

УДК 621.039.4

Г. З. СЕРЕБРЯНЫЙ, Д. О. РУДОВИЧ, М. Л. ЖЕМЖУРОВ

**КОРРЕЛЯЦИОННЫЕ ЗАВИСИМОСТИ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ВЫГОРАНИЯ
И СОДЕРЖАНИЯ АКТИНИДОВ В ОБЛУЧЕННОМ ЯДЕРНОМ ТОПЛИВЕ***Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны НАН Беларуси**(Поступила в редакцию 24.10.2013)*

В настоящее время при анализе ядерной безопасности систем обращения с отработавшим ядерным топливом (ОЯТ) используется консервативный подход, который не учитывает выгорание топлива, т. е. оно рассматривается как свежее топливо, имеющее максимальное начальное обогащение. В результате расчетное значение реактивности системы без учета выгорания топлива получается значительно завышенным. Такой подход, с одной стороны, обеспечивает условия ядерной безопасности для всех рассматриваемых систем независимо от глубины выгорания, а с другой, накладывает ограничения на системы, подкритичность которых из-за выгорания значительно больше, чем для свежего топлива. Развитие и совершенствование расчетных и экспериментальных методов за последние годы позволяют определять подкритичность реальных систем с учетом выгорания топлива и тем самым снять некоторые ограничения по безопасности при его хранении и транспортировании. Выгорание топлива используется для обоснования ядерной безопасности для всех элементов, обеспечивающих жизненный цикл ОЯТ – стеллажи бассейна выдержки АЭС и централизованных хранилищ, транспортные контейнеры, оборудование для переработки, а также как исходные данные для системы учета и контроля ядерных материалов.

Однако в настоящее время не существует способов точного определения изотопного состава ОЯТ. Как правило, изотопный состав определяется методами аппроксимации табличных значений, полученных с помощью прецизионных программ. В настоящее время имеется большое количество программ нейтронно-физического расчета, которые могут быть использованы для моделирования изотопного состава ОЯТ в реакторах различного типа. Расчет нуклидного состава ОЯТ является довольно сложной задачей, при решении которой необходимо для каждой тепловыделяющей сборки (ТВС) корректно учесть влияние множества параметров. Для подтверждения применения используемых методик расчета и определения систематических и статистических погрешностей необходимо провести валидацию расчетных методик и программных средств путем сравнения результатов расчетов с экспериментальными данными. Однако такой подход требует существенных первоначальных капиталовложений для разработки методов и программных средств расчета, равно как и проведения достаточного количества экспериментов. Лишь немногие страны с наиболее развитым ядерным научно-промышленным комплексом способны самостоятельно развивать и применять на практике данный подход. Следует отметить, что одной из причин неточности при расчете концентраций многих важных с точки зрения радиационной безопасности нуклидов являются существующие неопределенности в сечениях реакций для этих нуклидов.

Существует и другой подход моделирования изотопного состава ОЯТ в реакторах различного типа, который использует для своего решения только экспериментальные данные по выгоранию и изотопному составу ОЯТ. В настоящее время процедура обработки экспериментальных данных достаточно хорошо формализована. С ее помощью можно подобрать эмпирические формулы и оценить их параметры. В то же время при неверном использовании данной процедуры нередки случаи, когда результаты дорогостоящих экспериментов не подвергаются даже простейшей обработке, при этом теряется огромное количество полезной информации.

Используемые экспериментальные данные. Экспериментальное исследование образцов ОЯТ, относящихся к конкретным атомным реакторам, известным условиям облучения и фиксированным позициям в ТВС и твэлах, дает возможность получения наиболее достоверной информации о нуклидном составе ОЯТ, характерном для тех или иных параметров облучения. Значительный массив экспериментальных данных для ОЯТ реакторов PWR представлен в отчетах Ок-Риджской Национальной лаборатории (ORNL) [1–3]. В ORNL тщательно проверены и проанализированы все имеющиеся к настоящему времени экспериментальные данные по изотопному составу образцов ОЯТ для десяти реакторов PWR, работающих в США, Германии, Швейцарии, Испании и Японии, с целью их использования для валидации программы SCALE. Представленные ORNL данные охватывают диапазон начального обогащения ^{238}U от 2,433 до 4,657 мас.% ^{235}U и по глубине выгорания – диапазон от 7,2 до 70,4 ГВт·сут/т $U_{\text{нач}}$.

Для реакторов ВВЭР-440 и ВВЭР-1000 массив экспериментальных данных для ОЯТ представлен в [4–9] и в обобщенном виде – в [10]. Результаты этих работ охватывают диапазон начального обогащения ^{238}U от 3,3 до 4,4 мас.% ^{235}U и по глубине выгорания – диапазон от 8,7 до 51,7 ГВт·сут/т $U_{\text{нач}}$.

Необходимость в получении экспериментальных данных обусловлена их практической ценностью при разработке инструментальных и расчетных методов оценки нуклидного состава ОЯТ в соответствии с требованиями по учету и контролю ядерных материалов.

Статистические методы обработки экспериментальных данных. Как правило, результаты экспериментальных исследований требуют определенной математической обработки. В настоящее время процедура обработки экспериментальных данных достаточно хорошо формализована. В круг вопросов по процедуре обработки данных входят подбор эмпирических формул и оценка их параметров, оценка истинных значений измеряемых величин и точности измерений, исследование корреляционных зависимостей и др. Выбор эмпирических зависимостей проводился с применением методов линейного и множественного корреляционного анализа. Окончательный выбор эмпирической зависимости определялся максимальными значениями коэффициента детерминации R^2 и скорректированного коэффициента R^2_{adj} . Проверка значимости (качества предсказания) уравнения регрессии проводилась с применением критерия Фишера F. С использованием дисперсионного анализа вычислены средние значения абсолютных отклонений Δ в % экспериментальных и предсказанных величин для каждой из полученных зависимостей и их средние квадратичные отклонения S .

Полученные зависимости проверены на нормальность, что позволяет валидировать соответствие применяемой модели регрессии исходным экспериментальным данным.

Определение глубины выгорания топлива. Глубину выгорания, рассчитываемую как отношение количества разделившихся за время облучения тяжелых ядер к их полному начальному содержанию в топливе, определяют двумя способами: по измеренному изотопному составу топлива до и после облучения с использованием расчетных выражений (метод тяжелых атомов – МТА); по измеренному отношению числа атомов продукта деления – монитора выгорания к числу тяжелых атомов в растворенном образце топлива (метод накопления продуктов деления – ПД).

При определении выгорания по ПД в качестве мониторов используют продукты деления тяжелых ядер ^{137}Cs и ^{148}Nd [11]. При расчете глубины выгорания топлива принимают расчетные значения эффективных выходов $Y_{\text{эф}}$ мониторов выгорания.

Проведенный статистический анализ всего экспериментального материала по массовым концентрациям $C_{\text{мон}}$ (кг/т $U_{\text{нач}}$) мониторов выгорания ^{137}Cs и ^{148}Nd показал, что существует линейная связь между $C_{\text{мон}}$ (кг/т $U_{\text{нач}}$) и глубиной выгорания B (ГВт·сут/т $U_{\text{нач}}$) на время окончания облучения.

Для монитора выгорания ^{148}Nd получена зависимость

$$B_{^{148}\text{Nd}} = -0,3725 + 91,0456 C_{^{148}\text{Nd}} \quad (1)$$

с использованием 120 экспериментальных данных со следующими статистическими результатами: $R^2 = 0,9987$, $R^2_{adj} = 9987$, $F = 93241$, $\Delta = 0,075$ и $S = 1,4$. По критерию F зависимость (1) значима.

Для монитора выгорания ^{137}Cs получена зависимость

$$B_{137\text{Cs}} = -0,16563 + 27,50351 C_{137\text{Cs}} \quad (2)$$

с использованием 80 экспериментальных данных со следующими статистическими значениями: $R^2 = 0,9957$, $R^2_{adj} = 9956$, $F = 18062$, $\Delta = 0,044$ и $S = 2,82$. По критерию F зависимость (2) значима.

Для определения выгорания часто используются зависимости выгорания от отношения активности изотопов $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$. По экспериментальным данным получена следующая зависимость:

$$B_{134\text{Cs}/137\text{Cs}} = a + bx + cx^2 + dx^3 + ex^4 + fx^5 + gy + hy^2 + iy^3 + jy^4 + ky^5, \quad (3)$$

где x – отношение активности $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ по окончании облучения, y – начальное обогащение по ^{235}U в %.

Зависимость (3) получена с использованием 42 экспериментальных данных. Коэффициенты полинома и статистические данные представлены в табл. 1. Значения $\Delta = -0,142$ и $S = 3,67$. По критерию F зависимость (3) значима.

Т а б л и ц а 1. Коэффициенты изотопных корреляций, коэффициенты детерминации R^2 и критерий Фишера на значимость регрессии

Коэффициент	^{236}U	^{235}U	^{238}U	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu
<i>a</i>	-8,99906	13,65785	-508,501	31,4299	-5,71988	102,1624
<i>b</i>	0,131695	-0,4541	0,49882	-0,0052286	0,247192	0,04327
<i>c</i>	7,309845	-3,36653	0,033487	0,0006098	5,303143	0,002607
<i>d</i>	-0,00323	0,01522	-0,00152	-1,5796e-05	-0,01157	-7,5E-05
<i>e</i>	-1,89991	4,126143	2,68E-05	2,34147e-07	-1,46065	6,85E-07
<i>f</i>	0,02244	-0,28537	-1,6E-07	-1,2558e-09	0,091805	-1,8E-09
<i>g</i>	9,97E-06	-5,3E-05	832,6534	-45,2115	6,10652e-05	-144,855
<i>h</i>	0,159223	-0,40685	-530,295	25,6572	0,123292	81,09011
<i>i</i>	0,000709	0,025902	165,5105	-7,18122	-0,011351	-22,3501
<i>j</i>	6,54E-05	-0,00055	-25,4313	0,99176	0,0005312	3,028041
<i>k</i>			1,542152	-0,05410		-0,16132
R^2	0,990	0,988	0,989	0,995	0,829	0,983
R^2_{adj}	0,990	0,998	0,998	0,994	0,816	0,982
<i>F</i>	2331	9942	1135	1588	76	1001
<i>N</i>	188	188	126	96	149	149
Коэффициент	^{241}Pu	^{242}Pu	Pu (общий)	^{244}Cm	$A(^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs})$	$B_{134\text{Cs}/137\text{Cs}}$
<i>a</i>	475,6004	0,335545	-23,9213	19,25048	-5039,97419	31234,12116
<i>b</i>	-0,13587	-0,04056	-0,01443	-1236,92	-498,793056	1957,354536
<i>c</i>	0,010871	0,230533	23,64434	79236,85	24961,84501	-2736,19545
<i>d</i>	-0,00026	0,001998	-0,00073	-2536400	-6,78682E+05	1864,947448
<i>e</i>	2,57E-06	-0,14015	-6,69108	40333800	9,12962E+06	-614,737356
<i>f</i>	-8,5E-09	0,003702	0,125481	-2,5E+08	-46130000	79,01631718
<i>g</i>	-642,669	-7E-06	9,02E-05	-17,4086	7250,87896	-46751,1065
<i>h</i>	383,0449	0,015606	0,51796	10,62191	-4133,69192	27227,15717
<i>i</i>	-112,255	0,000736	0,017045	-3,23615	1168,601124	-7842,57656
<i>j</i>	16,19908	-0,00025	-0,00328	0,491223	-163,820934	1117,292339
<i>k</i>	-0,92199			-0,02969	9,110843278	-62,9845585
R^2	0,962	0,981	0,935	0,987	0,994	0,993
R^2_{adj}	0,958	0,979	0,932	0,984	0,991	0,990
<i>F</i>	240	520	310	315	413	433
<i>N</i>	106	99	201	52	35	42

Содержание актинидов в топливе в зависимости от исходного обогащения по ^{235}U и глубины выгорания. По экспериментальным данным установлены следующие корреляционные

соотношения для определения массовых концентраций актиноидов в ОЯТ на время окончания облучения для реакторов PWR и ВВЭР:

$$C_{236\text{U}} = a + bx + cy + dx^2 + ey^2 + fxy + gx^3 + hy^3 + ix^2y + jx^2y; \quad (4)$$

$$C_{235\text{U}} = a + bx + cy + dx^2 + ey^2 + fxy + gx^3 + hy^3 + ix^2y + jx^2y; \quad (5)$$

$$C_{238\text{U}} = 10(100 - y) - (a + bx + cx^2 + dx^3 + ex^4 + fx^5 + gy + hy^2 + iy^3 + jy^4 + ky^5); \quad (6)$$

$$C_{238\text{Pu}} = a + bx + cx^2 + dx^3 + ex^4 + fx^5 + gy + hy^2 + iy^3 + jy^4 + ky^5; \quad (7)$$

$$C_{239\text{Pu}} = a + bx + cy + dx^2 + ey^2 + fxy + gx^3 + hy^3 + ix^2y + jx^2y; \quad (8)$$

$$C_{240\text{Pu}} = a + bx + cx^2 + dx^3 + ex^4 + fx^5 + gy + hy^2 + iy^3 + jy^4 + ky^5; \quad (9)$$

$$C_{241\text{Pu}} = a + bx + cx^2 + dx^3 + ex^4 + fx^5 + gy + hy^2 + iy^3 + jy^4 + ky^5; \quad (10)$$

$$C_{242\text{Pu}} = a + bx + cy + dx^2 + ey^2 + fxy + gx^3 + hy^3 + ix^2y + jx^2y; \quad (11)$$

$$C_{\text{Pu}} = a + bx + c/y + dx^2 + e/y^2 + fx/y + gx^3 + h/y^3 + ix/y^2 + jx^2/y; \quad (12)$$

$$C_{244\text{Cm}} = a + b/x + c/x^2 + d/x^3 + e/x^4 + f/x^5 + gy + hy^2 + iy^3 + jy^4 + ky^5, \quad (13)$$

где x – выгорание B (ГВт·сут/т $U_{\text{нач}}$) по окончании облучения, y – начальное обогащение по ^{235}U в %.

Коэффициенты для зависимостей (4)–(13) и статистические данные представлены в табл. 1. Как следует из таблицы, по критерию Фишера зависимости (4)–(13) значимы.

Проверка полученных зависимостей на нормальность позволяет определить, соответствуют ли полученные модели регрессии исходным экспериментальным данным. Аналогичная проверка проведена по данным ORNL [1], где приведены результаты сравнения эксперимента и расчета по программе SCALE 5.1 для реакторов PWR. Сравнивались тесты на нормальность наших результатов с аналогичными данными ORNL [2]. Проверка проводилась с использованием следующих критериев: Шапиро–Уилка, Жака–Бера, Андерсона–Дарлинга, Лиллиефорса, Колмогорова–Смирнова и χ^2 с уровнем значимости 0,01. Результаты тестов на нормальность представлены в табл. 2.

Т а б л и ц а 2. Результаты тестов на нормальность для зависимостей (4)–(13) и ORNL [1, 2]

Критерии	Актинид									
	^{236}U	^{235}U	^{238}U	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	Pu	^{244}Cm
<i>Для зависимостей (4)–(13) уровень значимости 0,01</i>										
Шапиро–Уилка	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
Жака–Бера	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
Андерсона–Дарлинга	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
Лиллиефорса	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
Колмогорова–Смирнова	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
χ^2	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
<i>Для ORNL [1] уровень значимости 0,05</i>										
Шапиро–Уилка	–	–	–	–	–	–	–	–	–	+
Жака–Бера	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
Андерсона–Дарлинга	–	–	–	–	–	–	–	–	–	+
Лиллиефорса	–	–	–	–	–	–	–	–	–	+
Колмогорова–Смирнова	–	–	–	–	–	–	–	–	–	+
χ^2	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–
<i>По данным ORNL [1] уровень значимости 0,05</i>										
Шапиро–Уилка	–	–	–	–	–	–	–	–	–	–

Как следует из табл. 2, все полученные корреляционные зависимости по определению массовой концентрации актинидов по окончании облучения после проверки на нормальность соответствуют исходным экспериментальным данным как для реакторов PWR, так и для реакторов ВВЭР. Однако по данным ORNL соответствие экспериментальным результатам даже для реакторов PWR отсутствует.

Сравнение экспериментальных и расчетных данных. В табл. 3 приводится сравнение абсолютных отклонений Δ в % экспериментальных и расчетных значений для полученных зависимостей и их средние квадратичные отклонения S с данными ORNL [1,2]. Как следует из таблицы, погрешности расчетов по предложенным корреляционным зависимостям находятся в хорошем согласии с результатами, полученными в ORNL.

Т а б л и ц а 3. Сравнение абсолютных отклонений Δ в % экспериментальных и расчетных значений для полученных зависимостей, а также их средних квадратичных отклонений S с данными, полученными ORNL

Актинид	Данная работа		ORNL [1]		ORNL [2]	
	Δ	S	Δ	S	Δ	S
^{235}U	-0,24	3,67	-0,64	5,28	-1,5	6,4
^{236}U	-0,025	3,73	0,68	3,81	-0,6	3
^{238}U	-0,00017	0,13	0,14	0,36	0,2	0,4
^{238}Pu	-0,32	5,76	7,97	10,91	5,7	11,5
^{239}Pu	-0,27	5,44	-4,78	5,17	-5,8	6,1
^{240}Pu	-0,21	4,44	-3,26	4,79	-6,1	6,9
^{241}Pu	-0,33	7,08	0,56	6,24	1,1	4,7
^{242}Pu	-0,33	5,84	0,56	7,38	0,5	7,1
Pu	-0,17	5,91				
^{244}Cm	-0,65	9,36	0,52	13,89	2,4	11,1

Корреляционные соотношения, полученные в данной работе, представлены на момент времени окончания облучения. С использованием неразрушающих методов γ -спектрометрии по измеренному отношению активностей $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ на момент выдержки и известному отношению по окончании облучения можно определить время выдержки и провести корректировку изотопного состава ОЯТ. С этой целью по экспериментальным данным получена зависимость отношения активностей $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ на момент окончания облучения

$$A(^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}) = a + b/x + c/x^2 + d/x^3 + e/x^4 + f/x^5 + gy + hy^2 + iy^3 + jy^4 + ky^5. \quad (14)$$

Коэффициенты для зависимости (14) и их статистические данные представлены в табл. 1. Значения $\Delta = -0,038$ и $S = 1,75$. По критерию Фишера зависимость (14) значима.

Заключение. Все корреляционные соотношения в настоящей работе получены на основании экспериментальных данных для образцов твэлов различных реакторов. В свою очередь все образцы отличались режимом нагрузки ТВС в процессе облучения, эксплуатационными параметрами ТВС (температуры топлива и теплоносителя), расположением твэлов в ТВС (шаг решетки, твэл) и другими режимными характеристиками. Однако, несмотря на все эти отличия, полученные корреляционные соотношения достоверно и надежно описывают весь экспериментальный материал для реакторов PWR и ВВЭР. Они могут представить интерес для использования методов неразрушающего контроля с целью проведения экспрессной оценки выгорания и содержания компонентов ОЯТ на всех этапах ядерного цикла.

Литература

1. Radulescu G., Gauld I. C. and Ilas G. SCALE 5.1 Predictions of PWR Spent Nuclear Fuel Isotopic Compositions, ORNL/TM-2010/44, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tenn. March 2010.
2. Gauld I. C., Ilas G. and Radulescu G. Uncertainties in Predicted Isotopic Compositions for High Burnup PWR Spent Nuclear Fuel, NUREG/CR-7012, ORNL/TM-2010/41, prepared for the Nuclear Regulatory Commission by Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN 2011.

3. *Ilas G. and Gauld I. C.* Analysis of Experimental Data for High Burnup PWR Spent Fuel Isotopic Validation—Vandellós II Reactor, NUREG/CR-7013, ORNL/TM-2009/321, prepared for the Nuclear Regulatory Commission by Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge. TN 2010.

4. *Murphy B. D., Kravchenko J., Lazarenko A. et al.* Simulation of Low-Enriched Uranium (LEU) Burnup in Russian VVER Reactors with the HELIOS Code Package, ORNL/TM-1999/168.

5. *Kalugin M., Shkarovsky D., Gehin J. A.* VVER-1000 LEU and MOX Assembly Computational Benchmark. Specification and Results// NEA/NSC/DOC(2002)10, OECD 2002. P. 156.

6. *Jardine L. J.* ISTC report «Radiochemical Assays of Irradiated VVER-440 Fuel for Use in Spent Fuel Burnup Credit Activities», Lawrence Livermore National Laboratory, UCRL-TR-212202. April 2005.

7. *Бибичев Б. А., Ловцюс А. В., Майоров В. П. и др.* // Атомная энергия. 1980. Т. 48, вып. 5. С. 294–297.

8. *Зеленков А. Г., Пирожков С. В., Пчелин В. А. и др.* // Атомная энергия. 1981. Т. 51, вып. 1. С. 53–54.

9. *Степанов А. В., Макарова Т. П., Бибичев Б. А. и др.* // Атомная энергия. 1983. Т. 55, вып. 3, С. 141–145.

10. *Makarova T.* Investigation of Spent Nuclear Fuel from WWER-440, WWER-1000 and RBMK-1000 Khlopin Radium Institute, St. Petersburg, Russia Consultant with IAEA, SGCP PSA 03.2004.

11. Standard Test Method for Atom Percent Fission in Uranium and Plutonium Fuel (Neodymium-148 Method). American Society for Testing and Materials, ASTM E 321. 1996.

G. Z. SEREBRIANY, D. O. RUDOVICH, M. L. ZHEMZHUROV

CORRELATION DEPENDENCIES FOR BURNUP DETERMINATION AND ACTINIDES CONTENT IN SPENT NUCLEAR FUEL

Summary

Correlation dependencies have been obtained to determine the burn-out and content of actinides in spent nuclear fuel based on an analysis of published experimental data on the definition of burnout and isotopic composition of spent nuclear fuel rods for samples of PWR and VVER reactor types using statistical methods. Given dependencies of the mass concentration of actinides at the end of irradiation after checking for normality correspond to the initial experimental data. These relationships may be of interest to use for non-destructive methods for the purpose of express evaluation of spent nuclear fuel burnout at all stages of the nuclear cycle.