

УДК 621.039.75

## Изотопный состав отработавшего ядерного топлива активных зон реакторов ОК-150 ледокола "Ленин"

В.А. Наумов<sup>1</sup>, Е.В. Караваяева<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> Горный институт КНЦ РАН

<sup>2</sup> Апатитский филиал МГТУ, кафедра горного дела

<sup>3</sup> Горный факультет Кольского филиала ПетрГУ, кафедра горного дела и обогащения

**Аннотация.** Разработана математическая модель реакторов № 1, № 2 и № 3 установки ОК-150 ледокола "Ленин". На основе этой модели определены массовые изотопные составы и активность отработавшего ядерного топлива: части, хранящейся на ПТБ "Лепсе", и части, затопленной в Карском море.

**Abstract.** The mathematical model of reactors № 1, 2 and 3 of ОК-150 for the icebreaker *Lenin* has been developed. Basing on this model there have been determined the mass isotopic compositions and activity of the spent nuclear fuel: for the part stored at the service ship *Lepse* and the one flooded in the Kara Sea.

**Ключевые слова:** отработавшее ядерное топливо, математическая модель, программа 3D KRATER, обращение ОЯТ, ядерная безопасность, массовые изотопные составы, активность ОЯТ

**Key words:** spent nuclear fuel, mathematical model, 3D KRATER program, SNF management, nuclear risk, mass isotopic compositions, SNF activity

### 1. Введение

Плавучая техническая база (ПТБ) "Лепсе" с 1963 по 1981 гг. обеспечивала перезарядки реакторов атомных ледоколов "Ленин", "Арктика", "Сибирь", а в настоящее время используется для хранения радиоактивных отходов и отработавшего ядерного топлива (ОЯТ), выгруженных из реакторов этих ледоколов. Судно "Лепсе" находится у причала ФГУП "Атомфлот" – базы ледокольного атомного флота, расположенной на расстоянии 1,8 км от города Мурманска. В двух баках хранилища "Лепсе" размещены 620 отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС) (и еще 19 аварийных ОТВС – в кессонах этих баков). Большая часть сборок, находящихся в баках хранилища, является дефектной и не может быть выгружена по штатной технологии. Утилизация ПТБ "Лепсе" с выгрузкой ОЯТ, запланированная на период 2012-2015 гг., является высокосложным уникальным проектом. По оценкам экспертов, ПТБ "Лепсе" находится на втором месте по величине радиационного потенциала и на третьем месте по величине радиационного риска среди ядерно-опасных объектов Мурманской области (Григорьев, 2011). Все это вызывает большую озабоченность – в странах северной Европы, у экологических служб России, а также у гражданского населения Мурманской области.

Опасности, связанные с нахождением ПТБ "Лепсе" в акватории Кольского залива, определяются, в основном, количеством таких радиотоксичных радионуклидов как  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238,239,240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ . Информация об изотопном составе хранящегося на ПТБ "Лепсе" ОЯТ, которое претерпевает изменения при длительном хранении в процессе радиоактивного распада, в открытой научной литературе не освещена и, по нашему мнению, требуется ее обнародование и детализация. Исключением является работа П.М. Рубцова и М.А. Ружанского (1996), в которой выполнен расчет изотопного состава ОЯТ аварийного реактора № 2 установки ОК-150 ледокола "Ленин" с применением ряда упрощений методического характера. Предпринятое авторами статьи исследование посвящено изучению изотопного состава ОЯТ, наработанного в реакторных установках (РУ) ледокола "Ленин".

### 2. Методический подход к оценке изотопного состава ОЯТ

По информации специалистов предприятия ОАО "ОКБМ Африкантов", которая разрабатывает РУ для атомных ледоколов, на ПТБ "Лепсе" находится на хранении 206 ОТВС из активных зон (АЗ) реактора ОК-150 (Тимофеев, Душев, 2005). Они были перегружены на ПТБ "Лепсе" из реакторов № 1, № 2 и № 3 после завершения эксплуатации в 1964-1965 гг. Эти реакторы, работавшие с 1963 по 1964 гг., имеют некоторые различия в конструкции АЗ. Реактор № 1 имел тепловыделяющие элементы (ТВЭЛы) с оболочками из нержавеющей стали, в реакторах № 2 и № 3 оболочки ТВЭЛ были выполнены из циркониевого сплава. В соответствии с этим ядерное топливо ( $\text{UO}_2$ ) в реакторе № 1 имеет обогащение по изотопу  $^{235}\text{U}$  6,5 %, а в реакторах № 2 и № 3 – 5 %. По остальным параметрам все реакторы РУ ОК-150 были сходны, что позволило применить одну математическую модель нейтронно-физических процессов в их АЗ. Приведем эти основные параметры.

Активную зону реактора ОК-150 образуют 219 рабочих каналов (РК), или тепловыделяющих сборок (ТВС), расположенных в узлах правильной треугольной решетки с шагом 64 мм, что определяет эквивалентный диаметр поперечного сечения АЗ величиной 99,7 см. Каждый РК содержит пучок из 36 цилиндрических твэл (центрированный дистанционирующим каркасом), размещенный в кожуховых трубах (диаметром 56×1 мм) из циркониевого сплава. Ядерное топливо в форме таблеток из  $UO_2$  диаметром 4,5 мм размещено в циркониевых трубах  $\varnothing = 6,1 \times 0,75$  мм. Высота топливного столба таблеток, равная 160 см, и является высотой АЗ. Отражатели нейтронов образуют стальные экраны радиационной защиты корпуса реактора и каналы охлаждающей их воды. Активная зона охлаждается водой под давлением 160 атм при температуре на входе и выходе 248 и 325 °С соответственно. Тепловая эксплуатационная мощность реактора ~55 МВт при энергоресурсе 21,9 ГВт·сут (АЗ при обогащении топлива по  $^{235}U$  5 %), что позволяет работать РУ в течение 400 сут. Другие менее существенные детали можно найти в монографии (Головизнин и др., 1976).

На основе приведенных данных была разработана математическая одномерная цилиндрическая модель реактора ОК-150 с описанием нейтронно-физических процессов в топливном цикле АЗ с помощью программы КРАТЕР. В этой модели АЗ представлена несколькими цилиндрическими слоями с целью учета неравномерности выгорания стартовых изотопов ( $^{235}U$  и  $^{238}U$ ), образования актиноидов из  $^{238}U$  ( $^{239,240,241,242}Pu$ ,  $^{237,239}Np$ ,  $^{241}Am$ ), а также различных осколков деления. Представление АЗ слоями позволило учесть наличие стальных чехлов, в которых перемещаются стержни регулирования аварийной защиты, вытеснение части твэл из РК в центральной области АЗ этими чехлами, а также содержание  $^{10}B$  в кожухах некоторой части РК.

В модели заданы 7704 твэл в 219 РК с полным содержанием 1444 кг  $^{238}U$  и 76 кг  $^{235}U$  для активных зон 2 и 3 (при обогащении топлива 5 %) и 1856 кг  $^{238}U$  и 129 кг  $^{235}U$  для АЗ № 1 при обогащении топлива 6,5 %.

Для расчета изотопного состава отработавшего ядерного топлива применяется реакторная математическая программа КРАТЕР. Эта трехмерная диффузионная программа была разработана для целей изучения физики реакторов на тепловых нейтронах с отражателями как гомогенных, так и гетерогенных (Наумов и др., 1996). Программа имеет алгоритм совместного решения уравнений кинетики выгорания и уравнений реактора и позволяет описывать выгорание и наработку изотопов с учетом пространственной неоднородности спектра нейтронов. КРАТЕР имеет также одномерную и двумерную версии.

Пространственное расположение материалов внутри ТВС учитывается с помощью модели многозонной цилиндрической элементарной реакторной ячейки, версия которой имеется в алгоритме программы КРАТЕР. Зоны элементарной ячейки заданы размерами и составом топлива ( $UO_2$ ), теплоносителя ( $H_2O$ ) и конструкций ТВС. Модель ячейки позволяет учитывать влияние гетерогенности в ТВС на реактивность реактора и более точно определять абсолютные потоки нейтронов в активной зоне, а следовательно, и скорости выгорания топлива и накопления новых нуклидов.

### 3. Радионуклидный состав отработавшего ядерного топлива активных зон реакторов проекта ОК-150 ледокола "Ленин"

Ледокол "Ленин" участвовал в навигациях 1963 и 1964 гг., и активные зоны реакторов выработали более 60 % энергоресурса. В феврале 1965 г. в ходе плановых работ по перегрузке топлива на реакторе № 2 с активной зоной, имеющей твэлы с оболочками из Zr-Nb сплава, произошла авария. Часть топлива аварийной зоны (94 ТВС) перегрузили на ПТБ "Лепсе", а оставшуюся часть (125 ТВС) – в специальный контейнер, который впоследствии был затоплен в Карском море.

Выгорание топлива и образование новых долгоживущих радионуклидов в АЗ реактора № 2 рассматривалось в режиме непрерывной работы реакторной установки на средней мощности 54,6 МВт в течение 260 сут до энерговыработки 14200 МВт сут (Рубцов, Ружанский, 1996). Кампания была разбита на 40 временных шагов по 6,5 сут. В табл. 1 показаны полученные средние массовые характеристики долгоживущих актиноидов и продуктов деления для затопленной части активной зоны (125 ОТВС) и перегруженного на "Лепсе" (94 ТВС).

Анализ результата расчета массового состава ОЯТ реактора № 2 обнаружил высокую степень неравномерности распределения образовавшихся нуклидов в ТВС в зависимости от их положения в АЗ. Так, максимальные величины содержания осколков деления  $^{85}Kr$ ,  $^{90}Sr$ ,  $^{99}Tc$ ,  $^{137}Cs$ , а также изотопов  $^{239}Pu$ ,  $^{240}Pu$  отличаются от средних значений в 1,5-1,6 раза. Для актиноидов  $^{241}Pu$ ,  $^{242}Pu$ ,  $^{241}Am$  неравномерность более высокая и характеризуется коэффициентом ~2. Эту особенность изотопного состава следует учитывать при прогнозировании активности ОЯТ в хранилищах ПТБ "Лепсе".

Следует отметить, что установленные значения масс долгоживущих радионуклидов с помощью модели, разработанной авторами настоящей статьи на основе программы КРАТЕР, удовлетворительно согласуются с данными (Рубцов, Ружанский, 1996), определенными с помощью программы AFPA. Так, массы  $^{235}U$  и  $^{239}Pu$  в названной работе, равные соответственно 34 и 2,93 кг, близки к значениям 31,8 кг для  $^{235}U$  и 2,6  $^{239}Pu$  из табл. 1. Однако массы изотопов  $^{90}Sr$  и  $^{137}Cs$ , полученные с помощью ПК КРАТЕР, превышают соответствующие значения примерно на 10 %, вследствие их большей наработки в

центральной зоне реактора № 2 (125 ТВС) в нашей модели, по сравнению со средними значениями, которые определяются по программе AFPA в работе Рубцова и Ружанского.

Изотопный состав ОЯТ реакторов № 1 и № 3 также был определен по разработанной методике. Результаты представлены в табл. 2 для нескольких значений энерговыработки АЗ от 14,2 ГВт·сут, т.к. точные значения по эксплуатационному ресурсу реактора № 3 неизвестны. Такая же ситуация имеет место и для реактора № 1. Поэтому изотопный состав ОЯТ реактора № 1 представлен также для ряда значений от 14,2 до проектного значения 28 ГВт·сут (Абрамов и др., 1974).

Таблица 1. Масса актинидов и долгоживущих продуктов деления в активной зоне реактора № 2 проекта ОК-150 ледокола "Ленин" на момент окончания эксплуатации (февраль 1965 г.), программа КРАТЕР, кг

Нуклид	<sup>235</sup> U	<sup>236</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>239</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu	<sup>90</sup> Sr	<sup>99</sup> Tc	<sup>137</sup> Cs	<sup>151</sup> Sm
Период полураспада, лет	7,04·10 <sup>8</sup>	2,34·10 <sup>7</sup>	4,48·10 <sup>9</sup>	24100	6570	14,4	28,8	2,11·10 <sup>5</sup>	30,17	90
Центральная область АЗ 125 ОТВС	31,81	1,828	804,4	2,601	0,3617	0,0856	0,2025	0,2468	0,3509	0,00734
Периферийная область АЗ 94 ОТВС	27,78	0,942	631,5	1,366	0,1301	0,0197	0,1017	0,1223	0,1722	0,00542
Всего в активной зоне	59,59	2,770	1435,9	3,967	0,4918	0,1053	0,3042	0,3691	0,5231	0,01276

#### 4. Оценка величины активности ОЯТ реакторов установки ОК-150

В хранилищах ПТБ "Лепсе" находится 85 ОТВС из реактора № 1, 20 ОТВС из реактора № 2 и 99 ОТВС из реактора № 3 (Тимофеев, Душев, 2005). Продолжительность хранения – 47 лет. Средняя энерговыработка одной ТВС из установки типа ОК-150 по данным (Кашка, 2005) равна 2300 МВт·час или 0,096 ГВт·сут, что соответствует средней энерговыработке активной зоны 21 ГВт·сут. Основываясь на этих данных и применяя представленную в табл. 1 и 2 информацию по массовому составу ОЯТ при энерговыработке 21 ГВт·сут, можно приближенно оценить β- и α-активности наиболее опасных радионуклидов. Для времени выдержки τ активность радионуклида типа i с массой m<sub>i</sub> определяется согласно соотношению

$$a_i = \lambda m_i (N_0 / A_i) \exp(-\lambda \tau),$$

где a<sub>i</sub> – активность в Бк; λ – постоянная распада нуклида; N<sub>0</sub> = 6,022·10<sup>23</sup> – число атомов в одном грамме (число Авогадро); A<sub>i</sub> – атомный вес нуклида.

Таблица 2. Массовый изотопный состав активных зон реакторов ОК-150 № 1 и № 3 при различных значениях энерговыработки, кг

Нуклид	Энерговыработка, ГВт·сут							
	Реактор № 3			Реактор № 1				
	14,0	17,75	21,3	14,2	17,75	21,3	24,8	28,4
<sup>235</sup> U	59,82	56,128	52,56	111,7	107,64	104,12	99,81	96,03
<sup>236</sup> U	2,773	3,383	3,967	3,164	3,889	4,526	5,268	5,926
<sup>237</sup> Np	0,0842	0,120	0,1593	0,0921	0,1346	0,2244	0,2363	0,2938
<sup>238</sup> U	1440,3	1438,8	1437,2	1849,9	1848,3	1846,6	1845,2	1843,6
<sup>239</sup> Np	0,0766	0,0777	0,0793	0,0739	0,0745	0,0752	0,0762	0,0773
<sup>239</sup> Pu	3,919	4,505	4,988	4,347	5,140	5,874	6,465	7,021
<sup>240</sup> Pu	0,498	0,7052	0,9252	0,3584	0,5183	0,7042	0,8755	1,066
<sup>241</sup> Pu	0,1087	0,1812	0,2683	0,0724	0,1268	0,2156	0,2784	0,3722
<sup>242</sup> Pu	0,0066	0,0143	0,0264	0,0026	0,0059	0,0141	0,0194	0,0304
<sup>241</sup> Am	0,001	0,0020	0,0036	0,0006	0,0014	0,00287	0,0043	0,0067
<sup>85</sup> Kr	0,0142	0,01748	0,0206	0,0147	0,0182	0,0212	0,0248	0,0280
<sup>90</sup> Sr	0,3103	0,3825	0,453	0,3223	0,399	0,4668	0,5479	0,6203
<sup>99</sup> Tc	0,3779	0,4701	0,5616	0,3874	0,4825	0,5689	0,6703	0,7630
<sup>137</sup> Cs	0,5413	0,6755	0,8092	0,5527	0,6899	0,8168	0,9625	1,098
<sup>151</sup> Sm	0,0126	0,0128	0,0128	0,0204	0,0219	0,0221	0,0233	0,0236

Динамика накопления долгоживущих α- и β-активных радиотоксичных радионуклидов в реакторе № 1 ОК-150 в зависимости от энерговыработки активной зоны представлена на рисунке.

Выполненные оценки с использованием данных таблиц 1 и 2 позволили установить радиационные характеристики ОЯТ реакторов типа ОК-150, находящегося в хранилищах ПТБ "Лепсе", а также затопленного в Карском море в 1967 г.:

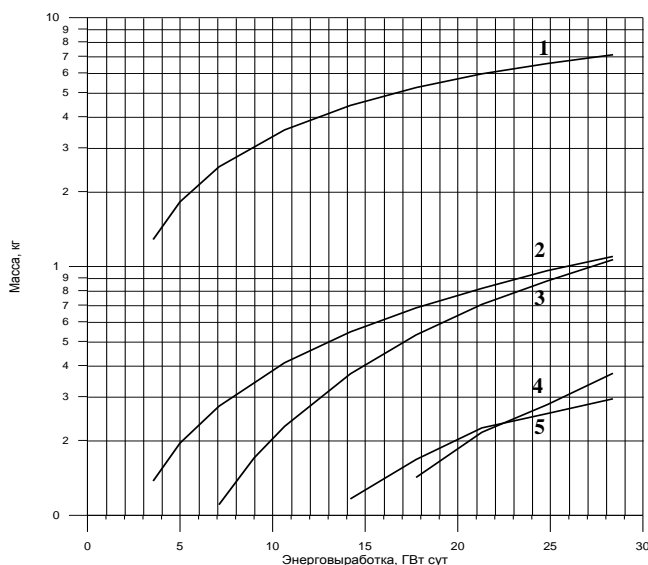


Рис. Накопление долгоживущих  $\alpha$ - и  $\beta$ -активных радиотоксичных радионуклидов в реакторе № 1 ОК-150 в зависимости от энерговыработки активной зоны, кг; 1 –  $^{239}\text{Pu}$ ; 2 –  $^{137}\text{Cs}$ ; 3 –  $^{240}\text{Pu}$ ; 4 –  $^{241}\text{Pu}$ ; 5 –  $^{237}\text{Np}$

эксплуатировавшихся на ледоколе "Ленин" в навигациях периода 1963-1964 гг.

2. Установлены количества ядерных материалов  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  и активности основных  $\beta$ - и  $\alpha$ -излучателей в отработавшем ядерном топливе, хранящемся на ПТБ "Лепсе", а также в затопленной части (125 ОТВС) в Карском море.

На следующем этапе работ по определению активности ОЯТ, хранящегося на ПТБ "Лепсе", предполагается оценить состав ОЯТ реакторов типа ОК-900 ледоколов "Ленин", "Арктика" и "Сибирь", из активных зон которых в период 1972-1981 гг. топливо выгружалось в хранилища ПТБ "Лепсе".

Авторы выражают благодарность академику Мельникову Н.Н. и профессору Конухину В.П. за помощь и постоянный интерес к работе.

### Литература

- Абрамов В.М., Александров А.П., Алещенков П.И.** Атомной энергетике XX лет. М., Атомиздат, с.213, 1974.
- Григорьев А.** История и состояние системы обращения с ОЯТ и РАО на Северо-Западе Российской Федерации. Доклад на семинаре КЭГ "Обращение с РАО ядерного наследия перед захоронением: переработка, кондиционирование и хранение". 17-19 мая 2011, Херингсдорф – Остров Узедом, Германия, 2011.
- Головизнин В.М., Кузнецов В.А., Пологих Б.Г.** Судовые ядерные энергетические установки. М., Атомиздат, с.376, 1976.
- Кашка М.М.** Комплексная утилизация плавучей технической базы "Лепсе". Доклад на семинаре КЭГ "Утилизация судов атомного технологического обслуживания и надводных кораблей ядерными энергоустановками". 24-26 мая 2005, Мурманск, Россия. URL: [www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/CEG/documents/ws052005\\_11R.pdf](http://www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/CEG/documents/ws052005_11R.pdf), 2005.
- Наумов В.А., Рубин И.Е., Днепровская Н.М.** Программный комплекс КРАТЕР для расчета нейтронно-физических характеристик тепловых ядерных реакторов. Препринт ИПЭ-14. Минск, Институт проблем энергетики АН Беларуси, 1996.
- Рубцов П.М., Ружанский П.А.** Оценка радиационных характеристик отработавшего ядерного топлива реакторов атомных подводных лодок и ледокола "Ленин", затопленных в районе архипелага Новая Земля. Атомная энергия, т. 81, вып. 3, 1996.
- Тимофеев А.В., Душев С.А.** Принципиальные технические решения обращения с ОЯТ ПТБ "Лепсе". Проблемы и решения. Доклад на семинаре КЭГ "Утилизация судов атомного технологического обслуживания и надводных кораблей с ядерными энергоустановками". 2005, Мурманск. URL: [www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/CEG/documents/ws052011/2\\_Russian\\_folder\\_CEG\\_Workshop/5.2.2\\_Timofeyev\\_Paper\\_Rus.pdf](http://www.iaea.org/OurWork/ST/NE/NEFW/CEG/documents/ws052011/2_Russian_folder_CEG_Workshop/5.2.2_Timofeyev_Paper_Rus.pdf), 2005.

### 1. На ПТБ "Лепсе" (206 ОТВС)

– содержание ядерных материалов: 1510 кг  $^{238}\text{U}$ ,  $\sim 70$  кг  $^{235}\text{U}$  и  $\sim 5$  кг  $^{239}\text{Pu}$ ;

– полная активность  $\beta$ -излучателей в ОЯТ  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{151}\text{Sm}$  составляет величину 1665 ТБк (45000 Ки) на 2012 г., при этом активность  $^{137}\text{Cs}$  равна 880 ТБк, а  $^{90}\text{Sr}$  – 750 ТБк;

– полная активность  $\alpha$ -излучателей ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ ) составляет на 2012 г. величину 56,4 ТБк (1520 Ки), 50 % которой определяется  $^{241}\text{Am}$ .

### 2. В затопленной части активной зоны аварийного реактора № 2

– содержание ядерных материалов: 804 кг  $^{238}\text{U}$ , 31,8 кг  $^{235}\text{U}$  и 2,6 кг  $^{239}\text{Pu}$ ;

– полная активность основных  $\beta$ -излучателей на 2012 г. равна для  $^{90}\text{Sr}$  – 330 ТБк и для  $^{137}\text{Cs}$  382 ТБк (19240 Ки);

– полная активность основных  $\alpha$ -излучателей на 2012 г. 21,6 ТБк (580 Ки).

### 5. Заключение

1. Разработана математическая модель нейтронно-физических процессов в реакторах установки ОК-150,