

Н. И. Власенко¹, М. Н. Коротенко¹,
С. Л. Литвиненко¹, В. В. Стывбун¹,
И. А. Морозов², Р. А. Морозова²,
В. В. Скороход², В. И. Медведев³

¹ГП НАЭК «Энергоатом»

²Институт проблем материаловедения
им. И. М. Францевича НАН Украины

³Государственный научно-технический центр по ядерной
и радиационной безопасности

Нейтронно-защитные свойства гидридов титана и циркония с повышенным содержанием водорода

С помощью программы MCNP-4B проведено аналитическое сравнение нейтронно-защитных свойств гидридов титана и циркония, имеющих повышенное содержание водорода, с аналогичными свойствами некоторых традиционно применяемых в атомной энергетике поглощающих материалов, в частности с эксклюзивным материалом RX-277 (производства США), который используется в контейнерах сухого хранения отработавшего ядерного топлива Запорожской АЭС. Подтверждены более высокие нейтронно-защитные свойства гидридов титана и циркония.

М. І. Власенко, М. М. Коротенко, С. Л. Литвиненко,
В. В. Стывбун, І. А. Морозов, Р. О. Морозова,
В. В. Скороход, В. І. Медведев

Нейтронно-захисні властивості гідридів титану та цирконію з підвищеним вмістом водню

За допомогою програми MCNP-4B проведено аналітичне порівняння нейтронно-захисних властивостей гідридів титану та цирконію, які мають підвищений вміст водню, з аналогічними властивостями традиційно використовуваних в атомній енергетиці поглинаючих матеріалів, зокрема з ексклюзивним матеріалом RX-277 (виробництва США), що застосовується в контейнерах сухого зберігання відпрацьованого ядерного палива Запорізької АЕС. Підтверджено більш високі нейтронно-захисні властивості гідридів титану та цирконію.

Использование гидридов металлов в атомной энергетике обусловлено характерным для них высоким сечением рассеяния нейтронов. Интерес к этим материалам возрос после создания в ИПМ им. И. М. Францевича НАН Украины новой технологии, позволяющей получить гидриды металлов с повышенным, по сравнению с традиционной технологией, содержанием водорода [1].

В данной работе проведено сравнение нейтронно-защитных свойств гидридов титана и циркония, разработанных в ИПМ им. И. М. Францевича НАН Украины, с аналогичными свойствами некоторых традиционно применяемых в атомной энергетике материалов, в частности с эксклюзивным материалом RX-277 (производства США), используемым в контейнерах сухого хранения ОЯТ Запорожской АЭС. В качестве параметра сравнения выбрана мощность дозы излучения на крышке контейнера. Это позволило сравнить расчетные результаты с результатами непосредственного инструментального измерения мощности дозы излучения, что повысило обоснованность проведенной оценки.

Выбор нейтронно-защитных материалов. При выборе материалов для сравнения учитывался ряд свойств материалов, прежде всего:

ядерно-физические (сечения поглощения и рассеяния, активация, плотность);

тепловые (теплоемкость, теплопроводность);

механические и структурные (прочность, стабильность, усадка, усталостное растрескивание);

химические (взаимодействие с другими материалами, газовыделение);

радиационная стойкость, технологичность и др.

Рассматриваемые материалы были разделены на 4 группы (табл. 1).

Согласно результатам предварительного сравнительного анализа были отобраны материалы, химические, нейтронно-физические и технологические свойства которых не уступают аналогичным свойствам материала RX-277 (табл. 2).

Мощность дозы, создаваемой нейтронами, рассчитывалась с помощью программы MCNP-4B как для случая применения в составе защитной крышки контейнера штатного материала RX-277, так и для случая применения альтернативных материалов, представленных в табл. 2.

Для оценки соответствия используемой модели расчета полученные результаты сопоставлялись с ранее полученными на СХОЯТ ЗАЭС результатами инструментальных измерений мощности доз в центре крышки контейнера с отработавшим ядерным топливом.

Расчетный код. Используемый в работе метод Монте-Карло — это численный метод решения математических задач при помощи моделирования случайных величин [2]. В применении к решению задач теории переноса нейтронов или фотонов сущность метода состоит в том, что сложный стохастический процесс прохождения частиц в веществе рассматривается как последовательность конечного числа элементарных случайных событий. К таким событиям относятся рождение частиц в источнике, движение без взаимодействия на некотором пути, взаимодействие какого-либо типа и, если частица при этом не поглощается, снова движение до следующего взаимодействия. Зная вероятность каждого из этих событий, можно воспроизвести движение (траекторию) определенной частицы в веществе. Таким образом, генерируется история одной частицы. Проанализировав достаточно большое количество траекторий, можно определить различные характеристики поля излучения.

Таблица 1. Рассматриваемые защитные материалы

Группа материалов	Состав группы	Назначение
1 — легкие материалы	Вода, полиэтилен, бор, карбид бора, графит	Ослабление потоков быстрых нейтронов за счет упругих рассеяний на ядрах водорода и других легких элементов
2 — материалы, состоящие из элементов со средним атомным весом	Обычный строительный бетон, тяжелые бетоны, серпентинитовый бетон	Ослабление потоков нейтронов и гамма-излучения
3 — тяжелые материалы	Металлы железа, свинец	Для защиты от гамма-излучения
4 — смесь разных материалов	Металло-водная защита, железо-графитовая защита, защита из карбида бора и железа, оксид железа, натрия, алюминий, бораль, кадмий, гидриды циркония и титана	Для защиты от всех энергетических групп нейтронов и гамма-излучения

Таблица 2. Физико-химические характеристики рассматриваемых материалов

Наименование материала	Химическая формула	Плотность, г/см ³	Состав, %
Карбид бора	B ₄ C	2,52	B — 80, C — 20
Графит	C	1,67	100
Железо-свинцово-бариевый цементный камень (ЖСЦБК)	—	5,9	Si — 0,69; Mg — 0,09; O — 10,5; H — 0,66; Fe — 37,5; Ba — 10,4; Pb — 40,16
Лимонит	2Fe ₂ O ₃ ·H ₂ O	3,12	O — 37,69; H — 1,13; Si — 8,18; Mg — 0,19; Al — 2,41; Ca — 0,52; Fe — 49,88
Серпентинит	3MgO·2SiO ₂ ·2H ₂ O	2,62	O — 51,19; H — 1,23; Si — 21,19; Mg — 24,07; S — 0,15; Ca — 2,17
Гидрид титана	TiH _{3,7}	3,76	Ti — 92,65; H — 7,35
Гидрид циркония	ZrH ₂	5,61	Zr — 97,33; H — 2,67
RX-277	—	1,67	H — 3,37; B — 1,56; O — 58,85; Na — 0,59; Mg — 0,30; Al — 23,91; Si — 2,13; S — 0,19; Ca — 0,19; Fe — 0,19

Код позволяет выполнять расчеты с произвольной трехмерной конфигурацией материалов в геометрических ячейках, ограниченных поверхностями первого, второго и четвертого порядков. В расчетах использовались данные сечения взаимодействия нейтронов с веществом, которые содержатся в библиотеке ENDF/B-VI [2].

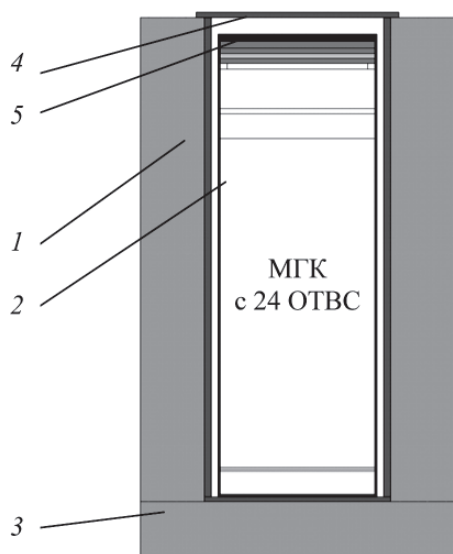


Рис. 1. Модель системы хранения ОЯТ:

1 — стенка ВБК; 2 — металлическая герметичная корзина с 24 ОТВС; 3 — основание ВБК; 4 — погодная крышка ВБК; 5 — силовая крышка

Перед началом подготовки файла входных данных была разработана модель расчета, содержащая следующие упрощения реальной системы:

1. Совокупность 24 ОТВС, которые находятся в контейнере, разбивалась на несколько областей: область головки, промежутков, первая область без топлива, топливо, вторая область без топлива, нижняя решетка и область хвостовика. Предполагалось, что материал в каждой области распределен равномерно по всему объему. Такой подход приводит к уменьшению плотности материала в данной области и увеличению значения мощности дозы.

2. В модели расчета внутренняя структура контейнера воспроизводилась неполно. В данном случае конструкция блока шестигранных труб не представлена. Такой подход приводит к уменьшению радиационного ослабления и завышению результатов расчета мощности дозы.

3. Было принято, что область топлива содержит не все элементы, присущие ОТВС (дистанционирующие решетки, центральные трубы и т. д.). Это упрощение является консервативным и приводит к слегка завышенным значениям мощностей доз.

4. Было принято, что каждая ОТВС обладает одинаковыми усредненными характеристиками по обогащению, выгоранию топлива, времени нахождения в бассейне выдержки и др.

5. Спектр нейтронов ограничивался семью группами нейтронов.

6. При моделировании конструкции контейнера не учитывалось наличие металлической арматуры и воздухопроводов.

Модель системы хранения (рис. 1). Система хранения ОЯТ была представлена в виде вентилируемого бетонного

контейнера (ВБК) и металлической герметичной корзины (МГК) с ОЯТ. В свою очередь, ВБК был представлен в виде цилиндра с бетонными стенками (1) и основанием (3), облицовкой и погодной крышкой (4); МГК (2) — в виде цилиндра из стали 10ХСНД с основанием, защитной и силовой крышками (5) и области, содержащей 24 ОТВС ВВЭР-1000. Размеры, материал ВБК, МГК и крышек, принятые в модели, соответствовали истинным размерам и материалам системы хранения ОЯТ на ЗАЭС.

Источник нейтронов. Источником нейтронов служили 24 ОТВС реактора ВВЭР-1000, находящиеся внутри МГК. При реальной загрузке контейнера ОТВС имеют разное обогащение, выгорание и время нахождения в бассейне выдержки (БВ). Для расчетов были выбраны усредненные характеристики ОТВС: начальное обогащение — 4,4%; выгорание — 35 МВт · сут/кг U; время нахождения в БВ — 7 лет.

При расчетах использовались данные сечений взаимодействия нейтронов с различными материалами системы ВКХ-ВВЭР, которые содержатся в библиотеке Evaluated Nuclear Data File (ENDF/B-VI) [2].

В конечном результате плотность потока нейтронов с наружной стороны погодной крышки пересчитывалась в мощность дозы. Коэффициенты пересчета потока нейтронов в дозу K приведены ниже [2]:

Энергия нейтронов, МэВ	K , (Зв/ч)/[н/(см ² · с)]
$2,5 \cdot 10^{-8}$	$3,67 \cdot 10^{-8}$
$1,0 \cdot 10^{-7}$	$3,67 \cdot 10^{-8}$
$1,0 \cdot 10^{-6}$	$4,46 \cdot 10^{-8}$
$1,0 \cdot 10^{-5}$	$4,45 \cdot 10^{-8}$
$1,0 \cdot 10^{-4}$	$4,18 \cdot 10^{-8}$
$1,0 \cdot 10^{-3}$	$3,76 \cdot 10^{-8}$
$1,0 \cdot 10^{-2}$	$3,56 \cdot 10^{-8}$
$1,0 \cdot 10^{-1}$	$2,17 \cdot 10^{-7}$
0,5	$9,26 \cdot 10^{-7}$
1,0	$1,32 \cdot 10^{-6}$
2,5	$1,25 \cdot 10^{-6}$
5,0	$1,56 \cdot 10^{-6}$
7,0	$1,47 \cdot 10^{-6}$
10,0	$1,47 \cdot 10^{-6}$
14,0	$2,08 \cdot 10^{-6}$
20,0	$2,27 \cdot 10^{-6}$

Спектр нейтронного излучения от ОТВС взят из работы [3]:

Диапазон энергий, МэВ	Число нейтронов в секунду
$6,43 \div 20,0$	$1,03 \cdot 10^6$
$3,00 \div 6,43$	$1,12 \cdot 10^7$
$1,85 \div 3,00$	$1,26 \cdot 10^7$
$1,40 \div 1,85$	$6,58 \cdot 10^6$
$0,90 \div 1,40$	$8,16 \cdot 10^6$
$0,40 \div 0,90$	$8,15 \cdot 10^6$
$0,10 \div 0,40$	$3,74 \cdot 10^6$
Всего	$5,33 \cdot 10^7$

Расчет мощности дозы, создаваемой нейтронами от 24 ОТВС, выполнялся для центральной области погодной крышки, ограниченной радиусом 5 см. В расчетах учитывался суммарный поток нейтронов, создаваемый 24 ОТВС — $1,278 \cdot 10^9$ н/с [3].

Оценка защитных свойств материалов RX-277. Мощность дозы излучения, создаваемая нейтронами в центре погодной крышки, рассчитывалась для материалов, которые приведены в табл. 2. Результаты расчета мощностей доз излучения для рассматриваемых материалов таковы:

Материал	Мощность дозы, мкЗв/ч
Карбид бора	56
Графит	216
Лимонит	128
Серпентинит	127
ЖСЦБК	143
Гидрид циркония	50
Гидрид титана	38
RX-277	102

Расчетное значение мощности дозы в центре погодной крышки в случае использования штатного материала RX-277 (**102 мкЗв/ч**) сравнилось с усредненным значением мощности дозы, полученным в результате инструментального радиационного контроля контейнеров (**40 ± 20 мкЗв/ч**), находящихся на площадке СХОЯТ ЗАЭС. Расчетное значение мощности дозы оказалось в 2,5 раза больше среднего измеренного. Если бы расчет производился для конкретного контейнера, то на следующем этапе работы следовало бы внести корректировки в модель расчета с целью уточнения сделанных приближений. В данном случае в таких действиях нет необходимости, так как использование усредненных характеристик ОЯТ и сделанные приближения при моделировании обуславливают повышенное расчетное значение мощности дозы. Это свидетельствует о том, выбранная модель адекватно описывает реальную систему хранения.

Выводы

Сравнительный анализ результатов расчета мощностей доз в центре погодной крышки контейнера хранения ОЯТ показал, что мощность дозы при использовании таких материалов, как графит, ЖСЦБК, лимонит и серпентинит, превышает мощность дозы, получаемой при использовании материала RX-277.

Одновременно выявлено три альтернативных материала (карбид бора, гидрид циркония и гидрид титана), применение которых в качестве защиты от нейтронов обуславливает меньшую, чем для RX-277, мощность дозы излучения. Это свидетельствует о том, что они обладают лучшими нейтронно-защитными свойствами, чем эксклюзивный материал RX-277. Результаты относительной оценки показали, что разработанные ИПМ им. И. М. Францевича НАН Украины гидриды титана и циркония могут быть рекомендованы в качестве альтернативы эксклюзивному материалу RX-277 при использовании их в качестве защиты от нейтронов в контейнерах ОЯТ или в других устройствах атомной энергетики. Как продолжение работы запланирована экспериментальная оценка нейтронно-защитных свойств гидридов титана и циркония с использованием нейтронного облучения от источников ионизирующего излучения и исследовательского реактора.

Список литературы

1. Способ насыщения материалов газами: Патент Украины на полезную модель № 25785 от 27.08.2007 г.
2. MCNP — a general Monte Carlo N-particle transport code LA-12625-M, Version 4B Manual Judith F. Briesmeister.
3. Разработка методики определения изотопного состава и остаточного энерговыделения отработавших тепловыделяющих сборок реактора ВВЭР-1000 перед их отправкой на хранение: Научно-технический отчет НАЭК «Энергоатом». — К., 2005.
4. Каталог реакторных экспериментов № 277. Радиационная защита. Бюллетень S-73N, март 1988 г., США.

Надійшла до редакції 23.07.2009.