

I. Kodeli, A. Trkov, M. Najžer  
 Institut "Jožef Stefan", Ljubljana

C. Ertek  
 IAEA, Dunaj, Avstrija

## DOLOČITEV ZGORELOSTI REAKTORskega GORIVA Z METODO PASIVNE NEVTRONSKE PREISKAVE \*

### DETERMINATION OF REACTOR FUEL BURNUP USING PASSIVE NEUTRON ASSAY

**Povzetek** - Pasivna nevtronska preiskava jedrskega goriva se uporablja za verifikacijo vsebnosti fisijskega materiala v obsevanem reaktorskem gorivu. Predstavili bomo rezultate analize karakteristik metode, ki so bile opravljene na Institutu Jožef Stefan. Obravnavali smo odvisnost nevtronskega izvora v gorivu od zgorelosti, časa ohlajanja, začetne obogatitve goriva in specifične moči obratovanja reaktorja ter ocenili natančnost metode ob uporabi obstoječih programov.

**Abstract** - Passive neutron assay (PNA) method was developed to verify the fissile inventory of the irradiated reactor fuels. The characteristics of the method were studied at "Jožef Stefan" Institute. The dependence of neutron source in the fuel on burnup, cooling time, initial enrichment and specific power was investigated and the accuracy of the method, using available computer codes was estimated.

## 1 Uvod

Naraščajoče število jedrskih reaktorjev in omejene kapacitete za reprocesiranje goriva povzročajo čedalje večje potrebe po kratko in dolgoročnem shranjevanju iztrošenih gorivnih elementov. S stališča varnosti shranjevanja kakor tudi zaradi preprečevanja uporabe goriva v vojaške namene mora imeti IAEA možnost preveritve vsebnosti fisijskega materiala v obsevanem gorivu. V ta namen je bila za potrebe IAEA poleg ostalih metod (gama spektroskopije, metode Čerenkovega sevanja, aktivne nevtronske preiskave) razvita tudi metoda pasivne nedestruktivne nevtronske preiskave obsevanega goriva (PNA). Metoda temelji na ugotovitvi, da je nevtronski izvor v obsevanem gorivu po izvlečenju iz reaktorja sorazmeren z zgorelostjo goriva za določeno območje zgorelosti in časov ohlajanja goriva [1],[2]. PNA metodo lahko uporabljamo za meritev zgorelosti goriva vsaj v področju med 15-30 GWd/MTU. Ko poznamo zgorelost goriva lahko po običajnih postopkih izračunamo vsebnost fisijskih

\*Delo je podprla Mednarodna agencija za atomsko energijo (IAEA) z Raziskovalnim projektom 4413/RB

Tabela 1: Podatki o spontani fisiji in ( $\alpha, n$ ) reakcijah, uporabljeni v programu ORIGEN2.

Izvor	Razpadni čas	Neutronski pridelek na gram na sekundo	
	[leta]	spont.fisija	( $\alpha, n$ ) v oksidu
$^{238}\text{Pu}$	$8.95 \cdot 10^1$	$2.66 \cdot 10^3$	$1.63 \cdot 10^4$
$^{239}\text{Pu}$	$2.45 \cdot 10^4$	-	$4.53 \cdot 10^1$
$^{240}\text{Pu}$	$6.67 \cdot 10^3$	$9.10 \cdot 10^2$	$1.73 \cdot 10^2$
$^{242}\text{Pu}$	$3.95 \cdot 10^6$	$1.69 \cdot 10^3$	-
$^{241}\text{Am}$	$4.41 \cdot 10^2$	-	$3.29 \cdot 10^3$
$^{242}\text{Cm}$	$4.56 \cdot 10^{-1}$	$2.15 \cdot 10^7$	$4.40 \cdot 10^8$
$^{244}\text{Cm}$	$1.85 \cdot 10^1$	$1.11 \cdot 10^7$	$9.24 \cdot 10^4$

materialov v gorivu.

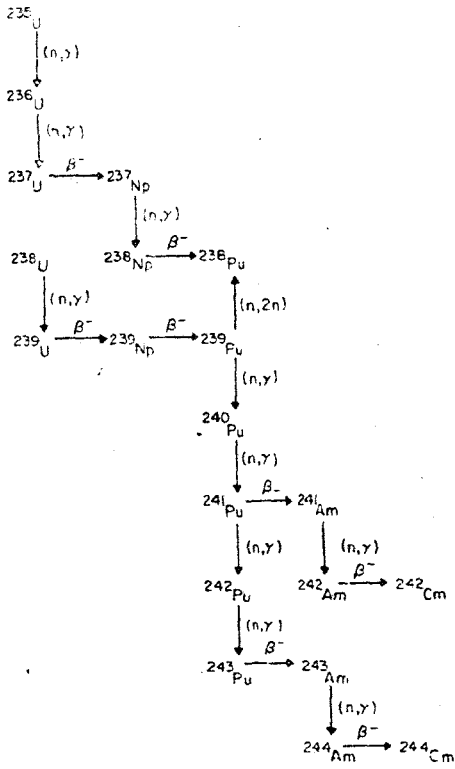
Naš namen je bil preučiti odvisnost nevtronskega fluksa v obsevanem gorivnem elementu od zgoreslosti in časa ohlajanja goriva. S programom ORIGEN 2 [3] smo izračunali nevtronski izvor zaradi spontane fisije in ( $\alpha, n$ ) reakcij za različno zgoreslost in čase ohlajanja goriva. Ker se preiskeva goriva običajno izvaja pod vodo, je bilo za določitev dejanskega nevtronskega fluksa potrebno upoštevati nevtronsko pomnoževanje. Pomnoževalni faktor smo izračunali s programom DOT [4].

## 2 Nevtronski izvor

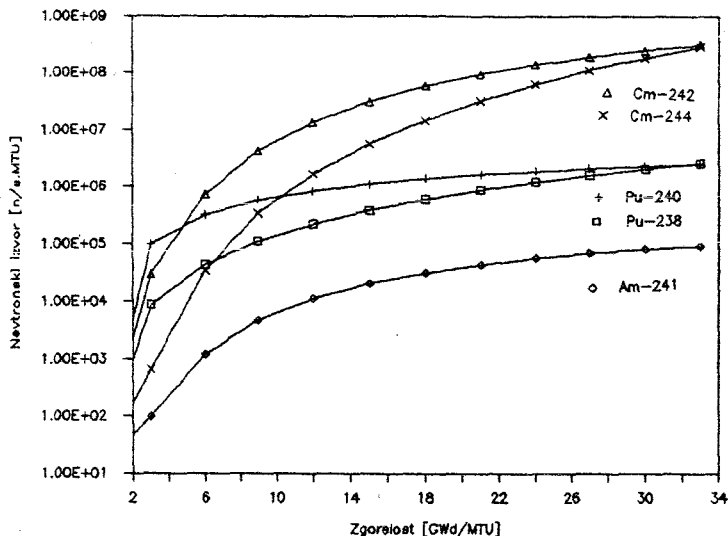
V zgorelem gorivu sta glavna izvora nevtronov spontana fisija izotopov plutonija in curija in interakcije alfa delcev s kisikom, prisotnim v oksidnem gorivu. Alfa delci se izsevajo iz curijevih, američijevih in plutonijevih izotopov. Nevtronski izvor iz najpomembnejših izotopov za zgoreslost goriva do 33 GWd/MTU in čase ohlajanja goriva do 7 let smo izračunali s programom ORIGEN-2. ORIGEN je široko uporaben 1-grupni računalniški program za izračun nastajanja, razpada in procesiranja radioaktivnih materialov. Razpadne konstante in nevtronski pridelki, ki jih program uporablja za izračun nevtronskega izvora zaradi spontane fisije in ( $\alpha, n$ ) reakcij, so podani v Tabeli 1.

Slika 2 prikazuje rezultate preračuna goriva tipičnega lahkovodnega reaktorja za primer 3-letnega neprekinjenega delovanja reaktorja na specifični moči 37.75 MW/MTU, kar je povzročilo končno zgoreslost 33 GWd/MTU. Na Slikah 3 a in c pa je prikazana odvisnost nevtronskega izvora od časa ohlajanja za dve zgoreslosti goriva. S slik je razvidno, da je nevtronski izvor strma funkcija zgoreslosti goriva-izvor je sorazmeren s približno četrto potenco zgoreslosti. Za meritve zgoreslosti je to ugodno, kajti toleriramo lahko znatne nenatančnosti pri meritvah nevtronskega izvora.

Opazimo tudi, da sta  $^{242}\text{Cm}$  in  $^{244}\text{Cm}$  glavna izvora nevtronov v tem področju zgoreslosti in časih ohlajanja goriva. Približno dve leti po izvlečenju goriva večina  $^{242}\text{Cm}$  razpade in prispeva v glavnem



Slika 1: Produkcijnska shema transuranskih izotopov.



Slika 2: Nevtronski izvor iz Pu-238, Pu-240, Cm-242 and Cm-244 isotopov pri zgorlosti med 0 in 33 GWd/MTU, izračunan s programom ORIGEN2 za gorivo tipičnega tlačnovodnega reaktorja z obogatitvijo 3.1 ut.% U-235.

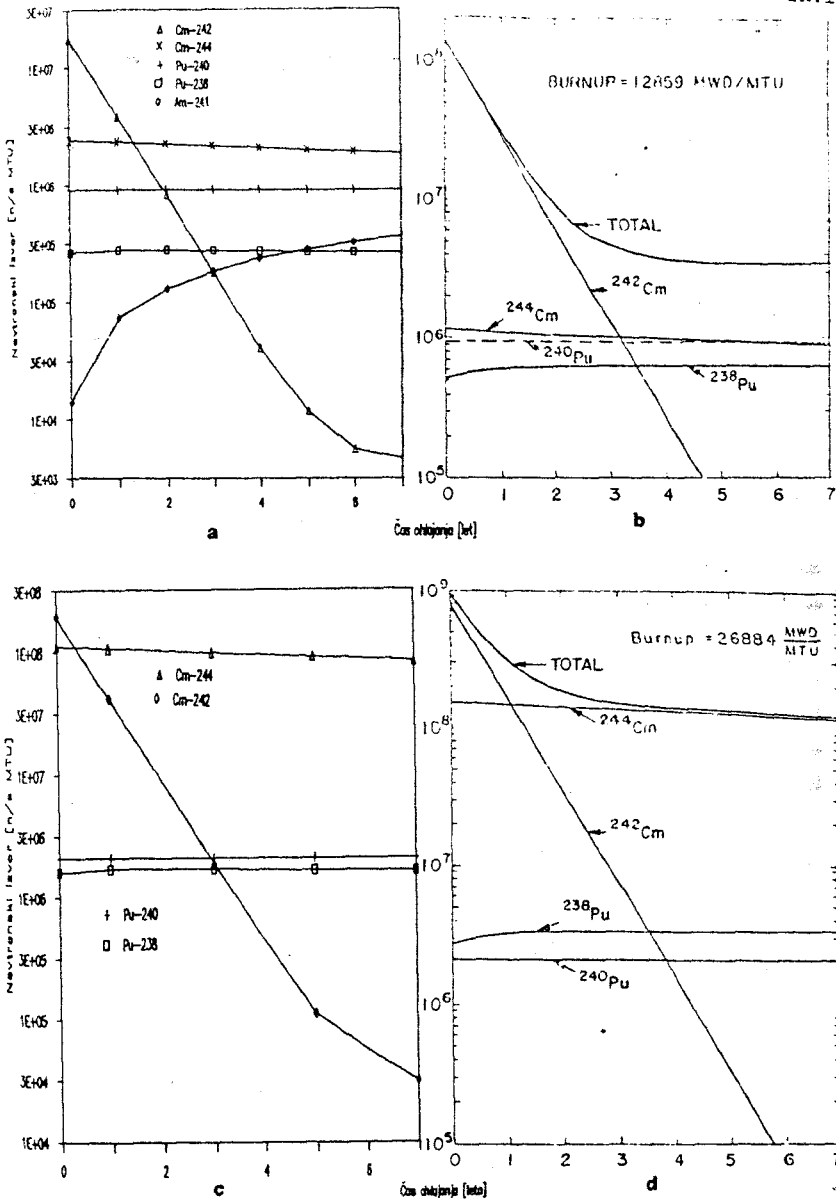
le še  $^{244}\text{Cm}$ . Do zgorlosti  $\sim 15$  GWd/MTU so poleg curijevih pomembni tudi plutonijevi izotopi.

Analize odvisnosti nevtronskega izvora od začetne obogatitve goriva so pokazale na znatne razlike v nevtronskem izvoru iz  $^{244}\text{Cm}$  in plutonijevih izotopov. Kot je razvidno s Slike 4 je n.pr. v gorivu z obogatitvijo 2.1 ut.%  $^{235}\text{U}$  nevtronski izvor iz  $^{244}\text{Cm}$   $\sim 3$ -krat večji kot v gorivu z obogatitvijo 3.1 ut.%  $^{235}\text{U}$ .

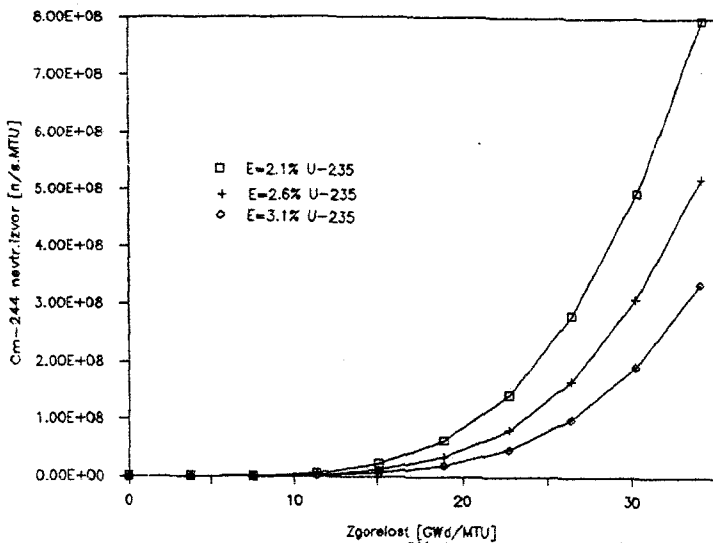
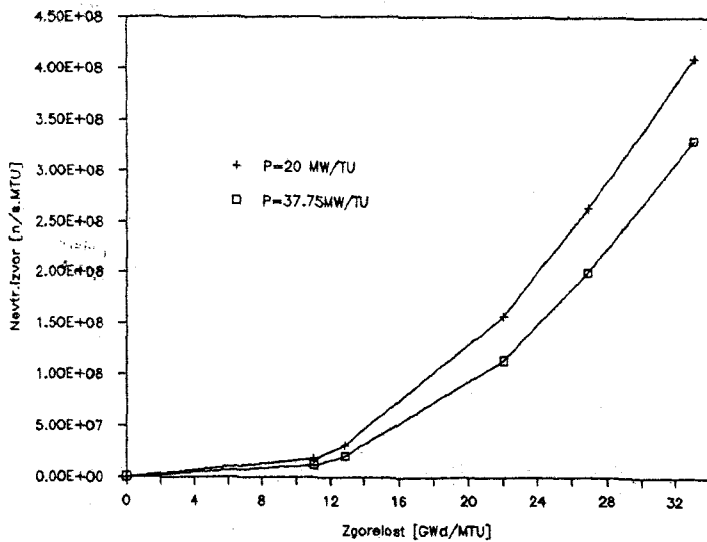
Ugotovili smo tudi, da koncentracija  $^{242}\text{Cm}$  močno zavisi od zgodovine obratovanja reaktorja in od specifične moči. Razlike v koncentraciji  $^{242}\text{Cm}$  med obratovanjem reaktorja na specifični moči 20 oz. 37.75 MW/MTU dosegajo do 50% (Slika 5). Vzrok je v kontinuiranem nastajanju  $^{241}\text{Am}$  z  $\beta$  razpadom  $^{241}\text{Pu}$ , iz katerega nato nastaja  $^{242}\text{Cm}$  (Slika 1). Pri meritvah pri majhnih časih ohlajanja (pod 1-2 leti), ko je koncentracija  $^{242}\text{Cm}$  še znatna, je zato potrebno upoštevati še zgodovino obratovanja reaktorja. Po drugi strani pa koncentracija  $^{244}\text{Cm}$  le rahlo zavisi od zgodovine obratovanja.

Pri primerjavi zgornjih rezultatov z rezultati analize goriva reaktorja Trino Vercelese (prikazani na Sliki 3, vzeti iz ref.[2]) smo opazili znatne razlike: nevtronska izvora iz  $^{242}\text{Cm}$  se razlikujeta za faktor 4-8, izvora iz  $^{244}\text{Cm}$  pa za 50 do 100%. Iz relacije med nevtronskim izvorom in zgorlostjo sklepamo, da bi opažene razlike v koncentraciji  $^{244}\text{Cm}$  povzročile  $\sim 10$ -20% razlike v ocenjeni zgorlosti goriva.

Vzroki za razlike med rezultati preračunov z ORIGEN-om in preiskave Trino goriva so verjetno



Slika 3: Odvisnost nevtronskega izvora iz curijevih in plutonijevih izotopov od časa ohlajanja goriva za zgorlosti goriva 12859 MWd/MTU in 26884 MWd/MTU. Podani so rezultati izračunov s programom ORIGEN (a,c) in preiskave goriva reaktorja Trino (b,d).

Slika 4: Odvisnost nevtronskega izvora iz  $^{244}\text{Cm}$  od začetne obogatitve.Slika 5: Odvisnost nevtronskega izvora iz  $^{244}\text{Cm}$  od zgorelosti pri dveh specifičnih močeh reaktorja (20 and 37.75 MW/TU)

deloma v različni zgodovini obratovanja reaktorja (pri  $^{242}\text{Cm}$  koncentraciji), deloma pa v tem, da 1-grupni preseki in fisiski pridelki v programu ORIGEN-2 ustrezajo neki referenčni tlačnovodni elektrarni in so bili dobljeni na podlagi različnih aproksimacij.

### 3 Izračun pomnoževalnega faktorja

Za primer, da se meritve nevtronskega fluksa izvaja v vodi, smo obravnavali pomnoževanje nevtronov v izoliranem gorivnem elementu NE Krško, potopljenem v borirani vodi. Za preračun se je izkazal kot najprimernejši transportni program DOT 4.2, ki rešuje transportno enačbo po metodi diskretnih ordinat. Program omogoča preračune kritičnosti, anizotropija sipanja (ki je pomembna v vodi) pa se upošteva z razvojem sipalnih presekov po Legendrovih polinomih. Nevtronske preseke smo dobili iz WIMS [5] 69-grupne knjižnjice presekov. Knjižnjica vsebuje zadostno število termičnih energijskih grup (42 z energijo pod 4eV) in upoštevano je sipanje iz grup z nižjo v grupe z višjo energijo, zaradi česar je primerna za preračune kritičnosti. Glavna pomanjkljivost je, da knjižnjica vsebuje večinoma le  $P_0$  člene razvoja sipalnih presekov po Legendrovih polinomih, razen za vodik, devterij, kisik in ogljik, kjer so upoštevani še  $P_1$  členi. Preseke smo procesirali z WIMS in ANISN [6] računalniškimi programi in dobili 18-grupne preseke za homogenizirano gorivno celico in vodo, primerne za preračune z DOT-om.

Ustreznost računskih modelov smo preverili z obstoječimi difuzijskimi programi, ki jih uporabljamo v projektnih preračunih sredice. Primerjali smo rezultate obeh metod za primer neskončnega seta gorivnih elementov, kar lahko ustrezno obravnavamo z obstoječimi metodami. Ujemanje pomnoževalnih faktorjev je bilo zadovoljivo (pod 400pcm), kar je potrdilo ustreznost metode.

Enako metodo smo nato uporabili za izračun pomnoževalnega faktorja in porazdelitve nevtronskega fluksa v okolici izoliranega gorivnega elementa. Računali smo za zgorelost goriva 20 GWd/MTU in borovo koncentracijo v vodi 2000 ppm. Izračunani  $k_{eff}$  pri temperaturi vode 20°C je znašal 0.47, pri temperaturi 60°C pa 0.43. Po enačbi (ref.[7],str.223):

$$M = \frac{1}{1 - k}, \quad k < 1 \quad (1)$$

kjer je M faktor pomnoževanja izvora, bi se pri teh pomnoževalnih faktorjih nevtronski izvor povečal za faktorja ~1.9 oz. 1.8.

### 4 ZAKLJUČKI

Nevtronski izvor v obsevanem reaktorskem gorivu je sorazmeren s približno četrto potenco zgorelosti. Metoda je zato ugodna za meritev zgorelosti goriva, kajti napaka v ocenjeni zgorelosti je zato znatno

manjša od napake pri meritvi oz. izračunu nevtronskega izvora. Pri n.pr. 10% zahtevani natančnosti zgorelosti si lahko privoščimo 50% napako v nevtronskem izvoru.

V področju zgorelosti nad 15 GWd/MTU in pri časih ohlajanja goriva nad 2 leti je korelacija med zgorelostjo in nevtronskim izvorom razmeroma enostavna, kajti k nevtronskemu izvoru prispeva praktično samo  $^{244}\text{Cm}$ . Razpadni čas  $^{244}\text{Cm}$  je razmeroma dolg ( $\sim 1.9$  let) in njegova koncentracija zavisi le od obogatitve goriva. Pri časih ohlajanja pod 2 leti je pomemben še  $^{242}\text{Cm}$ , katerega koncentracija pa je odvisna od zgodovine obratovanja in specifične moči reaktorja, kar dodatno zaplete meritve. Pri zgorelostih pod  $\sim 15$  GWd/MTU je potrebno upoštevati še nevtronski izvor iz  $^{238}\text{Pu}$  in  $^{240}\text{Pu}$ .

Znatne razlike smo opazili med izračuni s programom ORIGEN in meritvami na Trino Vercelese reaktorskem gorivu. Razlike v koncentraciji  $^{242}\text{Cm}$  so verjetno delno posledica drugačne zgodovine obratovanja reaktorja Trino kot je bila predpostavljena v našem računu, glavni vzrok razlik v koncentraciji  $^{244}\text{Cm}$  pa je verjetno v aproksimacijah, uporabljenih pri izračunu 1-grupnih presekov v ORIGEN knjižnici. Kaže, da je natančnost z ORIGEN-om izračunane koncentracije  $^{244}\text{Cm}$  znotraj 50-100%, kar bi omogočilo določitev zgorelosti goriva znotraj 10-20%.

Ker se meritve običajno izvajajo pod vodo, je potrebno upoštevati nevtronsko pomnoževanje. Pri zgorelosti goriva 20 GWd/MTU, začetni obogatitvi 3.1 ut.%  $^{235}\text{U}$  in borovi koncentraciji v vodi 2000ppm se nevtronski izvor pomnoži približno za 2-krat. Ker pomnoževalni faktor močno zavisi od različnih parametrov (kot n.pr. zgorelosti, začetne obogatitve, borove koncentracije, profila zgorelosti in obogatitve) pričakujemo, da je pri meritvah potrebno upoštevati detaljne karakteristike goriva in razmere pri meritvi.

## Literatura

- [1] S.T.Hsue et. all., Passive Neutron Assay Of Irradiated Nuclear Fuels, Los Alamos Scientific Laboratory, Nuclear Materials Management, 1979
- [2] S.T.Hsue, Methods for the Non-destructive Assay of Irradiated Nuclear Fuels for Safeguards, Atomic Energy Review 16 1 (1978)
- [3] A. G. Croff, ORIGEN2 Isotope Generation and Depletion Code - MATRIX EXPONENTIAL METHOD, RSIC Code Package CCC-371, ORNL, July 1980
- [4] W. A. Rhoades, DOT IV Version 4.2 Two-Dimensional Discrete Ordinates Radiation Transport Code System, RSIC Code Package CCC-320, ORNL, 1979
- [5] K. Kowalska, The S-WIMS Code for the CYBER-72 Computer, INR-1509/CYFRONET/PR/A, /1975/
- [6] W. W. Engle, JR., ANISN, a One Dimensional Discrete Ordinates Transport Code with Anisotropic Scattering, K-1639, march 1967
- [7] G. R. Keepin, Physics of Nuclear Kinetics, Addison Wesley Publishing Company, inc., 1965