

УДК 621.039.5

ИЗМЕНЕНИЯ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА ЕВРОПИЯ В ОБЪЕМЕ ПОГЛОЩАЮЩИХ ЭЛЕМЕНТОВ ПРИ ИХ ДЛИТЕЛЬНОМ ОБЛУЧЕНИИ В ЯДЕРНОМ РЕАКТОРЕ

Ю. Е. Ванеев, Е. П. Клочков
(ГНЦ РФ НИИАР, г. Димитровград)

Дается описание алгоритма моделирования изотопной кинетики европиевого поглотителя в условиях длительного реакторного облучения поглощающих элементов на его основе. Расчетные исследования закономерностей изменения изотопного состава поглотителя проведены с использованием прецизионного кода MCU-RR. Приводятся результаты расчетов пространственных распределений концентрации и активности изотопов европия в поглощающих элементах компенсирующих органов исследовательского реактора СМ в сравнении с экспериментальными данными.

Ключевые слова: алгоритм моделирования, изотопная кинетика, европиевый поглотитель, реакторное облучение, расчетные исследования, концентрации и активность изотопов, радиальные и высотные распределения, результаты расчетов, экспериментальные данные.

Введение

В некоторых российских ядерных реакторах в качестве поглощающих элементов (пэлов), используемых в рабочих органах системы управления и защиты, применяют композиции на основе европия, которые характеризуются высоким сечением поглощения нейтронов и радиационной стойкостью при реакторном облучении.

В настоящее время возникли серьезные проблемы при хранении и переработке таких пэлов вследствие накопления в них изотопов европия с высокой удельной активностью ($3,7 \cdot 10^{11} - 2,2 \times 10^{12}$ Бк/г) [1] и длительным периодом полураспада (до 13 лет). В соответствии с оценками работ [1, 2] в активных зонах (АЗ) транспортных реакторов, эксплуатация которых завершена до 1997 г., накоплено радиоактивных изотопов европия около $7,4 \cdot 10^{18}$ Бк, в реакторах на быстрых нейтронах типа БН-600 — около $2,6 \times 10^{17}$ Бк, в исследовательском реакторе СМ [3] — около $5 \cdot 10^{15}$ Бк.

Наиболее эффективным способом утилизации европийсодержащих пэлов признано использование их в качестве элементов гамма-источников промышленных установок для радиационной обработки различных материалов.

Для обоснования проектов гамма-источников и установок в целом необходимо располагать данными об изотопном составе поглотителя и пространственно-энергетических распределениях испускаемого им гамма-излучения в объеме отработавших пэлов. Наряду с экспериментальными методами такую информацию в максимально полном объеме можно получать с использованием математического моделирования изменений изотопного состава поглощающего материала в процессе облучения.

Цель данной работы — расчетные исследования закономерностей формирования пространственных распределений концентрации и активности изотопов европия в пэлах компенсирующих органов реактора СМ, а также оценка точности получаемых результатов путем их сравнения с экспериментальными данными.

Алгоритм моделирования процесса облучения пэлов в реакторах

При моделировании процесса облучения пэлов в ядерных реакторах наиболее точные результаты могут быть получены с помощью прецизионных кодов, основанных на методе Монте-

Карло. В данной работе использованы возможности российского кода MCU-RR [4, 5], позволяющего проводить нейтронно-физические расчеты в трехмерной геометрии с детальным заданием конструкции элементов АЗ, включая рабочие органы регулирования (ОР) с пэлами. В составе программы имеется модуль неаналогового моделирования, в котором реализован алгоритм АЛИГР [6], позволяющий рассчитывать скорости реакций в малых объемах.

В соответствии с этим алгоритмом на первом этапе в процессе решения условно-критической задачи для АЗ формируют архив параметров нейтронов, влетающих через поверхность замкнутой области, внутри которой расположены пэлы. На втором этапе решают задачу с заданным поверхностным источником нейтронов, сформированным на первом этапе, с условием поглощения при вылете нейтрона за пределы области, ограниченной источником. Для уменьшения дисперсии результатов используют *расщепление* каждого нейтрона источника на несколько нейтронов с розыгрышем их начальных параметров по определенным алгоритмам [6]. При моделировании траекторий нейтронов в объеме выделенной области регистрируют скорости необходимых реакций на ядрах поглощающего материала в объеме одного пэла или нескольких однотипных пэлов.

Выделяют предварительную стадию, на которой подготавливают полиномиальные зависимости некоторых параметров процесса от времени облучения и пространственных координат. Для этого с использованием АЛИГР-алгоритма решают две модельные задачи:

1. Двухэтапные расчеты проводят для двух крайних и нескольких промежуточных высотных положений ОР (P_{OP}) в начале облучения ($t = 0$) с регистрацией высотных ($0 < z < H$) распределений скорости поглощения нейтронов на внешней поверхности поглотителя (радиусом R) основными поглощающими изотопами ($i = 1, 2, \dots, I$), входящими в его состав. Полученные распределения $c(t = 0, P_{OP}, r = R, z, i) = c_R(P_{OP}, z, i)$, нормированные на одно ядро i -го изотопа и на мощность реактора $W_P = 1$ МВт, аппроксимируют полиномами и определяют интерполяционный алгоритм построения соответствующих высотных распределений $c_R(z, i)$ для любого промежуточного положения ОР.

2. В одном из положений ОР, для которого сформирован поверхностный источник нейтронов в модельной задаче 1, выделяют наиболее интенсивно облучаемый высотный участок пэла Δz и моделируют изменения средних по этому участку значений скорости поглощения нейтронов каждым из I изотопов в радиальных зонах пэла $c(r, i)$ в зависимости от изменений их концентраций $\gamma(r, i)$ при неизменном поверхностном источнике. Процесс поочередного пересчета распределений $c(r, i)$ и $\gamma(r, i)$ через интервал времени облучения $\Delta t_{об}$ продолжают до полного выгорания всех I изотопов. При этом получают зависимости от времени облучения числа поглощений нейтронов на поверхности пэла единичной высоты $Q_R(t, i) = W_P \sum_{k=0} c_R(t = k\Delta t_{об}, i) \Delta t_{об}$ и определяют алгоритм построения радиальных распределений $c(Q_R, r, i)$ для любого значения $Q_R(t, i)$.

После завершения предварительной стадии решают основную задачу, в которой объем пэла разбивают мелкой (z, r) -сеткой на N_z высотных слоев и N_r радиальных зон, а весь период облучения — на временные интервалы с границами $0, t_1, t_2, \dots, t_n = T$.

На каждом из этих интервалов Δt_k , зная мощность реактора W_P , высотное положение P_{OP} и используя решения модельных задач, для каждого высотного слоя с координатой z определяют абсолютные значения скорости поглощения нейтронов $C_R(z, i) = W_P c_R(z, i)$ и числа поглощений за предыдущее время облучения $Q_R(t_{k-1}, z, i)$, а также радиальные распределения $c(Q_R, r, i)$. В цикле по N_r зонам решают систему уравнений изотопной кинетики для текущего временного интервала Δt_k , определяют $\gamma(r, z, i)$ и переходят к следующему высотному слою. После завершения цикла по N_z слоям описанную процедуру повторяют для следующего временного интервала и т. д. в течение всего времени T эксплуатации ОР.

Объекты исследований и экспериментальные данные

В АЗ высокопоточного исследовательского реактора СМ (рис. 1,а) имеются органы компенсации реактивности двух типов: центральный компенсирующий орган (ЦКО) с 29 пэла-

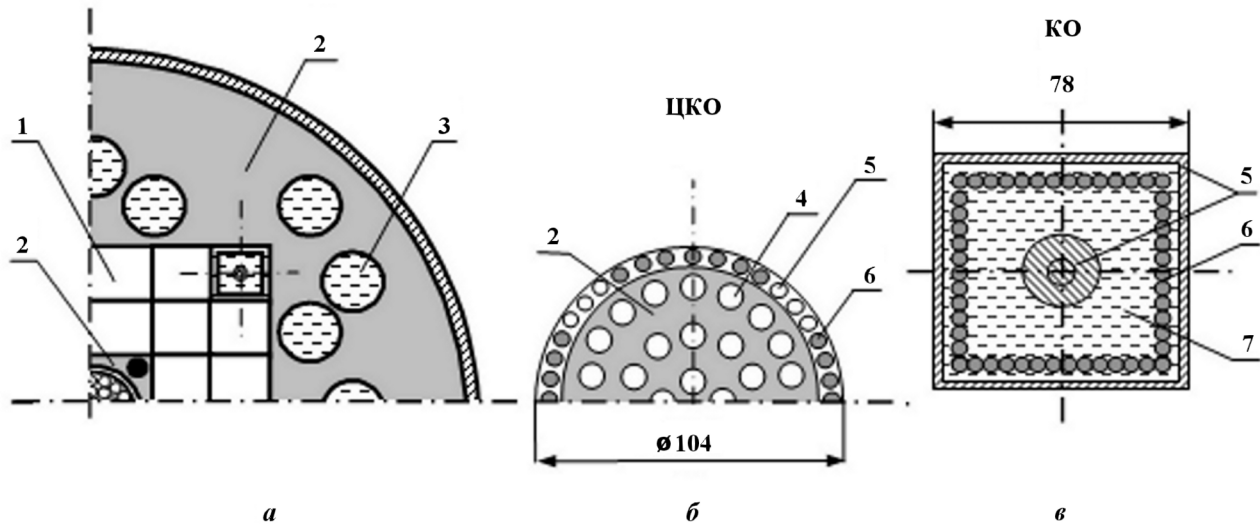


Рис. 1. Сечения расчетных моделей АЗ и компенсирующих органов реактора СМ: а — АЗ с отражателем (для 1-го этапа расчета); б, в — ЦКО и КО (для 2-го этапа расчета); 1 — ТВС; 2 — бериллий; 3 — канал в отражателе; 4 — мишень в центральном блоке; 5 — стальные элементы конструкции; 6 — пэл; 7 — вода (размеры указаны в мм)

ми (рис. 1,б) и 4 угловых компенсирующих органа (КО) по 52 пэла в каждом (рис. 1,в). Пэл представляет собой стержень со стальной оболочкой толщиной 0,3 мм и сердечником радиусом $R = 1,75$ мм на основе оксида европия (Eu_2O_3) плотностью $5,7 \text{ г/см}^3$. Высота поглощающей части пэла $H = 360$ мм. Высота АЗ реактора 350 мм [2, 3].

КО состоит из верхней поглощающей части со сборкой пэлов в виде квадратного короба и нижней топливной подвески с рабочей ТВС. Крайнему нижнему положению сборки пэлов соответствует значение $R_{\text{КО}} = 450$ мм, при котором уровни центров АЗ и пэлов совпадают. Выбранный для исследований КО отработал в АЗ реактора с 1977 года в штатном режиме 13,5 года (предельное значение) или 3100 эффективных суток (эф. сут) при мощности реактора 100 МВт. За это время его 27 раз извлекали из АЗ (при перегрузках топливныхборок) и устанавливали обратно без сохранения азимутальной ориентации граней, что привело к усреднению эффекта облучения пэлов на каждой грани. В течение 10 лет до начала исследований КО находился в бассейне выдержки.

Сборка пэлов ЦКО также расположена в его верхней части на окружности диаметром 99 мм и соединена снизу с циркониевой трубой-вытеснителем $\varnothing 103 \times 3$ мм. Крайнему нижнему положению сборки пэлов соответствует значение

$R_{\text{ЦКО}} = 350$ мм. Исследуемый ЦКО отработал в АЗ 1,5 года (190 эф. сут), его два раза извлекали из АЗ и устанавливали обратно, до начала исследований он 6 лет находился в бассейне выдержки.

После разборки выбранных КО и ЦКО была проведена гамма-спектрометрия пэлов с использованием Ge(Li)-детектора, свинцового коллиматора с щелью размером 3×10 мм и многоканального анализатора. Спектрометрический тракт был откалиброван с помощью эталонного источника на основе смеси изотопов европия ^{152}Eu и ^{154}Eu . Погрешность измерений мощности экспозиционной дозы гамма-излучения по модулю не превышала 20 % при доверительной вероятности 0,95.

Результаты измерений высотных распределений активности изотопов ^{152}Eu и ^{154}Eu , усредненные по 4 пэлам ЦКО и 4 пэлам КО, приведены на рис. 2.

Моделирование процесса облучения пэлов в реакторе СМ

На базе кода MCU-RR [4, 5] разработана трехмерная расчетная модель АЗ реактора СМ с детализацией геометрии ЦКО и КО. При моделировании использовались сечения поглощения нейтронов изотопами европия, которые содержатся в библиотеках применяемого кода, соот-

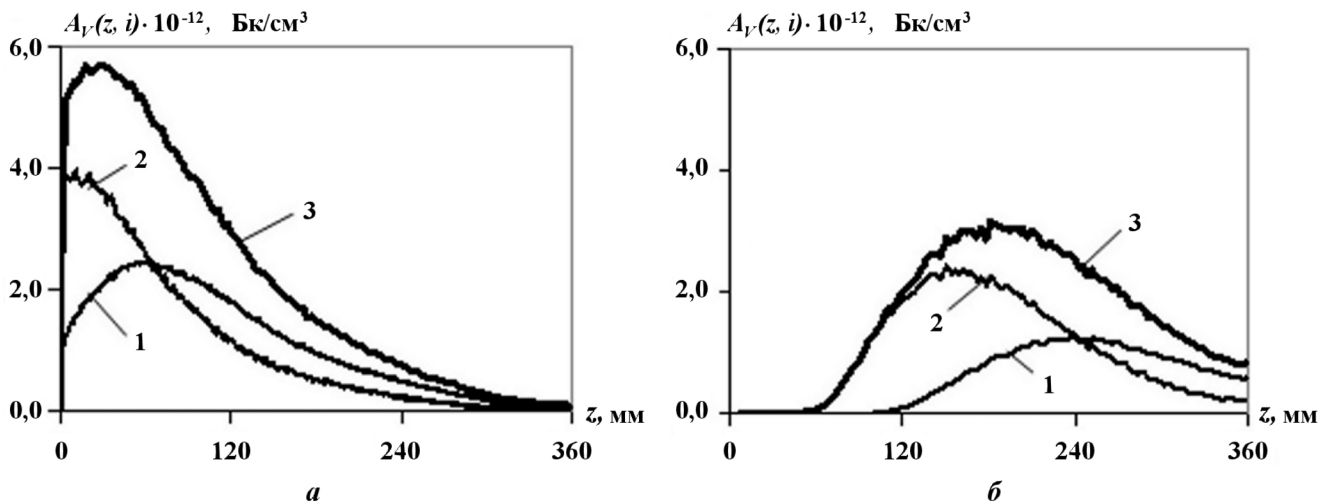


Рис. 2. Экспериментальные высотные распределения объемной активности $A_V(z, i)$ изотопов ^{152}Eu (1), ^{154}Eu (2) и их суммарной активности (3) в пэлах: *a* — ЦКО (время облучения — 190 эф. сут, выдержки — 6 лет); *б* — КО (время облучения — 3100 эф. сут, выдержки — 10 лет)

ветствующие значения сечений поглощения σ_0 при скорости нейтронов $v_0 = 2200 \text{ м/с}$ и периоды полураспада приведены в табл. 1.

Для нескольких фиксированных высотных положений ЦКО (для КО аналогично) по программе MSU-RR с использованием алгоритма АЛИГР были проведены двухэтапные расчеты модельных систем, результаты которых преобразованы в полиномиальные зависимости необходимых скоростей реакций от высотной и радиальной координат точек в объеме усредненного пэла ЦКО (КО) в любой момент времени облучения. Полученные результаты были занесены в базу данных (БД), которая содержала также информацию о графиках изменений мощности реактора и положений всех ОР за весь период их эксплуатации.

В качестве примера на рис. 3–5 приведены некоторые из полученных зависимостей при решении модельных задач для пэла КО. Моменту облучения $t = 1300 \text{ эф. сут}$ ($Q_R = 3,7 \cdot 10^{-5}$) соответствует практически полное выгорание изотопов европия ^{151}Eu и ^{152}Eu , что объясняет резкое увеличение скорости поглощения нейтронов

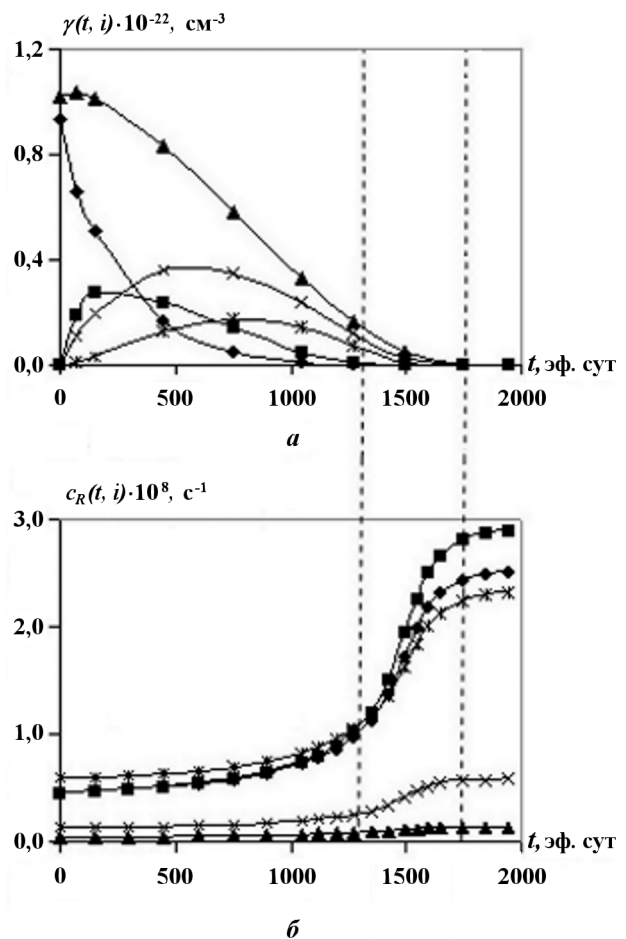


Рис. 3. Зависимости от времени облучения участка пэла КО: *a* — концентраций $\gamma(t, i)$; *б* — скорости поглощения нейтронов $c_R(t, i)$; —♦— — ^{151}Eu ; —■— — ^{152}Eu ; —▲— — ^{153}Eu ; —×— — ^{154}Eu ; —*— — ^{155}Eu

Таблица 1

Константы изотопов европия

Параметр	Изотоп				
	^{151}Eu	^{152}Eu	^{153}Eu	^{154}Eu	^{155}Eu
σ_0 , барн	9 208	12 750	312	1 352	3 760
$T_{1/2}$, год	—	13,33	—	8,59	4,76

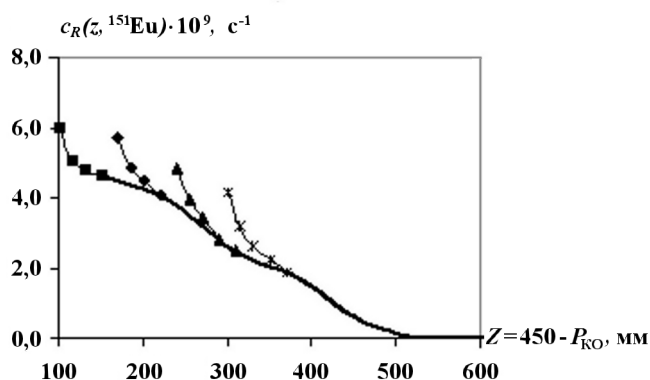


Рис. 4. Высотные распределения $c_R(z, {}^{151}\text{Eu})$:
 —■— $P_{\text{КО}} = 350$ мм, —◆— $P_{\text{КО}} = 280$ мм,
 —▲— $P_{\text{КО}} = 210$ мм, —×— $P_{\text{КО}} = 150$ мм

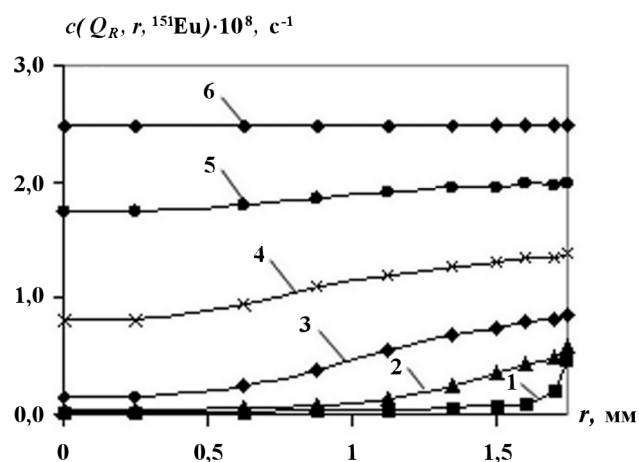


Рис. 5. Радиальные распределения $c(Q_R, r, {}^{151}\text{Eu})$:
 1 — $Q_R = 1,0 \cdot 10^{-5}$; 2 — $Q_R = 2,8 \cdot 10^{-5}$; 3 — $Q_R = 4,0 \cdot 10^{-5}$; 4 — $Q_R = 6,2 \cdot 10^{-5}$; 5 — $Q_R = 9,2 \cdot 10^{-5}$;
 6 — $Q_R = 1,1 \cdot 10^{-4}$

$c_R(t, i)$ при дальнейшем облучении. За время облучения 1 750 эф. сут ($Q_R = 9,2 \cdot 10^{-5}$) в моделируемой области пэла КО все изотопы европия с атомной массой ≤ 155 практически полностью превращаются в изотопы с малым сечением поглощения тепловых нейтронов, что приводит к исчезающей зависимости величин $c_R(t, i)$ от времени.

Далее для пэла ЦКО (КО), разбитого на $N_z = 120$ высотных слоев и $N_r = 35$ радиальных зон, решали основную задачу. Задавали *пошаговое* перемещение пэла из крайнего нижнего положения в АЗ в соответствии с реальным графиком перемещений ОР в реакторе. Для ин-

тервала времени Δt_k между двумя последовательными перемещениями из БД выбирали соответствующие значения мощности реактора ($0 < W_P < 100$ МВт) и скорости поглощения нейтронов $c(t, r, z, i)$ изотопами европия в каждой из $120 \times 35 = 4\,200$ зон поглотителя (с учетом величины Q_R). В циклах по N_z слоям и N_r зонам решали систему уравнений изотопной кинетики относительно концентраций $\gamma(t, r, z, i)$. Далее пэл перемещали на следующий уровень и описанную процедуру повторяли до полного извлечения пэла из АЗ.

Результаты моделирования радиальных и высотных распределений концентраций изотопов ${}^{152}\text{Eu}$ и ${}^{154}\text{Eu}$ в пэлах ЦКО и КО для различных значений времени облучения в реакторе СМ приведены на рис. 6, 7 и в табл. 2, 3.

Таблица 2

Расчетные (P , $\Delta t_{\text{об}} = 75$ сут) и экспериментальные (Θ) значения высотных координат h^{max} максимумов активности изотопов европия в пэле КО в момент измерений

Изотоп	$h^{\text{max}}, \text{мм}$			Активность на уровне h^{max} , $10^{10} \cdot \text{Бк}$		
	P	Θ	P/Θ	P	Θ	P/Θ
${}^{152}\text{Eu}$	226	235	0,96	4,1	3,7	1,11
${}^{154}\text{Eu}$	151	156	0,97	7,2	7,4	0,97
${}^{152}\text{Eu} + {}^{154}\text{Eu}$	180	175	1,03	10,0	$9,6 \pm 0,4$	1,04

Таблица 3

Расчетные значения при $\Delta t_{\text{об}} = 75$ сут (P_{max} — максимальное при облучении, P_{fin} — в момент завершения облучения, $P_{\text{э}}$ — в момент измерений) и экспериментальные значения (Θ) активности изотопов европия в объеме пэла ЦКО и пэла КО (10^{10} Бк)

Пэл	Изотоп	P_{max}	P_{fin}	$P_{\text{э}}$	Θ	$P_{\text{э}}/\Theta$
ЦКО	${}^{152}\text{Eu}$	5,9	4,9	3,6	$3,8 \pm 0,4$	0,93
	${}^{154}\text{Eu}$	9,0	5,9	3,7	$3,8 \pm 0,4$	0,97
	${}^{155}\text{Eu}$	6,0	2,7	1,11	—	—
КО	${}^{152}\text{Eu}$	6,0	4,0	2,3(2,1)*	$1,9 \pm 0,2$	1,24(1,12)
	${}^{154}\text{Eu}$	12,0	8,6	3,9(3,6)	$3,4 \pm 0,4$	1,15(1,05)
	${}^{155}\text{Eu}$	7,0	4,9	1,15	—	—

*В скобках приведены экстраполированные значения при $\Delta t_{\text{об}} \rightarrow 0$.

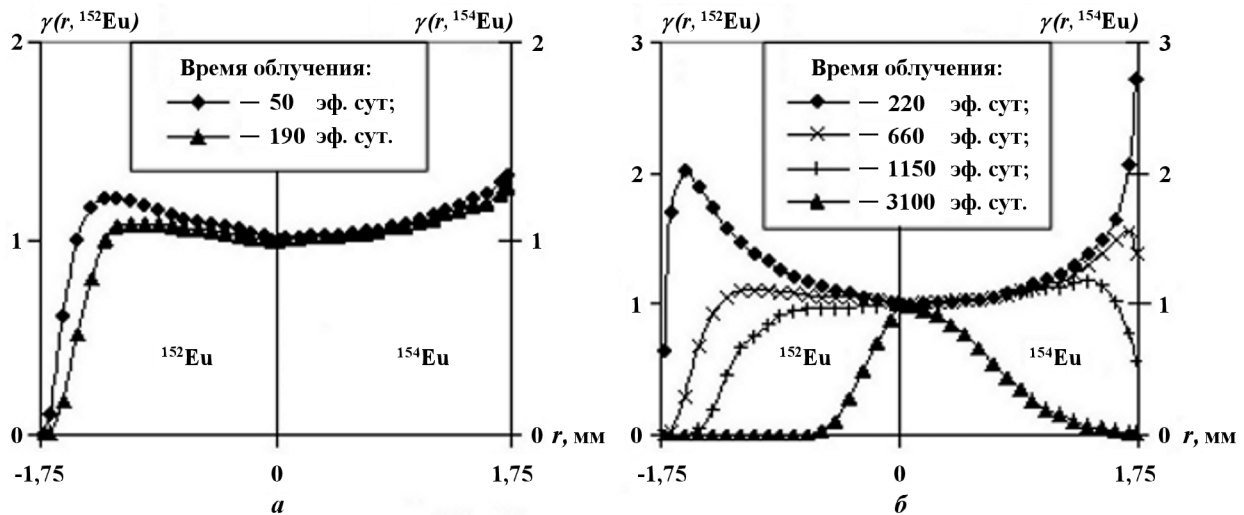


Рис. 6. Радиальные распределения концентраций ядер ^{152}Eu и ^{154}Eu при разном времени облучения пэла ЦКО при $z = 30$ мм (а) и пэла КО при $z = 180$ мм (б). Значения $\gamma(r, i)$ нормированы на соответствующие концентрации в центре пэла

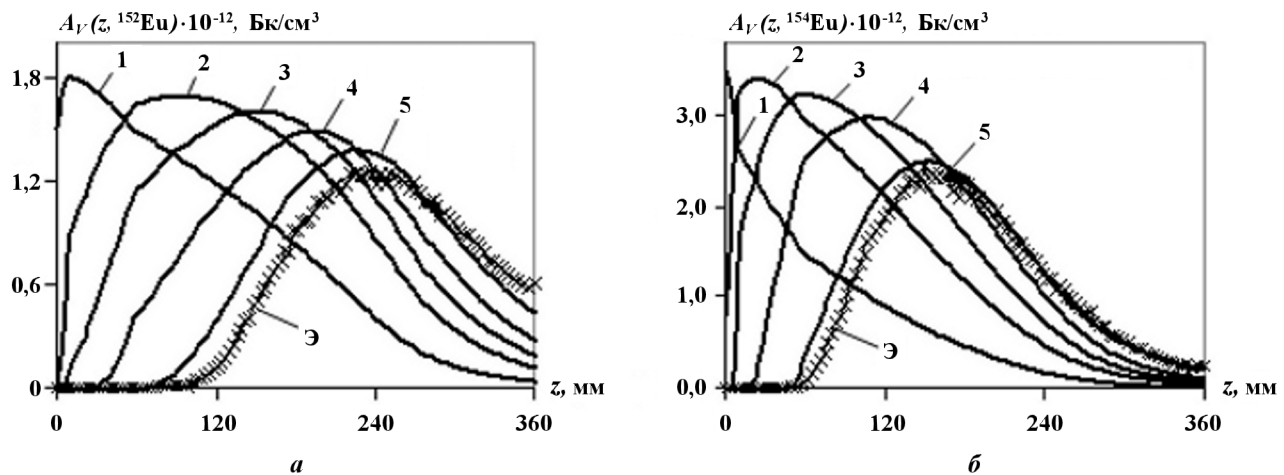


Рис. 7. Расчетные высотные распределения объемной активности $A_V(z, i)$ в пэле КО при разном времени облучения: а — для изотопа ^{152}Eu ; б — для изотопа ^{154}Eu ; Э — экспериментальные распределения; 1 — $t = 220$ эф. сут; 2 — $t = 660$ эф. сут; 3 — $t = 1150$ эф. сут; 4 — $t = 1840$ эф. сут; 5 — $t = 3100$ эф. сут

Анализ результатов

Результаты расчетов активности изотопов европия в пэлах ЦКО и КО, приведенные в табл. 2, 3, получены при значении параметра $\Delta t_{об} = 75$ сут, т. е. модельная задача 2 для пэла КО была решена за 26 обращений к программе MSU-RR. При этом получено удовлетворительное согласие расчетных и экспериментальных результатов при решении основной задачи.

Расчетные значения концентраций и активности изотопов европия в пэле ЦКО не изменяются при уменьшении величины $\Delta t_{об}$, так как при числе поглощений $Q_R < 10^{-5}$ скорости реакций

$c(z, r, i)$ слабо зависят от изменения концентраций изотопов в пэле. Для пэла КО значения Q_R достигают $\sim 10^{-4}$ и степень зависимости расчетных значений активности от $\Delta t_{об}$ должна быть оценена.

Поскольку трудоемкость расчетов существенно возрастает при $\Delta t_{об} < 75$ сут, использовался метод экстраполяции функциональных зависимостей расчетных значений, получаемых при $\Delta t_{об} = 400, 150$ и 75 сут, в область значений аргумента $\Delta t_{об} \rightarrow 0$. На рис. 8 представлены полученные таким способом высотные распределения суммарной активности двух изотопов европия.

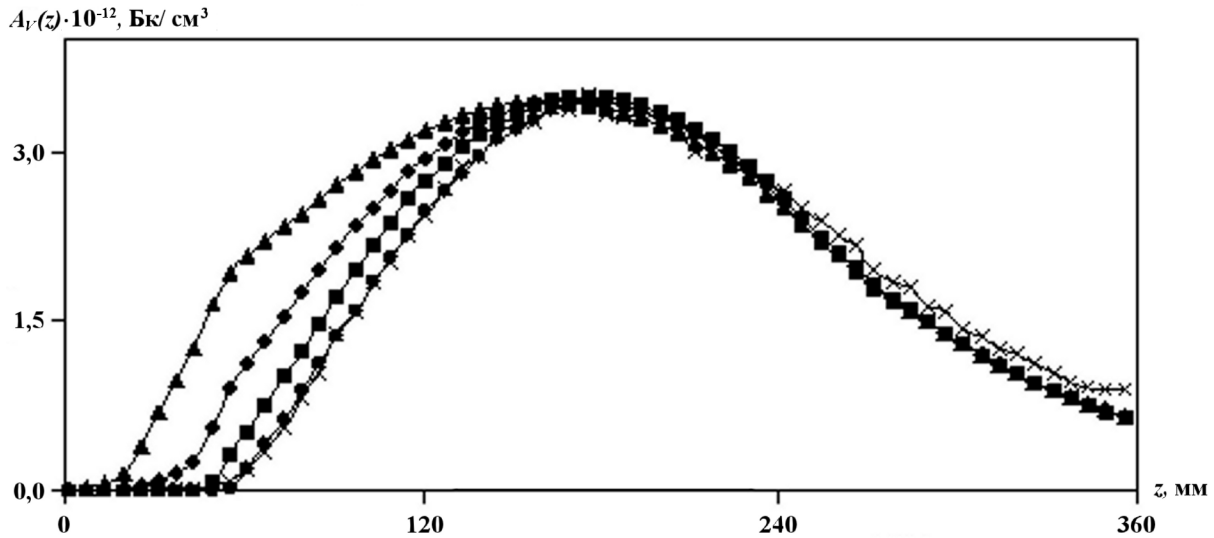


Рис. 8. Расчетные высотные распределения суммарной активности $A_V(z)$ изотопов ^{152}Eu и ^{154}Eu в пэле КО при различных значениях параметра $\Delta t_{об}$: \blacktriangle — $\Delta t_{об} = 400$ сут; \blacklozenge — $\Delta t_{об} = 150$ сут; \blacksquare — $\Delta t_{об} = 75$ сут; \bullet — $\Delta t_{об} \rightarrow 0$; \times — эксперимент

Координаты максимумов и правые части этих распределений практически не смещаются, и только их левые фронты приближаются к экспериментальному распределению при уменьшении параметра $\Delta t_{об}$. В результате интервал отношений соответствующих расчетных и экспериментальных значений ($P_{\text{Э}}/\text{Э}$) сокращается с $0,93 \div 1,24$ до $0,93 \div 1,12$.

Оценены вклады изотопа ^{155}Eu в расчетные значения суммарной активности пэлов ЦКО и КО, составившие:

- в момент завершения облучения, после 190 и 3100 эф. сут, соответственно 20 и 28 %;
- в момент измерений через 6 и 10 лет выдержки соответственно 13 и 16 %.

Заклучение

С использованием разработанного алгоритма выявлены основные закономерности изменений изотопного состава европиевого поглотителя в пэлах исследовательского реактора СМ, продемонстрировано согласие результатов моделирования с соответствующими экспериментальными данными. Возможности прецизионной программы, в которой применяется данный алгоритм, позволяют определять наряду с изменением поглощающих свойств европиевых пэлов их радиационные характеристики после облучений в любом ядерном реакторе, что необходимо для обоснования использования таких пэлов в качестве

гамма-источников в промышленных установках для радиационной обработки различных материалов.

Список литературы

1. *Рисованный В. Д., Клочков Е. П.* Утилизация европийсодержащих органов регулирования ядерных реакторов путем создания гамма-источников на основе европия // Сб. докл. на Межд. науч. семинаре "Анализ рисков, связанных с выводом из эксплуатации, хранением и утилизацией атомных подводных лодок". Москва, 24–26 ноября 1997 г. С. 119–134.
2. *Клочков Е. П., Рисованный В. Д., Ванев Ю. Е., Дорофеев А. Н.* Радиационные характеристики европийсодержащих органов СУЗ реактора СМ-2 после длительной эксплуатации // Атомная энергия. 2002. Т. 93(2). С. 114–116.
3. Исследовательские реакторы НИИАР и их экспериментальные возможности / Под науч. ред. проф. В. А. Цыканова. Димитровград: НИИАР, 1991.
4. *Гомин Е. А.* Статус МСУ-4 // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. 2006. Вып. 1. С. 6–32.

5. Ванев Ю. Е. Разработка комплекса программных средств для сопровождения эксплуатации исследовательских реакторов // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов. 2006. Вып. 1. С. 84–92.
6. Kalugin M., Maiorov L. Application of the Monte-Carlo method for analyzing the IGR reactor experiments // Proc. of Radiation

Protection & Shielding Topical Meeting. Falmouth, Mass. April 21–25, 1996. ANS, USA.

Статья поступила в редакцию 25.08.08.
