

УДК 621.039.17

МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО БЕНЧМАРК-ЭКСПЕРИМЕНТОВ, ВЫПОЛНЕННЫХ НА СБОРКЕ ZR-6

Алексеев Н.И., Гуревич М.И., Тельковская О.В., Шкаровский Д.А.
(НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

В 1972—1990 гг. в рамках Временного международного коллектива с участием специалистов 10 стран на критической сборке ZR-6 в ЦИФИ (Будапешт) были выполнены экспериментальные исследования более 300 конфигураций активной зоны ВВЭР [1]. Одна из основных целей исследований — получение надежных экспериментальных данных для верификации библиотек ядерных констант и программ расчета ВВЭР.

В 1997 г. было дано достоверное официальное описание трехмерной модели сборки ZR-6. Отсутствие полной трехмерной модели сборки препятствовало полноценному использованию экспериментальных данных при верификации констант и программ. Невозможно было описать дистанционирующие плиты и учесть эффект «сухой решетки», возникающий в случае, когда верхние части твэлов не залиты водой. Исследования получили статус бенчмарк-экспериментов после их экспертизы в рамках международной программы ICSBER [2]. В течение многих лет данные [1, 3] использовали для верификации отечественных прецизионных и инженерных программ [4].

В настоящее время возможность детального трехмерного описания всех реализованных вариантов сборки существенно увеличивает ценность экспериментальной информации. Базовой экспериментальной информацией для верификации программ являются сборники с описанием критических состояний разных конфигураций и состояний ICSBER Handbook [2] и сборник с измеренной скоростью реакции деления IRPhEP Handbook [5]. В версии ICSBER Handbook 2010 г. приводятся оценки эффективного коэффициента размножения $k_{эф}$ с учетом приближений бенчмарк-модели эксперимента и погрешности для более чем 4500 экспериментов различного типа, а также результаты моделирования экспериментов по разным программам на основе разных библиотек ядерных данных (~14 тыс. расчетов). ICSBER Handbook использовали для верификации программы MCU-PD. Рассматривали бенчмарк-модели со свежим урановым топливом обогащением ^{235}U от 1,6 до 4,4% по массе.

В настоящей статье рассмотрены результаты 234 измерений $k_{эф}$ и более 1000 скорости реакции деления в отдельных твэлах.

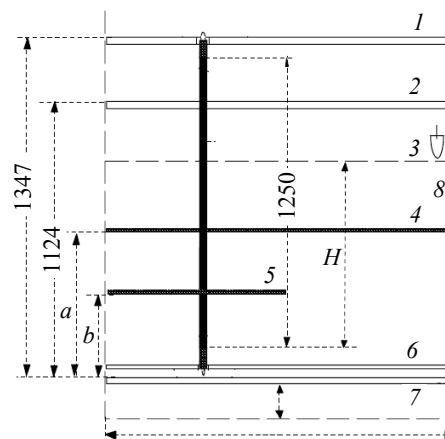
Методом Монте-Карло по программе MCU-PD [6] с библиотекой констант MDBPD50 с помощью подмодуля FIMTOEN рассчитаны 234 конфигурации активной зоны (полномасштабно, без введения угла

симметрии). Данные для программы были подготовлены с помощью специального конвертора, преобразующего таблицу описания и/или картограмму в секторе 30° во входные геометрические и физические данные. Расчеты проводили на многопроцессорном кластере.

Сборка ZR-6 представляет собой заполненный замедлителем цилиндрический бак из коррозионно-стойкой стали с открытой верхней частью (рис. 1). Активную зону собирали из сплошной (основание) и двух перфорированных (верхней и нижней) дистанционирующих плит из коррозионно-стойкой стали, в отверстия которых вставляли укороченные до 125 см твэлы и пэлы ВВЭР. Отверстия образовывали гексагональную решетку. В некоторых экспериментах использовали промежуточные дистанционирующие плиты, расположение и материал которых изменяли в зависимости от характера исследований. Толщину отражателя снизу и сбоку от активной зоны можно считать бесконечной. Критичность достигалась изменением уровня заливки замедлителя в активную зону.

В экспериментах замедлителем служила либо чистая вода, либо водный раствор борной кислоты концентрацией 1—7,2 г/л. В некоторых экспериментах замедлитель нагревали во внешнем баке и затем заливали во внутреннюю емкость. Максимальная рабочая температура составляла 130°C при давлении 0,36 МПа.

Топливом являлись таблетки UO_2 без центрального отверстия обогащением 1,6, 3,6, 4,4%, шаг ре-



Р и с. 1. Схема сборки ZR-6: 1, 6 — верхняя и нижняя перфорированная дистанционирующая плита соответственно; 2, 4, 5 — временная, средняя и секторная дистанционирующая плита соответственно; 3 — уровень замедлителя; 7 — опорная плита; 8 — цилиндрический открытый сверху бак

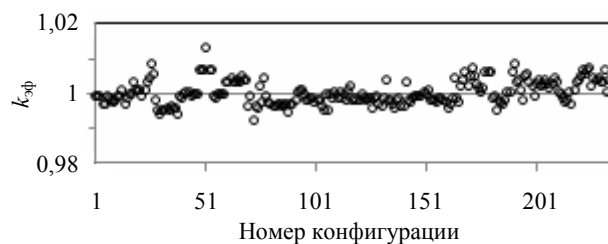
шетки составлял 11, 12,7, 15, 19,5 мм, материал поглотителей — ZrB_2 , B_4C , Eu_2O_3 , Gd_2O_3 в разной концентрации.

Исследованные решетки можно разделить на регулярные и возмущенные. Первые собирали из твэлов с одинаковым обогащением. Возмущение создавали за счет ячеек из бора в виде карбида бора естественного обогащения в стальных оболочках, гафния в виде стержней и трубок, диспрозия в виде титаната диспрозия в оболочке, европия в виде соединения Eu_2O_3 в алюминиевой оболочке, стальных стержней, водяных полостей, алюминиевых трубок, заполненных водой или воздухом. Некоторые конфигурации имитировали структуру ТВС ВВЭР. Границу кассетной структуры имитировали либо удалением необходимых рядов твэлов, либо их замещением алюминиевыми макетами твэла (для моделирования стенки кассеты).

На сборке ZR-6 рассмотрены четыре класса конфигураций: решетки со стальными пластинами толщиной 1 мм, решетки со стальными пластинами толщиной 3,25 и 1 мм, содержащие 1 и 2,7% бора по массе, решетки с алюминиевыми стержнями или водяными зазорами вместо этих стержней (данная серия имела симметрию 90°) (см. таблицу). Результаты расчетов хорошо согласуются с измеренными и обработанными данными [5]. На рис. 2 видно, что результаты расчетов $k_{эф}$ по программе MCU-PD в целом хорошо согласуются с экспериментом.

Исходя из гипотезы о том, что отклонение расчетных данных от экспериментальных одинаково для всех основных функционалов, были сделаны оценки соответствующих среднеквадратичных отклонений. При обработке 234 результатов сравнения отклонение средних расчетных значений от средних данных эксперимента составляет 0,06%, среднеквадратичное отклонение 0,32%: $k_{эф} = 1,0002 \pm 0,0033$ — эксперимент, $k_{эф} = 0,9996 \pm 0,0032$ — расчет.

В некоторых критических конфигурациях изменяли скорость реакции деления, которую обычно отождествляют с энерговыделением в активной зоне. Поскольку, как правило, приводятся относительные значения, то с точностью до множителя энерговыделения (энергии, выделяющейся в одном акте деления) скорость реакции деления и энерговыделение — это



Р и с. 2. Результаты расчетов $k_{эф}$ 78 сборок с регулярной, 87 с нерегулярной структурой, 69 сборок бенчмарк-экспериментов для хранилищ и областей вне активной зоны

Результаты расчетов $k_{эф}$ со статистической погрешностью $\pm 0,0002$ по программе MCU-PD моделей бенчмарк-экспериментов для моделирования активной зоны

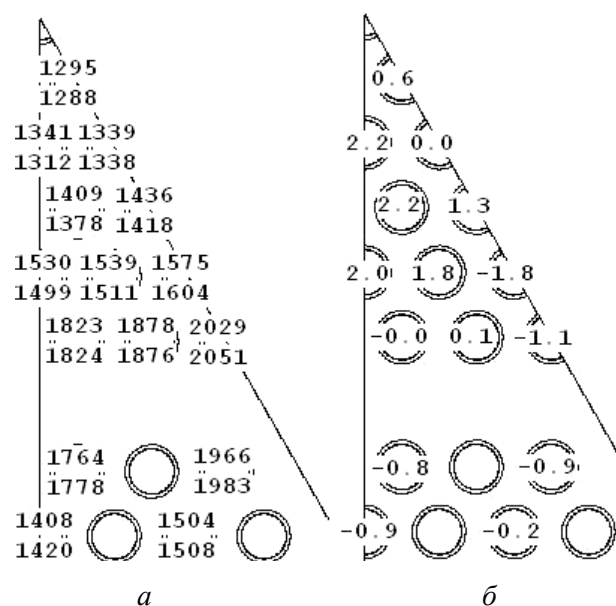
Конфигурация	Число сборок	Среднее $k_{эф}$
Серия LEU-COMP-THERM-015, 78 сборок		
с регулярной структурой		
12,7/3,6/0 ¹	14	0,9986
12,7/3,6/1,1	1	0,9989
12,7/3,6/4	8	1,0008
12,7/3,6/5,8	2	1,0039
12,7/3,6/7,2	2	1,0062
11/3,6/0	9	0,9957
11/3,6/0,96	1	0,9959
11/3,6/1,41	1	0,9942
15/3,6/0	9	0,9998
15/3,6/4	6	1,0074
15/4,4/0	6	0,9995
19,05/3,6/0	10	1,0038
12,7/1,6—3,6/0	2	0,9961
12,7/1,6—3,6/1,85	1	0,9923
12,7/4,4/0	2	0,9961
12,7/4,4/0,64	1	1,0025
12,7/4,4—3,6/0	1	0,9975
12,7/4,4—3,6/7,2	1	1,0045
15/1,6—3,6/0	1	0,9992
Серия LEU-COMP-THERM-015, 87 сборок		
с нерегулярной структурой		
12,7/3,6/0	47	0,9983
12,7/3,6/0/K331 ²	14	0,9981
12,7/3,6/0/K91	10	0,9990
12,7/3,6/5,5/K91	1	1,0011
12,7/3,6/4/K91	1	1,0033
12,7/3,6/0/K271	12	0,9985
12,7/3,6/1,8	2	0,9990
Серия LEU-COMP-THERM-036, 69 сборок		
12,7/3,6/0	11	0,9967
12,7/3,6/2,4	4	1,0003
19,05/2/0	8	0,9984
19,05/2—2,4/0	1	0,9973
25,98/2/0	11	1,0003
19,05/3,6/0/Gd ³	10	1,0001
15/3,6/0/E ⁴	1	1,0007
15/3,6/0/E ⁵	1	1,0006
15/3,6/0/X ⁶	1	0,9975
Ячейка хранилища	18	0,9987
12/3,6/4/K61	3	0,9984

¹Шаг решетки, мм/обогащение, %/концентрация борной кислоты, г/л/тип возмущения; ²тип моделируемой ТВС, в данном случае ТВС с 331 ячейкой для стержней; ³Gd — тип поглотителя, в данном случае гадолиниевый; ⁴E7 — тип (E — водяная полость) и шаг (7 — каждая седьмая ячейка); ⁵E[∞] — возмущение (E — водяная полость) только в центре сборки (шаг возмущения бесконечный); ⁶X[∞] — возмущение (X — пэл) только в центре сборки (шаг возмущения бесконечный).

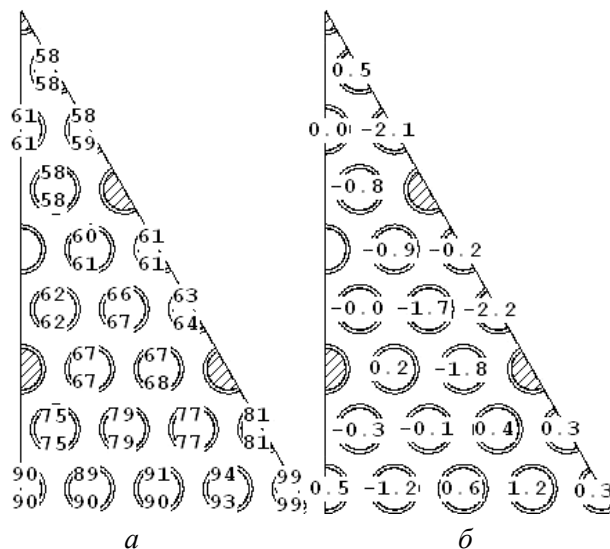
близкие величины, особенно для изотопов урана. В нашем случае скорость реакции деления измеряли по выходу продукта деления ^{140}La . Далее от числа осколков переходили к числу делений, затем к энерговыделению. Методика подобных измерений хорошо известна [1]. Измерения проводили в слое топлива толщиной 4 см некоторых твэлов на высоте, примерно равной середине интервала между нижней границей топлива и промежуточной плитой для угла симметрии 30° . В IRPhEP Handbook [5] скорость реакции деления приведена для 15 сборок. Измерения еще в 10 сборках были взяты из более ранних публикаций [1, 3]. Данные при сравнении измеренных и рассчитанных значений нормировали на сумму всех измеренных на данной сборке скоростей реакций. Сравнение выполнено для всех 25 конфигураций, типичный вид которых показан на рис. 3, 4. Результат дан парными рисунками. На рис. 3, а, 4, а — относительное энерговыделение в слое высотой 4 см. Верхнее значение получено экспериментально, нижнее — расчетное. На рис. 3, б, 4, б — отношение (расчет—эксперимент)/эксперимент, выраженное в процентах. Нумерация твэлов в секторе — из центра вниз слева направо по строкам. Одна часть сборок имела однородную решетку твэлов, другая — возмущения в виде поглощающих стержней или водяных полостей, третья часть имитировала кассетную структуру активной зоны. Расчеты четко отслеживают эти неоднородности.

Скорость реакции деления в критической сборке в радиальном направлении отражает неоднородности решетки и имеет большой всплеск возле границы с легководным отражателем.

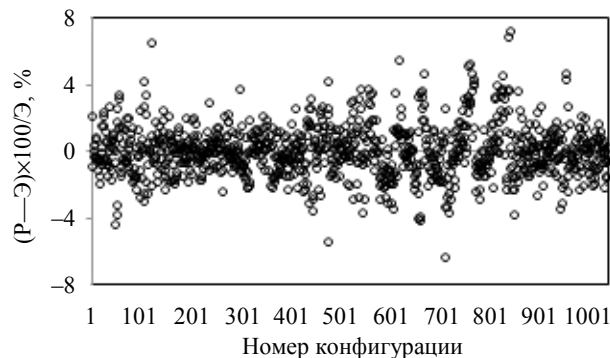
Обобщенные результаты сравнения 1047 рассчитанных скоростей реакций деления с экспериментальными показаны на рис. 5. Расчетные данные по



Р и с. 3. Скорость реакции деления в сборке 101/100



Р и с. 4. Скорость реакции деления в сборке 90/87



Р и с. 5. Обобщенные результаты сравнения 1047 расчетов с экспериментальной скоростью реакции деления

каждой сборке нормированы на данные эксперимента. Получено хорошее согласие экспериментальных и расчетных данных. Среднеквадратичное отклонение расчета от данных бенчмарк-моделей для всех измерений составило $\pm 2,2\%$ при средней погрешности эксперимента $\sim 0,4\%$ и статистической погрешности расчета $0,3\%$. Хорошее согласие с экспериментом означает, что изменение спектра в пределах активной зоны адекватно воспроизводится программой MCU-PD.

Работа поддержана РФФИ, грант № 10-07-00614-а.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Экспериментальные исследования по физике урановодных решеток типа ВВЭР. Сборник трудов ВМК. Т. 1. Budapest: Akademiai Kiado, 1984.
2. International Handbook of Evaluation Criticality Safety Benchmark Experiments. NEA/NSC/DOC (95)03, September 2010.
3. Экспериментальные исследования по физике урановодных решеток типа ВВЭР. Сборник трудов ВМК. Т. 3. Budapest: Akademiai Kiado, 1991.
4. Алексеев Н.И., Гуревич М.И., Майоров Л.В., Шкаровский Д.А. Моделирование критических экспери-

ментов на сборке ZR-6 с уран-водными решетками типа ВВЭР. — Атомная энергия, 1998, т. 84, вып. 6, с. 501—507.

5. **International Handbook of Evaluated Reactor Physics Benchmark Experiments.** NEA/NSC/DOC(2006)1, March 2009.

6. Гуревич М.И., Олейник Д.С., Шкаровский Д.А. Адаптация программы MCU-PD к параллельным вычислениям на многопроцессорных компьютерах. — Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2009, вып. 4, с. 66—77.

Поступило в Редакцию 3.05.11

УДК 621.039+546.161+546.175

ИССЛЕДОВАНИЕ ПОВЕДЕНИЯ ИОДА В УСЛОВИЯХ УПАРИВАНИЯ АЗОТНО-КИСЛЫХ РАФИНАТОВ

Жирнов Ю.П.

Поведение иода в процессах упаривания азотно-кислых рафинатов представляет интерес с точки зрения предотвращения сброса долгоживущего ^{129}I в окружающую среду. По результатам работ, например, [1—3] поведение иода в определенной степени можно прогнозировать. Однако экспериментального подтверждения результатов возможных прогнозов обнаружить не удалось.

Исследования проводили на растворах, имитирующих состав азотно-кислых рафинатов, продуктов их упаривания и регенерации азотной кислоты [4, 5]. Иод в рабочие растворы вводили в виде азотно-кислых растворов I_2 , KIO_3 и водного раствора KI , меченных ^{131}I . Концентрацию иода определяли радиометрическим методом. Измерения проводили на одноканальном амплитудном анализаторе, реализованном на базе блоков КАМАК и микроЭВМ МЕРА-660. Молекулярную форму иода (I_2) в рабочих растворах определяли экстракционным методом [6].

В табл. 1 приведены данные, которые характеризуют содержание I_2 в азотно-кислых растворах, приготовленных из кристаллического иода. Как видно, доля молекулярной формы уменьшается при снижении концентрации иода. Это более заметно при концентрации азотной кислоты 0,01 и 8 моль/л. Уменьшение доли I_2 является соответственно следствием гидролиза иода при 0,01—3 моль/л [2] и его окисления до иодат-иона при 8 моль/л [7]. В азотно-кислых

растворах иодида (KI) наблюдается аналогичная картина, что обусловлено переходом I^- в I_2 [7]. В растворах иодата (KIO_3) молекулярной формы иода не обнаруживается.

Иод из растворов, приготовленных из кристаллического иода и KI , может улетучиваться. Это иллюстрируется данными табл. 2, полученными для исходной концентрации иода 2 мг/л. При большей концентрации иода (20 мг/л) скорость и степень его улетучивания при выдержке растворов увеличиваются, при меньшей (0,1—0,2 мг/л), наоборот, уменьшаются. При выдержке растворов KIO_3 концентрация иода оставалась постоянной. Результаты выдержки растворов иода согласуются с данными о содержании молекулярной формы иода (см. табл. 1).

Азотно-кислые растворы иода упаривали при атмосферном давлении в стеклянном аппарате при непрерывной подаче исходного раствора (0,2 л/ч) на кубовый раствор (объемом 0,2 л), концентрация кислоты в котором задавалась, в исходном растворе принималась (по справочнику) равной ее концентрации в равновесном конденсате. Таким образом, в каждом опыте концентрация кислоты в кубовом растворе поддерживалась заданной. Результаты анализа проб, отобранных через 4 ч, приведены в табл. 3 для исходных растворов, приготовленных из кристаллического иода.

Таблица 1. Содержание молекулярного иода в растворах-имитаторах, % общей концентрации

I, мг/л	HNO_3 , моль/л				
	0,01	0,2	1,5	3	8
200	95	95	96		
20	84	93	94	96	93
2	61	88	91	92	78
0,2	19	76	83	80	67

Примечание. Пробы отбирали и анализировали сразу после приготовления растворов.

Таблица 2. Изменение концентрации иода при выдержке растворов-имитаторов в открытом стакане при 20—25 °С, мг/л

Время, ч	HNO_3 , моль/л			
	0,1	3	8	12
0	2	2	2	2
1	1,8	0,87	1,35	1,6
2	1,6	0,42	1,07	1,34
3	1,42	0,22	0,85	1,12
4	1,26	0,15	0,69	0,95
5	1,1	0,13	0,56	0,82
6	0,96	0,12	0,47	0,71