанного деления [5, 6].

В настоящей работе предложена процедура расчета (методика) параметров нейтронной составляющей радиационных характеристик облучённых керамических урановых топлив. Проведен сравнительный анализ дозовых характеристик поля излучения облучённых керамических урановых топлив различных типов (UO_2, UN, UC).

Интенсивность нейтронного излучения, обусловленная протеканием (α,n)-реакций

Протекание (α,n)-реакции наиболее вероятно на легких ядрах керамического топлива (O, C и N). Удельная интенсивность нейтронного излучения в результате (α,n)-реакций определяется соотношением:

$$Q_i^{\alpha,n}(E) = m_i q_i^{\alpha,n}(E), \text{ нейтр./с},$$

где m_i – масса α-активного актиноида, г; $q_i^{\alpha,n}$ – выход нейтронов из i-го актиноида, нейтр./(с·г).

Выход нейтронов $q_i^{\alpha,n}(E)$ согласно [7] определяется соотношением:

$$q_i^{\alpha,n}(E) = q_i^{\alpha} \cdot n_j \int_{B_j}^{E_i} \frac{\sigma_j^{\alpha,n}(E)}{f_i(E)} dE, \text{ нейтр./(с·г)},$$

где q_i^{α} – удельная интенсивность α-частиц, испускаемых i-м актиноидом, α-частиц/(с·г); n_j – концентрация j-х ядер в соединении, см$^{-3}$; $\sigma_j^{\alpha,n}$ – микроскопическое эффективное сечение (α,n)-реакции на ядрах кислорода, см^2; $f(E)=-dE/dx$ – ионизационные потери энергии α-частицы на атомах i-го соединения, МэВ/см; E – средняя энергия α-частиц i-го актиноида, МэВ; B_j – порог (α,n)-реакции, МэВ.

При расчете сечения (α,n)-реакций применялась модель, учитывающая зависимость выхода ядерных реакций и массовой тормозной способности (ионизационные потери в среде) от энергии α-частиц.

Функциональная зависимость выхода нейтронов $Y_j(E)$ от энергии α-частиц получается при полиномиальной или степенной аппроксимации экспериментальных данных, а функциональная зависимость ионизационных потерь $f(E)$ представлена во многих классических работах по экспериментальной ядерной физике [8]. Например, можно использовать формулу Бете-Блоха для ионизационных потерь тяжелых заряженных частиц. В отсутствии экспериментальных данных функция $Y(E)$, а также первая производная от неё, могут быть определены путем аппроксимации значений выхода нейтронов, имеющихся в библиотеке экспериментальных ядерных данных EXFOR.

Среднее значение энергии α-частиц, образующихся в смеси актиноидов в ОЯТ, составляет $E_\alpha \approx 5{,}13$ МэВ. Ионизационные потери α-частицы $|dE/dx|$ на ядрах кислорода при такой энергии составляют около 1,046 МэВ/см; выход нейтронов в реакции (α,n) на кислороде, состоящем из природной смеси изотопов, составляет $Y=5$ нейтронов на 10^8 α-частиц; значение производной от экспериментальной функции $Y(E)$ при энергии α-частиц $E_\alpha=5{,}13$ МэВ, составляет $dY/dE \approx 0{,}014 \cdot 10^{-6}$, МэВ$^{-1}$.

Расчётные значения эффективных сечений (α,n)-реакций, найденные предложенным в работе способом, удовлетворительно согласуются (~18...20 %) с экспериментально определенными значениями [9–11] и находятся в пределах доверительного интервала. Например, для углерода зависимость выхода от энергии α-частиц имеет вид: $Y(E)=3{,}32 \cdot 10^{-11} \cdot E^{4{,}86}$. При $E_\alpha=5{,}304$МэВ (^{210}Po) $Y=11{,}3 \cdot 10^{-6}$ нейтр. на одну α-частицу, $dY(5{,}304)/dE=1{,}01 \cdot 10^{-7}$, а значит, расчётное значение эффективного сечения (α,n)-реакции на ядрах углерода, равно: $\sigma_{\alpha,n}=1{,}56$ мб. Экспериментальное значение: $\sigma_{\alpha,n}={}^{12}\delta \cdot \sigma_{\alpha,n}(^{12}\text{C})+{}^{13}\delta \cdot \sigma_{\alpha,n}(^{13}\text{C})=0{,}9889 \cdot 0+$ $+0{,}011 \cdot 138$ мбарн$=1{,}72$ мб [11].

Образование нейтронов по каналу спонтанного деления

Удельная интенсивность нейтронного излучения, образующегося при спонтанном делении ядер актиноидов:

$$Q_i^{\text{сп}}=m_i \cdot A_i^{\text{сп}} \cdot \nu_i^{\text{сп}}, \text{ нейтр./с},$$

где $A_i^{\text{сп}}$ – интенсивность распада, дел./(гс); $\nu_i^{\text{сп}}$ – число мгновенных нейтронов, которые образуются по каналу спонтанного деления.

Образование нейтронов в ОЯТ при протекании (γ,n) реакций

Для образования фотонейтронов необходимо наличие γ-излучения высоких энергий (от 4 до 14 МэВ). Источниками γ-излучения в ОЯТ являются процессы β-распада продуктов деления и акти-

вации, спонтанного деления ядер урана и образующихся в ходе облучения изотопов актиноидов. В указанный энергетический интервал попадают мгновенные γ-кванты, образующиеся при спонтанном делении ядер актиноидов.

Удельная интенсивность нейтронного излучения, обусловленная протеканием (γ,n)-реакции, определяется соотношением вида:

$$Q_j^{\gamma,n}(Z)=A_k^{\gamma}(Z)\cdot\sigma_i^{\gamma,n}N_i(Z)/\mu_j(Z),\ \text{нейтр/(с·г)},$$

где $A_k^{\gamma}(Z)$ – удельная интенсивность генерации γ-квантов, испускаемых k-м нуклидом, γ-квант/(с·г); $N_i(Z)$ – концентрация ядер i-го актиноида в соединении, см$^{-3}$; $\sigma_i^{\gamma,n}(E)$ – микроскопическое эффективное сечение (γ,n)-реакции на i-м актиноиде, см^2; $\mu_j(Z)$ – полный коэффициент взаимодействия γ-квантов для j-го соединении, включающий фотоядерное взаимодействие, см$^{-1}$.

Расчет значения сечения (γ,n)-реакций проводится с использовании боровского механизма при описании образования промежуточного ядра с последующим вылетом частиц-продуктов. Точность определения сечения (γ,n)-реакций вблизи резонанса находится в пределах от 3 до 30 % [12, 13].

Результаты расчетов

Расчет проводится для ОЯТ реактора ВВЭР-1000, работающего на перспективных керамических урановых топливах. Результаты расчета нейтронной составляющей для трех основных режимов облучения ОЯТ приведены в табл. 1 и нормированы на одну тонну топлива. Для определения значения в расчете на тонну урана начальной загрузки значения в табл. 1 необходимо разделить на массовую долю урана в топливе. Для оксидного топлива долю урана в топливе 0,88, для карбидного и нитридного – 0,95 и 0,94 соответственно.

Для обоснования применимости предложенной расчетной процедуры, а также для оценки точности полученных в работе результатов были выполнены расчетные исследования параметров нейтронного излучения на поверхности транспортного контейнера ТК-13 с облученными ТВС реактора ВВЭР-1000. На их основе была построена расчетная модель ТК-13 с ОТВС реактора ВВЭР-1000.

В разработанной модели отдельная ОТВС рассматривалась как подкритическая размножающая система, в объеме которой равномерно распределены топливо; конструкционные материалы – сталь марки 12Х18Н10Т, циркониевый сплав Э-110; поглотитель Gd_2O_3 и источники нейтронов, образующиеся по реакциям (α,n), (γ,n) и в результате спонтанного деления ядер урана и актиноидов.

При расчете мощности дозы вблизи ТК-13 считалось, что контейнер полностью загружен ОТВС. Внутренняя часть контейнера представляет собой гомогенную смесь 12-ти ОТВС, характеризующихся идентичным значением выгорания и начального обогащения: выгорание – 40 МВт·сут/кг U, начальное обогащение по ^{235}U 4,4 %, выдержка 3 года) [14].

При моделировании системы были определены совокупные по нейтронному и γ-излучениям мощности дозы излучения вблизи ТК-13. Результаты моделирования сравнивались с результатами измерений, выполненных специалистами ФГУП «Горно-химический комбинат».

Таблица 1. *Интенсивность нейтронного излучения керамического ОЯТ Q, нейтр./(с·т)*

Режимы облучения, МВт·сут/т	$Q_{\alpha,n}$	$Q_{сп}$	$Q_{\gamma,n}$	Q_{Σ}	Вклад реакций, %	
					(α,n)	(γ,n)
UO_2						
13420	$1{,}14\cdot10^6$	$5{,}98\cdot10^5$	$6{,}85\cdot10^4$	$7{,}19\cdot10^6$	15,86	0,95
26940	$1{,}02\cdot10^7$	$1{,}10\cdot10^8$	$1{,}45\cdot10^6$	$1{,}22\cdot10^8$	8,38	1,19
40480	$3{,}10\cdot10^7$	$5{,}69\cdot10^8$	$8{,}26\cdot10^6$	$6{,}08\cdot10^6$	5,10	1,36
UC						
13420	$7{,}95\cdot10^5$	$6{,}45\cdot10^6$	$8{,}12\cdot10^4$	$7{,}92\cdot10^6$	9,58	1,08
26940	$7{,}48\cdot10^6$	$1{,}19\cdot10^8$	$1{,}56\cdot10^6$	$1{,}28\cdot10^8$	5,84	1,22
40480	$2{,}32\cdot10^7$	$6{,}11\cdot10^8$	$1{,}18\cdot10^7$	$6{,}46\cdot10^8$	3,59	1,83
UN						
13420	$5{,}51\cdot10^4$	$6{,}40\cdot10^6$	$7{,}80\cdot10^4$	$6{,}53\cdot10^6$	0,84	1,19
26940	$4{,}01\cdot10^5$	$1{,}18\cdot10^8$	$1{,}52\cdot10^6$	$1{,}20\cdot10^8$	0,33	1,27
40480	$1{,}24\cdot10^6$	$6{,}09\cdot10^8$	$1{,}12\cdot10^7$	$6{,}21\cdot10^8$	0,20	1,80

Дозовые характеристики вблизи ТК-13 с ОТВС ВВЭР-1000 определялись с помощью радиометров-дозиметров МКС-01Р и ДКС-96, укомплектованными детекторами фотонного и нейтронного излучений. ТК-13 был полностью загружен ОТВС с начальным обогащение по ^{235}U 4,4 %, средней глубиной выгорания около 40 МВт·сут/кг U и выдержкой 3 года.

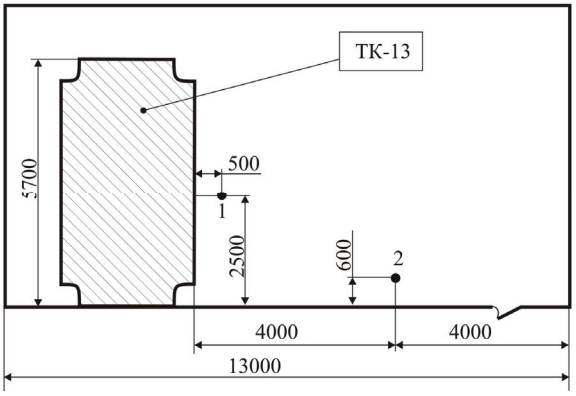

Рисунок. *Точки измерения мощности дозы нейтронов вблизи транспортного контейнера ТК-13В. 1 и 2 – точки измерения, расстояния в мм*

Измерения выполнены на расстоянии 50 см и 4 м (см. рисунок) в точках, установленных нормативами НП-053-04. Результаты радиометрических экспериментов [14] и расчетные данные приведены в табл. 2. Параметры поля излучения в точке 2 не моделировались, поскольку расчеты необходимо проводить в 3D геометрии, что не предусмотрено в модели.

Таблица 2. *Мощность дозы полей нейтронов (экспериментальные и расчетные значения)*

Точки измерения	Мощность дозы, мкЗв/ч		
	МКС-01Р	ДКС-96	Расчёт (авторы)
1	17,20	18,00	22

Таким образом, полученные в ходе расчетных исследований значения дозовых характеристик керамических ОЯТ с точностью 20...30 % совпадают с экспериментальными значениями. Основной составляющей погрешности расчетного определения дозовых характеристик является неточность определения концентрации в ОЯТ ядер таких важных (с точки зрения радиационной безопасности) изотопов, как ^{238}Pu, ^{241}Am, ^{242}Cm, ^{244}Cm, ^{252}Cf. Расчётные исследования [6] показали, что большинство современных специализированных программ (SCALE, MCU, MCNP) «занижают» значение концентрации изотопов кюрия, америция и калифорния на десятки процентов. Так, например, концентрация ядер ^{244}Cm с использованием пакетов программ ORIGEN-S (SCALE 5/0) может быть определена с погрешностью 26 % в 27-групповом приближении при использовании библиотеки оцененных ядерных данных ENDF/B-IV.

Выводы

1. Исследованы параметры нейтронной составляющей радиационных характеристик облучённых керамических урановых топлив UO_2, UC, UN.
2. Показано, что (α,n)-реакция, протекающая на ядрах O, C и N и вызываемая α-частицами от распада Pu, Am и Cm, является значимым источником нейтронов в облученных керамических урановых топливах.
3. Данные по дозовым характеристикам полей нейтронного излучения, полученные при использовании разработанных методик определения микросечений ядерных реакций и расчетной модели транспортного контейнера, с точностью не хуже 20...30 % согласуются с результатами радиометрических экспериментов, выполненных в промышленных условиях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Решетников Ф.Г. Состояние разработки и производства уран-плутониевого топлива для быстрых реакторов // Атомная энергия. – 2001. – Т. 91. – № 6. – С. 453–458.
2. Горбачев Б.А., Ганев И.Х., Лопаткин А.В. и др. Радиационные характеристики топлива и отходов в уран-плутониевом и торий-урановом топливном цикле // Атомная энергия. – 2001. – Т. 90. – № 6. – С. 431–438.
3. Шаманин И.В., Гаврилов П.М., Беденко С.В., Мартынов В.В. (α,n)-реакции и поле нейтронного излучения облученного керамического ядерного топлива. // Известия Томского политехнического университета. – 2009. – Т. 315. – № 2. – С. 75–78.
4. Буланенко В.И., Фролов В.В., Центер Э.М. Расчетная оценка выхода нейтронов (α,n)-реакции для многокомпонентных сред // Атомная энергия. – 1982. – Т. 53. – № 3. – С. 160–168.
5. Шаманин И.В., Беденко С.В., Мартынов В.В. Оценка вклада реакции (α,n) в нейтронную активность ОТВС реактора ВВЭР-1000 // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2007. – Т. 3. – № 2. – С. 40–47.
6. Внуков В.С., Рязанов Б.Г. Проблемы и опыт обеспечения ядерной безопасности при хранении отработавшего топлива АЭС // Атомная энергия. – 2001. – Т. 82. – № 3. – С. 53–58.
7. Фролов В.В. Ядерно-физические методы контроля делящихся веществ. – М.: Атомиздат, 1980. – 128 с.
8. Немец О.Ф., Гофман Ю.В. Справочник по ядерной физике. – Киев: Наукова думка, 1975. – 415 с.
9. Bair J.R., Haas F.X. Total Neutron Yield from the Reaction ^{13}C(α,n)^{16}O and ^{17,18}O(α,n)^{20,21}Ne // Phys. Rev. C. – 1973. – V. 7. – № 4. – P. 1356–1364.
10. West D., Sherwood A.C. Measurements of Thick-Target (α,n) Yields from Light Elements // Nucl. Energy. – 1982. – V. 9. – P. 551–577.
11. Harissopulos S., Becker H. W., Hammer J.W., Lagoyannis A., Rolfs C., Strieder F. Cross section of the ^{13}C(α,n)^{16}O reaction: A background for the measurement of geo-neutrinos // Phys. Rev. – 2005. – P. 72–80.
12. Беденко С.В., Мельников К.В., Шелепов Е.Н. Расчетно-экспериментальное определение сечений (α,n)-реакций, протекающих в облучённом ядерном топливе // Современные техника и технологии: Труды XIII Междунар. научно-практ. конф. студентов, аспирантов и молодых ученых. – Томск, 2007. – Т. 1. – С. 16–18.
13. Горбачев В.М., Замятнин Ю.С., Лбов А.А. Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер. Справочник. – М.: Атомиздат, 1976. – 464 с.
14. Косьяненко Е.В., Купцов С.И., Мартынов В.В. Спектры и дозиметрические характеристики полей нейтронов на рабочих местах персонала Горно-химического комбината // Атомная энергия. – 2008. – Т. 10. – № 7. – С. 121–128.

Поступила 02.03.2010 г.