

dr inż. Jan Matuła

Instytut Techniki Ciepłej
Politechniki Warszawskiej

OCENA ZASOBÓW PRODUKTÓW ROZSZCZEPIENIA W PALIWIE JĄDROWYCH REAKTORÓW ENERGETYCZNYCH

W artykule omówiono powstawanie radioaktywnych produktów rozszczepienia w rdzeniu jądrowego reaktora energetycznego. Podano sposoby obliczenia zmian koncentracji atomów tych produktów w paliwie w czasie pracy reaktora.

Wykazano, że dla większości produktów rozszczepienia, w stanie ustalonym, stosunek koncentracji atomów danego izotopu do początkowej koncentracji atomów U-235 zależy wprost proporcjonalnie od strumienia neutronów termicznych.

Przedstawiono uproszczony sposób oceny koncentracji nasycenia wybranych produktów rozszczepienia w paliwie reaktora WWER-440 na podstawie danych opublikowanych w pracy [1].

Podano przykładowe obliczenia aktywności J-131 w rdzeniu reaktora WWER-440 w stanie ustalonym.

1. WSTĘP

Elektrownie ciepłe spalające węgiel kamienny lub brunatny są bardzo uciążliwe dla środowiska. Emitują one do otoczenia duże ilości pyłu, tlenku siarki oraz pewne mierzalne ilości pierwiastków promieniotwórczych, zawartych w węglu.

W porównaniu z nimi, elektrownia jądrowa (jak wynika z dotychczasowych doświadczeń) może być uważana za elektrownię "czystą". Ponieważ jednak elektrownia jądrowa jest urządzeniem, w którym są produkowane i akumulowane izotopy promienio-

twórcze, istnieje znikome prawdopodobieństwo, że w wypadku awarii izotopy te mogą wydostać się do otoczenia. W takim przypadku konsekwencje dla środowiska byłyby bardzo groźne. Aktywność produktów rozszczepienia może osiągnąć w rdzeniu reaktora energetycznego wartość około 10^{10} Ci. W czasie normalnej eksploatacji, wydostawaniu się izotopów promieniotwórczych do otoczenia elektrowni jądrowej, zapobiega szereg barier technicznych. Istnieje jednak potencjalne niebezpieczeństwo, że w przypadku awarii bariery te przestaną działać. Wydostanie się dużych ilości promieniotwórczych izotopów do otoczenia elektrowni jądrowej stworzyłoby poważne zagrożenie życia biologicznego na znacznym obszarze wokół elektrowni.

Przy projektowaniu i lokalizacji elektrowni jądrowej bierze się pod uwagę możliwość zajścia takiej awarii. Raport bezpieczeństwa opracowany dla danej elektrowni jądrowej zawiera m.in. ocenę zagrożenia radiologicznego środowiska w czasie normalnej eksploatacji elektrowni jądrowej oraz w czasie ewentualnej awarii. Tego typu oszacowania są również wskazówką do wyboru lokalizacji, konstrukcji odpowiednich urządzeń zabezpieczających i ograniczających skutki awarii oraz opracowania odpowiedniej technologii usuwania skutków awarii.

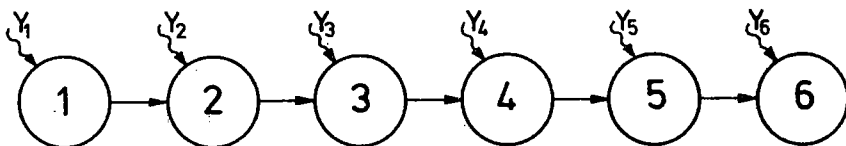
Podstawową wielkością wyjściową do oszacowania stopnia zagrożenia radiologicznego środowiska jest ilość produktów rozszczepienia nagromadzonych w rdzeniu reaktora w czasie eksploatacji do momentu awarii.

Celem niniejszego artykułu jest przedstawienie jednego z możliwych, uproszczonego sposobu oszacowania tej wielkości.

2. PRODUKTY ROZSZCZEPIENIA

Wszystkie pierwiastki promieniotwórcze, które powstają i gromadzą się w paliwie reaktora w czasie normalnej eksploatacji, nazwano produktami rozszczepienia. W każdym akcie rozszczepienia powstają co najmniej dwa fragmenty o różnych liczbach masowych. Fragmenty te, zwane pierwotnymi produktami roz-

szczepienia, są jądrami izotopów promieniotwórczych różnych pierwiastków. W łańcuchowej reakcji rozszczepienia, wydajność z jaką powstają te izotopy zależy od ich liczby masowej. Pierwotne produkty rozszczepienia w chwili powstania posiadają za dużo neutronów w stosunku do nowej liczby protonów, z tego względu są one nietrwałe i ulegają rozpadowi promieniotwórczemu β . W wyniku tego rozpadu powstają promieniotwórcze izobary, zwane produktami wtórnymi. Każdy fragment pierwotny daje początek całemu łańcuchowi przemian promieniotwórczych, który kończy się na izobarze trwałym. Na rys.1 przedstawiono schemat prostego łańcucha izobarów. Oprócz tego, każdy produkt wtórny powstający w wyniku rozpadu promieniotwórczego poprzednika może również powstawać jako produkt pierwotny w wyniku rozszczepienia jądra. Wszystkie produkty rozszczepienia wchodzące w skład jednego łańcucha mogą absorbować neutrony, w wyniku czego powstają izotopy o liczbie masowej większej o jeden, wchodzące w skład innego łańcucha. W wyniku tego zjawiska tworzą

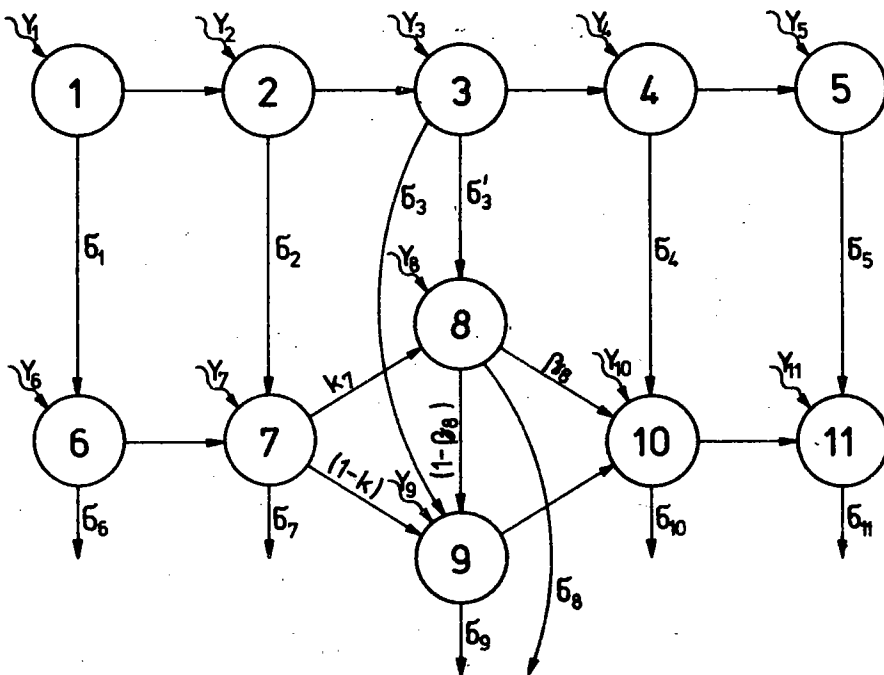


Rys. 1

się połączenia między łańcuchami, które schematycznie przedstawiono na rys.2. Jeżeli zaniedba się wszystkie produkty pierwotne, które powstają z bardzo małą wydajnością (poniżej $10^{-4}\%$), to pozostała ilość produktów wynosi około 100 a ich liczby masowe zawarte są w przedziale $70 \leq A \leq 170$. Przyjmując, że w wyniku rozpadu promieniotwórczego każdego produktu pierwotnego powstaje średnio około 4 izobarów promieniotwórczych, liczbę wszystkich produktów rozszczepienia powstających w paliwie reaktora można ocenić na około 400.

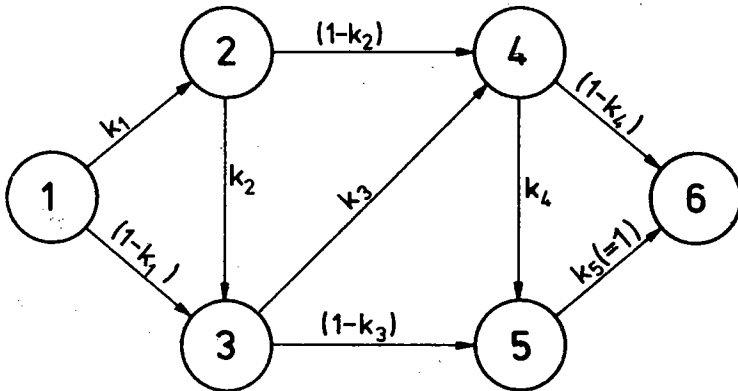
Dla większości tych produktów wydajność powstawania w wyniku rozpadu promieniotwórczego poprzedników jest znacznie większa niż wydajność w wyniku absorpcji neutronów przez izotopy w sąsiednim łańcuchu. Dlatego też można zaniedbać połączenia między łańcuchami a obliczenia zmian koncentracji, produk-

tów rozszczepienia przeprowadzić dla oddzielnych łańcuchów, które z kolei można zastąpić jednym wspólnym schematem. Takie uproszczenia pozwalają na opracowanie programu obliczeniowego opartego na jednym układzie równań. Przykładowo, schemat przedstawiony na rys.2, opisany układem 11 równań różniczkowych, obejmuje dużą ilość różnych łańcuchów rozpadów promieniotwórczych i pozwala na obliczenie zmian koncentracji około 300 różnych izotopów promieniotwórczych.



Rys.2

Dla oceny narażenia radiologicznego, obliczanie zasobów tak dużej ilości produktów rozszczepienia nie jest konieczne. Wystarczy ograniczyć się do grupy około 50 różnych izotopów promieniotwórczych, szczególnie groźnych w przypadku awarii reaktora. Izotopy te występują w takich łańcuchach, które można zastąpić schematem przedstawionym na rys.3, opisanym układem 6 równań różniczkowych, zwyczajnych.



Rys.3

3. OBLICZENIE ZMIAN KONCENTRACJI PRODUKTÓW ROZSZCZEPIENIA W CZASIE EKSPLOATACJI REAKTORA

Zmiana ilości produktów rozszczepienia objętych łańcuchem przedstawionym na rys.3 w jednostce objętości paliwa na jednostkę czasu zależy od następujących procesów:

- produkcji $-\sum_f \phi Y_i$,
- rozpadu promieniotwórczego $-\lambda_i N_i$,
- zaniku przez absorpcję neutronów termicznych $-\delta_i \phi N_i$,
- wydajności rozpadu promieniotwórczego $-k_i \lambda_i N_i$ lub $(1-k_i) \lambda_i N_i$,

gdzie:

- \sum_f - makroskopowy przekrój czynny na rozszczepienie jądra izotopu rozszczepialnego $[m^{-1}]$,
- Y_i - wydajność powstawania izotopu "i" w wyniku rozszczepienia,
- ϕ - strumień neutronów termicznych $[m^{-2}s^{-1}]$,
- λ_i - stała rozpadu promieniotwórczego izotopu "i" $[s^{-1}]$,
- δ_i - mikroskopowy przekrój czynny na absorpcję neutronów termicznych dla jądra izotopu "i" $[m^2]$,

N_i - koncentracja atomów izotopu "i" w paliwie reaktora
 $[m^{-3}]$,

k_i - wydajność rozpadu promieniotwórczego prekursora.

Wobec tego zmianę koncentracji produktów rozszczepienia można w tym przypadku opisać następującym układem równań różniczkowych zwyczajnych:

$$\frac{dN_1}{dt} = \sum_f \phi Y_1 - \lambda_1 N_1 - \delta_1 N_1 \phi,$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \sum_f \phi Y_2 - \lambda_2 N_2 - \delta_2 N_2 \phi + k_1 \lambda_1 N_1,$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \sum_f \phi Y_3 - \lambda_3 N_3 - \delta_3 N_3 \phi + (1-k_1) \lambda_1 N_1 + k_2 \lambda_2 N_2,$$

$$\frac{dN_4}{dt} = \sum_f \phi Y_4 - \lambda_4 N_4 - \delta_4 N_4 \phi + (1-k_2) \lambda_2 N_2 + (1-k_3) \lambda_3 N_3,$$

$$\frac{dN_5}{dt} = \sum_f \phi Y_5 - \lambda_5 N_5 - \delta_5 N_5 \phi + (1-k_3) \lambda_3 N_3 + k_4 \lambda_4 N_4,$$

$$\frac{dN_6}{dt} = \sum_f \phi Y_6 - \lambda_6 N_6 - \delta_6 N_6 \phi + (1-k_4) \lambda_4 N_4 + k_5 \lambda_5 N_5,$$

(1)

z warunkami początkowymi:

$$N_i(0) = 0, \quad i = 1, \dots, 6.$$

4. OCENA ZASOBÓW PRODUKTÓW ROZSZCZEPIENIA W STANIE USTALONYM

Większość produktów rozszczepienia osiąga w paliwie stan równowagi po upływie około 60 dni pracy reaktora. Wobec tego dla oceny narażenia radiologicznego można przyjąć (zgodnie z zasadą pesymizacji), że w momencie awarii reaktora, koncentracja produktów rozszczepienia osiągnęła wartość nasycenia. W tym przypadku układ równań (1) przyjmie następującą postać:

gdzie:

$$K_i = f(Y_j, \sigma_f, \lambda_j, k_j), \quad (7)$$

$$j = 1, 2, \dots, i.$$

Z zależności (6), (7) wynika, że dla dwóch różnych reaktorów koncentracje nasycenia izotopu "i" można uzależnić od siebie w następujący sposób

$$N'_{si} = N'_o \frac{N_{si}}{N_o} \frac{\phi'}{\phi}. \quad (8)$$

Taka zależność pozwala na wykorzystanie wyników obliczeń koncentracji nasycenia izotopu "i", otrzymanych dla jednego reaktora, do określenia koncentracji nasycenia tego izotopu w innym reaktorze.

5. OCENA KONCENTRACJI IZOTOPU J-131 W STANIE USTALONYM W PALIWIE REAKTORA WWER-440

Dla zilustrowania omówionego sposobu oceny koncentracji produktów rozszczepienia, wykonano obliczenia dla izotopu J-131 w stanie ustalonym w rdzeniu reaktora WWER-440.

Przyjmując, że koncentrację atomów U-235 można obliczyć z następującego wzoru [2]

$$N'_o = \frac{A_v r \rho_p f}{M_{35}}, \quad (9)$$

gdzie:

A_v - stała Avogadro,

r - wzbogacenie paliwa,

ρ_p - gęstość materiału paliwowego [kg m^{-3}],

M_{35} - masa atomowa izotopu U-235,

f - udział masowy paliwa w materiale paliwowym, który można wyrazić wzorem [2]:

$$f = \frac{r M_{35} + (1-r)M_{38}}{r M_{35} + (1-r)M_{38} + M_{O2}}, \quad (10)$$

gdzie z kolei:

M_{38} - masa atomowa U-238,

M_{02} - masa cząsteczkowa izotopu O-16,

oraz przyjmując średnie wzbogacenie paliwa $r = 3\%$ i gęstość paliwa $\rho_p = 10,41 \cdot 10^6 \text{ [kg} \cdot \text{m}^{-3}\text{]}$, otrzymuje się następującą wartość koncentracji atomów U-235

$$N'_{035} = 7,05 \cdot 10^{26} \text{ [m}^{-3}\text{]}.$$

Koncentrację nasycenia izotopu J-131 można obliczyć ze wzoru (6), wykorzystując następujące dane, zamieszczone w pracy [1]:

$$\frac{N_{si}}{N_o} = 1,69 \cdot 10^{-5} \quad \text{i} \quad \varnothing = 10^{16} \text{ [m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}\text{]},$$

oraz $\varnothing' = 3,1 \cdot 10^{17} \text{ [m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}\text{]}$ z danych ofertowych reaktora WWER-440.

Dla tych wartości otrzymano następującą koncentrację J-131

$$N'_{si} = 7,05 \cdot 10^{26} \cdot 1,69 \cdot 10^{-5} \cdot 31 = 3,7 \cdot 10^{23} \text{ [m}^{-3}\text{]}.$$

Liczbę atomów izotopu J-131 w całym rdzeniu reaktora obliczono mnożąc otrzymaną wartość N'_{si} przez objętość wszystkich elementów paliwowych. Dla przyjętej liczby elementów paliwowych $n = 34776$ oraz wysokości elementu $H = 2,5 \text{ m}$ i promienia $R = 3,8 \cdot 10^{-3} \text{ m}$, liczbę atomów J-131 zawartych w rdzeniu reaktora WWER-440 wynosi

$$N_{131} = 34776 \cdot \pi \cdot (3,8 \cdot 10^{-3})^2 \cdot 2,5 \cdot 3,7 \cdot 10^{23} = 1,46 \cdot 10^{24}.$$

Otrzymana na podstawie tych obliczeń aktywność J-131 w rdzeniu reaktora jest następująca

$$A_{31} = \frac{\lambda_{131} \cdot N_{131}}{3,7 \cdot 10^{10}} \text{ [Ci]} = \frac{9,96 \cdot 10^{-7} \cdot 1,46 \cdot 10^{24}}{3,7 \cdot 10^{10}} = 4 \cdot 10^7 \text{ [Ci]}.$$

Wykonując analogiczne obliczenia dla innych izotopów promieniotwórczych szczególnie groźnych dla otoczenia (Xe, Kr, J, Br, Cs, Sr, Y, Ba, Te, Rb), można całkowitą ich aktywność w rdzeniu

reaktora WWER-440 ocenić następująco

$$A \approx 5 \cdot 10^9 \text{ [Ci]}.$$

BIBLIOGRAFIA

- [1] Blomcke J.O. and Todd M.F.: U-235 fission product production as a function of thermal neutron flux, irradiation time and decay time. ORNL-2127-1958.
- [2] Glasstone S., Sesonske A.: Nuclear reactor engineering. A. Van Nostrand Comp. Inc. Princeton. N.Jrs. 1963.

ОЦЕНКА СОДЕРЖАНИЯ ПРОДУКТОВ РАСЩЕПЛЕНИЯ В ТОПЛИВЕ ЯДЕРНЫХ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ РЕАКТОРОВ

К р а т к о е с о д е р ж а н и е

В работе описывается процесс образования радиоактивных продуктов расщепления в активной зоне ядерного энергетического реактора.

Приводятся метод вычисления изменения концентрации атомов этих продуктов в топливе во время работы реактора.

Показывается, что для большинства продуктов расщепления в установившемся режиме отношение концентрации атомов данного изотопа к начальной концентрации атомов урана 235 зависит прямо пропорционально от потока тепловых нейтронов.

Приводится упрощенный метод оценки концентрации насыщения некоторых выбранных продуктов расщепления в топливе реактора ВВЭР-440, основанный на данных, приведенных в работе [1].

Приводятся примеры вычислений активности иода 131 в активной зоне реактора ВВЭР-440 в установившемся режиме.

THE EVALUATION OF FISSION PRODUCTS INVENTORY IN THE FUEL OF NUCLEAR POWER REACTORS

S u m m a r y

The production of fission products in a nuclear power reactor core has been discussed in the present paper. The methods of calculating the changes in the concentration rate of the fission products nuclei in the fuel during the nuclear reactor operation has been presented.

It has been shown that in the steady state the concentration ratio of the given isotope to the initial concentration of U-235 nuclei is directly proportional to the thermal neutron flux for the most nuclei in the fission products. The simple method of calculating the saturation concentration of the fission products in the fuel of the WWER-440 nuclear reactor has been presented. The activity of I-131 in the nuclear reactor core of WWER-440 type in the steady state has been given.

Rękopis dostarczono w lipcu 1977 r.