R-99-52

# Kriticitetsförhållanden i kapslar för slutförvaring av använt kärnbränsle

Agrenius Ingenjörsbyrå AB

September 1999

#### Svensk Kärnbränslehantering AB

Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co Box 5864 SE-102 40 Stockholm Sweden Tel 08-459 84 00 +46 8 459 84 00 Fax 08-661 57 19 +46 8 661 57 19



ISSN 1402-3091 SKB Rapport R-99-52

# Kriticitetsförhållanden i kapslar för slutförvaring av använt kärnbränsle

Agrenius Ingenjörsbyrå AB

September 1999

Denna rapport har gjorts på uppdrag av SKB. Slutsatser och framförda åsikter i rapporten är författarnas egna och behöver nödvändigtvis inte sammanfalla med SKB:s.

## Innehåll

1	Inledning	5
2	Förutsättningar	7
2.1	Kapselkonstruktion	7
2.2	Bränsletyper	7
2.3	Metoder för beräkningarna	8
2.4	Övriga förutsättningar	8
3	Analys	9
3.1	Färskt bränsle	9
3.2	Utbränningskreditering	10
3.3	Långtidsperspektivet	12
4	Slutsatser	15

## 1 Inledning

I djupförvaret ska det använda kärnbränslet förvaras i tätsvetsade kopparkapslar. Bränsleelement placeras i kapslarna i inkapslingsanläggningen varefter de fyllda kapslarna ska transporteras till och förvaras i djupförvaret.

I syfte att belysa kriticitetsförhållandena i slutförvaringskapseln har ett antal beräkningar genomförts. I föreliggande rapport sammanställs resultaten från dessa beräkningar. Syftet att visa att hantering av bränsle i samband med inkapsling och slutförvaring i ett långt tidsperspektiv kan göras på ett ur kriticitetssynpunkt säkert sätt.

Det ska noteras att delar av underlagsrapporterna är preliminära och komplettering av analyserna ska göras i den slutliga säkerhetsredovisningen. Underlaget är dock så komplett att preliminära slutsatser om kriticitetsförhållandena i slutförvaringskapseln kan dras.

## 2 Förutsättningar

Kriticitetsförhållandena i kapseln med gjutstålsinsats har beräknats i referenserna 1 och 2. Beräkningarna är gjorda med följande förutsättningar:

#### 2.1 Kapselkonstruktion

Kapselkonstruktionen framgår av referens 3. Kapslarna är 4 833 mm höga och 1 050 mm i ytterdiameter. Kapslarna består av koppar med en tjocklek av 50 mm. I kapslarna är en gjutjärnsinsats placerad med kanaler som rymmer bränsleelementen. Insatsen har en diameter på 950 mm och kanalernas längd är 4 470 mm.

Två typer av insatser finns. BWR-insatsen rymmer 12 bränsleelement av BWR-typ och PWR-insatsen rymmer 4 bränsleelement av PWR-typ.

I BWR-insatsen är kanalernas fyrkantmått 156 mm och centrumavståndet mellan kanalerna är 206 mm. I PWR-insatsen är motsvarande mått 224 respektive 374 mm.

#### 2.2 Bränsletyper

Vid de svenska kärnkraftverken används ett stort antal olika bränslekonstruktioner vilka har olika egenskaper ur kriticitetssynpunkt. I samband med licensiering av kassetter för mellanlagring av bränsle har en inventering av vilka bränsletyper som förekommer gjorts. De olika bränsletyperna har kontrollräknats och de mest reaktiva konstruktionerna har identifierats. Dessa har därefter utnyttjats som referensbränsle i samband med licensiering av CLAB. Dessa beräkningar redovisas i referens 4, 5, 6 och 7.

De mest reaktiva bränsletyperna befanns vara:

BWR-bränslet: Svea 64 PWR-bränslet: F17•17

I CLAB-licensen är följande anrikningsgränser specificerade:

BWR-bränsle: 3,6 % U235
4,2 % U235 förutsatt att bränslet innehåller en BA-insats med minst 5 BA-stavar med en Gd-halt på minst 2,55 w/o.

PWR-bränsle: 4,2 % U235

Det ska noteras att anrikningsgränserna gäller medelanrikningen i elementets axiella zon som har den högsta reaktivitetsnivån.

För de inledande beräkningarna av kriticitetsförhållandena i kapseln bedömdes baserat på dessa beräkningar att samma bränsletyper som i CLAB-licensieringen är mest reaktiva även i kapselmiljö.

Därför grundar sig de inledande kriticitetsberäkningarna på följande bränsletyper:

BWR-bränslet: Svea 64, 3,6 % U235 PWR-bränslet: F17•17, 4,2 % U235

Beräkning av utbränningsförloppet i referens 8 är baserat på Svea 64-bränsle.

Det ska noteras att analysen inte täcker eventuellt förekommande MOX-bränsle.

#### 2.3 Metoder för beräkningarna

Kriticitetsberäkningarna har gjorts av ABB Atom med programmen Phoenix 3 och KENO Va. Dessa program är validierade för beräkning av LWR-bränsle i förvaringsgeometri (referens 9, 10 och 11).

Enligt dessa rapporter överskattar ABB-Atoms metoder reaktiviteten i dessa benchmarksberäkningar varför någon bias för systematiskt beräkningsfel inte finns med i resultaten. I validieringen ingår ett experiment med reflekterande väggar av rostfritt stål där reaktiviteten överskattades med 2 % vilket tyder på acceptabel beräkningsnoggrannhet med mycket järn i systemet. Dock saknas beräkning av experiment med så relativt mycket järn som finns i kapseln. Ytterligare verifiering av fall med mycket järn är därför befogad inför den slutliga redovisningen.

### 2.4 Övriga förutsättningar

Det konstruktionsstyrande kravet ur kriticitetssynpunkt är att den effektiva neutronmultiplikationskonstanten ( $k_{eff}$ ) inklusive osäkerheter inte ska överskrida 0,95 under hantering och förvaring av kapslar.

Kapslarna antas vid kriticitetsberäkningarna vara fyllda med vatten med en temperatur på 20°C.

## 3 Analys

### 3.1 Färskt bränsle

Kriticitetsberäkningar (referens 2) för vattenfyllda insatser omgivna av vattenmättad bentonit och fyllda med färskt bränsle enligt ovan gav följande resultat:

Insats	$k_{eff}$ + 3 $\sigma$
BWR	0,941
PWR	1.063

Ytterligare analyser gjordes för att bedöma osäkerheter i resultaten. Effekten av ändringar av följande parametrar studerades:

#### • Medelanrikning

En sänkning av anrikningen till 3,4 % för BWR och till 3,8 % för PWR skulle reducera värdena till 0,928 för BWR och 1.043 för PWR (referens 1).

#### • Urplockade bränslestavar

Om bränslet ej är komplett (allt bränsle har urplockade stavar) kommer  $k_{eff}$  att kunna öka till 0,95 för BWR och 1,08 för PWR (referens 1).

#### • Avståndet mellan kanalerna i insatsen (C-C-avståndet)

Det nominella avståndet mellan kanalerna är 206 mm i BWR-insatsen och 374 mm i PWR-insatsen. En ökning av detta mått minskar reaktiviteten med 0,1 %/mm och en minskning av måttet ökar reaktiviteten med 0,1 %/mm i BWR-fallet. I PWR-fallet är ändringen omkring 0,02 %/mm. Slutsatsen här är att en ökning av C-C avståndet (större kapslar) kan minska reaktiviteten (referens 2).

#### • Spaltbredden mellan bränsleelement och bränslekanal

Nominella spalter mellan bränsleelement och kanalväggar är 8,2 mm för BWR och 5,0 mm för PWR. En minskning av spalterna ger en ökning av reaktiviteten för BWR medan reaktiviteten ej påverkas i PWR-fallet (referens 2).

#### • Excentrisk placering av bräsleelement i kanalen

Resultaten visar att reaktiviteten ökar om elementen placeras mot centrum. Ökningen är 0,5 % för BWR och 0,2 % för PWR. Reaktiviteten minskar om bränsleelementen placeras utåt (referens 2).

• Håligheter och porositet i insatsen

Om en kanalvägg ersätts med vatten minskar reaktiviteten i PWR-insatsen och påverkas inte i BWR-insatsen. En ökning av reaktiviteten på 0,3 % fås vid en porositet på 4 % för BWR och 10 % för PWR (referens 2).

#### • Olika insatsmaterial (referens 2)

Ändrad kolhalt i insatsen påverkar inte reaktiviteten markant.

Tillsats av bor i insatsmaterialet minskar reaktiviteten markant. En borhalt på 0,5 % reducerar  $k_{eff}$  till under 0,95 för både BWR och PWR. Bor bedöms dock inte kunna användas då det ej är visat att boret finns på plats i det långa tidsperspektiv som är aktuellt.

Om insatsmaterialet byts till brons sänks reaktiviteten markant. Brons bedöms dock inte vara ett realistiskt insatsmaterial för närvarande.

Beräkningsresultaten	för	färskt	bränsle	kan	sammanfattas	enligt	följande:

Parameter	BWR k <sub>eff</sub> + 3 s	PWR k <sub>eff</sub> + 3 s
Grundfall	0,94	1,06
Osäkerheter på grund av geometri och placering av bränsleelement i kapseln	0,03	0,01
Beräkningsosäkerheter (schablonvärde)	0,.02	0,02
Summa	0,99	1,09

Av känslighetsanalysen framgår att dessa k-värden ej kan reduceras signifikant med hjälp av ändringar i geometri eller material, borerad insats och bronsinsats undantagna.

### 3.2 Utbränningskreditering

Allt bränsle i CLAB har en viss utbränning, som innebär att reaktiviteten som regel är avsevärt lägre än för färskt bränsle. Genom att ta hänsyn till denna reaktivitetsminskning kan det visas att k<sub>eff</sub>-värdet i verkligheten är mindre än 0,95.

En omfattande studie av utbränningskreditering gjordes i referens 8 i samband med utveckling av kompaktkassetter i CLAB. Dessa resultat utnyttjas för att analysera hur kriticitetsförhållandena i kapseln förändras beroende på utbränning.

Om utbränningskreditering ska utnyttjas tillkommer ytterligare osäkerhetstermer på grund av osäkerheter vid bestämning av bränsleelementens utbränning och osäkerheter i påverkan av bränsleelementens axiella utbränningsfördelning. Dessa osäkerheter är 7 % för BWR-bränsle och 2 % för PWR-bränsle enligt referens 8. Inkluderas dessa osäkerheter ska utbränningskreditering klara följande reaktivitetsnivåer:

Bränsletyp	k <sub>eff</sub> + 3 s
BWR	1,06
PWR	1,11

I utredningen i referens 8 tillgodoräknas nettoreduktionen av fissilt material samt neutronabsorption i fissionsprodukter och aktinider.

Med kunskap om hur k-värdet beror av medelanrikningen (referens 1) och hur k-värdet förändras med utbränning (referens 2 och 8) konstrueras en gränskurva som anger vilka kombinationer av anrikning och utbränning som ger ett k-värde i kapselgeometri som motsvarar k<sub>eff</sub>-värde på 0,95. Denna gränskurva för BWR-bränsle visas i diagram 1 där också allt bränsle i CLAB per den 1998-12-31 är inritat. Motsvarande gränskurva och CLAB-inventarium för PWR-bränsle visas i diagram 2. De bränsleelement som ligger till höger om respektive gränskurva i diagrammen kan accepteras för placering i kapseln.



**Diagram 1.** BWR-gränskurva för utbränningskreditering jämfört med BWR-bränsle i CLAB 1998-12-31.



**Diagram 2.** PWR-gränskurva för utbränningskreditering jämfört med PWR-bränsle i CLAB 1998-12-31.

Av diagrammen framgår att utbränningskreditering klarar att hantera reaktiviteten i kapselgeometri för allt bränsle som dags dato lagras i CLAB med god marginal om både fissionsprodukter och aktinider tillgodoräknas.

I andra studier av kriticitetsförhållanden vid slutförvaring krediteras nettoreduktionen av fissilt material samt endast neutronabsorptionen i aktiniderna. Detta analyssätt har använts bl a av US Department of Energy (referens 12). Neutronabsorption i fissionsprodukterna motsvarar omkring 7–11 % vid 20–40 MWd/kgU i slutförvaringskapseln enligt referens 14.Om endast aktinider utnyttjas för utbränningskreditering minskar marginalen men allt bränsle i CLAB kan fortfarande placeras i kapslar om element med låg utbränning placeras i samma kapsel som bränsleelement med hög utbränning.

### 3.3 Långtidsperspektivet

Då förvaring i djupförvaret ska ske under mycket lång tid måste reaktivitetens utveckling i långtidsförloppet analyseras:

Kriticitetsrisk inne i kapseln med där befintligt material:

- Ändring av bränslegeometrin på grund av mekanisk påverkan.
- Reaktiviteten i bränslet förändras på grund av radioaktiva sönderfall av fissionsprodukter och aktinider.
- Korrosion och andra kemiska processer påverkar materialet i kapsel, kapselinsats, bränslematerial och bränslegeometri.

Kriticitetsrisk utanför kapslarna på grund av materialtransport:

• Lokal ansamling av fissilt material i djupförvaret.

#### Ändring av bränslegeometrin på grund av mekanisk påverkan

Det kan tänkas en geometriförändring av bränslet i kapslarna sker på grund av mekanisk påverkan på dessa. Effekterna av ändrad geometri i kapslarna har beräknats i referens 2.

Utan hänsyn till begränsningar i tillgänglig mängd uran har reaktiviteten beräknats under antagandet att förhållandet mellan vatten och uran är optimalt i samtliga kanaler i en kapsel. Syftet är att hitta den geometri som ger det högsta k-värdet.

Det högsta k-värdet erhölls i BWR-fallet om bränslegeometrin förändras till ett 12·12-gitter (antalet stavar fördubblas, dvs elementets övre del skjuts in i den undre delen, samtidigt som diametrarna på alla stavar reduceras från 1,044 cm till 0,819 cm). Denna geometriförändring i alla kanaler ger en reaktivitetsökning på 18 % för BWR-fallet.

I PWR-fallet får maximal reaktivitet för 17•17-gitter om stavdiametarna minskar från 0,819 cm till 0,78 mm. Reaktivitetsökningen blir 6,9 %.

Då beräkningarna är gjorda vid optimal geometri kan osäkerhetstermer på grund av geometri och placering av beränsleelement i kapseln tas bort vid bedömning av k-värdet. Vidare bör den axiella osäkerheten för utbränningskreditering kunna halveras för BWR fallet då stavar från bränslets övre del blandas med stavar från dess undre del. Då kan  $k_{eff}$  för en kapsel beräknas:

Parameter	BWR k <sub>eff</sub> + 3 s	PWR k <sub>eff</sub> +3 s
Grundfall	0,94	1,06
Osäkerheter på grund av geometri och placering av bränsleelement i kapseln	0,00	0,00
Beräkningsosäkerheter (schablonvärde)	0,02	0,02
Axiell osäkerhet vid utbränningskreditering	0,035	0,.02
Optimal geometri	0,18	0,069
Summa	1,175	1,169



**Diagram 3.** K<sub>eff</sub> för gitter av Svea 64-typ i vatten som funktion av tiden.

För att kunna reducera dessa k-värden till 0,95 krävs en medelutbränning på omkring 28 MWd/kgU för både BWR 3,6 % U235 och PWR 4,2 % U235 med samma beräkningssätt som i avsnitt 3,2 ovan. Detta indikerar att utbränninskreditering med både fissionsprodukter och aktinider kan begränsa k-värdet till mindre än 0,95 i kapslarna även i detta fall.

Det måste dock påpekas att sådana omfattande geometriförändringar som här beskrivs skulle kunna ske på grund av endast mekanisk påverkan på en kapsel bedöms som mycket osannolikt. Om detta fall ska vara dimensionerande i den slutliga redovisningen bör en komplett osäkerhetsanalys utföras.

Det är troligare att kemiska processer (korrosion m fl) eller kombination av kemiska processer och mekanisk påverkan skulle kunna ge så stora geometriförändringar. Detta fall redovisas nedan.

#### Sönderfall av fissionsprodukter och aktinider

Studier av reaktivitetsvariationer i långtidsförloppet har gjorts i tre steg (referens 14). Först bestämdes nuklidsammansättningen i det utbrända bränslet med hjälp av programmet Phoenix. Därefter simulerades sönderfallet av nuklider med hjälp av programmet Origen 2 för tider upp till 10 miljoner år. Slutligen beräknades k<sub>eff</sub> för ett gitter av Svea 64 typ i kapselgeometri med nuklidsammansättning med kvarvarande aktinider och en del av de stabila fissionsprodukterna.

Som jämförelse beräknades  $k_{eff}$  för utbränt bränsle med en avklingningstid på 40 dagar motsvarande tidpunkten efter uttag ur reaktorn och efter 30 år motsvarande tiden vid inkapsling. Beräkningarna gjordes för utbränningarna 20 MWd/kgU och 40 MWd/kgU.

Resultatet redovisas i diagram 3. Det framgår att reaktiviteten minskar de första 100 åren huvudsakligen beroende på att Pu 241 sönderfaller med en halveringstid på 14,4 år. För längre tider ökar reaktiviteten vilket bl a beror på att Pu 239 sönderfaller till U235,

Pu 240 sönderfaller till U236 och Pu 241 sönderfaller till Am 241 som i sin tur sönderfaller till Np 237.

Vid utbränningar på 40 MWd/kgU kommer ökningen inte att resultera i reaktivitetsnivåer över 40-dagarsvärdet.

Slutsatsen av denna analys är att det långsiktiga sönderfallet av fissionsprodukter och aktinider inte förväntas leda till att den reaktivitetsnivå som utnyttjas vid dimensionering av kapselkonstruktionen överskrids. Det ska dock noteras att resultatet är behäftat med osäkerheter på grund av osäkerheter i tvärsnittsdata för vissa isotoper.

Resultatet är i överensstämmelse med motsvarande analys utförd av DOE (referens 12).

#### Korrosion och kemiska processer

Om kapseln vattenfylls kommer insatsen att börja korrodera och bränslets bärande delar kan vittra sönder. Ett tänkbart scenario är att det söndervittrade bränslet samlas i kapselns nedre del. Om boxen antas försvinna kan fördelningen av fissilt material ske över hela kanalvolymen och optimal geometri kan uppstå över hela kanalvolymen

Utan hänsyn till begränsningar i tillgänglig mängd uran har reaktiviteten beräknats under antagandet att förhållandet mellan vatten och uran är optimalt. I denna geometri får en reaktivitetsökning på 18 % för BWR-fallet och 6,9 % för PWR-fallet, enligt ovan.

Korrosion av kapseln innebär att kanalernas dimensioner minskar och att järn och/eller järnoxid blandas med vattnet. Beräkningarna visar att om bränslet är intakt och järn eller järnoxid homogeniseras med vatten kommer reaktiviteten att minska kraftigt på grund av järnets absorberande verkan.  $k_{eff}$  reduceras i detta fall till omkring 0,5.

Med utgångspunkt från att kapseln är homogeniserad med vattnet och materialsammansättningen avseende bränslet är samma som för optimal geometri ovan bestämdes det ur reaktivitetssynpunkt optimala förhållandet mellan bränslestavsstorlek och avstånd mellan bränslestavarna. Det resulterande maximala k<sub>eff</sub> blev 0,7 för BWR-fallet och 0,65 för PWR-fallet.

Slutsatsen av denna analys är att vattenfyllning av kapseln med korrosion av insatsen och söndervittring av bränslet som följd inte kommer att leda till konfigurationer med oacceptabla reaktivitetsnivåer.

#### Lokal ansamling av fissilt material i djupförvaret

I referens 15 har möjligheterna för att fissila isotoper i kapseln ska transporteras och koncentreras lokalt i djupförvaret utanför kapslarna analyserats. Analysen omfattade kapslar med blyfyllda insatser. Resultatet av denna analys är att sannolikheten är försumbar att fissilt material kommer att transporteras och ansamlas i sådana mängder att en kriticitet skulle kunna uppstå. Det bedöms att denna slutsats är tillämplig även på en kapsel med gjutjärnsinsats. Detta bör dock verifieras i den slutliga redovisningen.

## 4.0 Slutsatser

Preliminära analyser av kriticitetsförhållandena i kapseln för slutförvaring har genomförts. Analyserna visar att bränslet kan förvaras i kapslarna med acceptabel marginal till kriticitet om reaktivitetsminskningen på grund av bränslets utbränning tillgodoräknas. Förutsedda ändringar i materialsammansättning och geometrier i långtidsförloppet i eller utanför kapseln förväntas inte ge oacceptabla marginaler till kriticitet.

### Referenser

- SKB Inkapsling, Projekt PM 95-3439-04 rev. 1 Kriticitetsberäkningar för kapsel med gjutstålsinsats för slutförvaring av LWR-bränsle, Henrik Efraimsson, ABB Atom, April 1996.
- SKB Inkapsling, Projekt PM 96-3430-06 Kriticitetsberäkningar och parameterstudier för slutförvaringskapsel med insats, Henrik Efraimsson, ABB Atom, April 1996.
- 3. SKB TR-95-02, Copper canister with cast inner component, March 1995.
- 4. ABB-Atom BR91-384, Criticality Calculations: BWR Compact Canisters (CLAB 96).
- **5.** ABB-Atom BR91-385, Nuclear criticality Safety Evaluations: BWR Compact Canisters (CLAB 96).
- **6.** ABB-Atom BR91-446, Criticality calculations: PWR Compact Canisters (CLAB 96).
- 7. ABB-Atom BR91-447, Nuclear criticality Safety Evaluations: PWR Compact Canisters (CLAB 96).
- **8.** ABB Atom rapport UR89-478, Burnup credit in nuclear criticality safety analysis of CLAB, G Dodig-Crnkovic.
- 9. ABB-Atom BR 90-009, Verification of Phoenix 3 against experiments.
- 10. ABB-Atom BR 91-029, Underwater Close packed storage of LWR-fuel.
- **11.** ABB-Atom UR 87-174, Verification of Phoenix4/Keno V for criticality calculations 1991.
- 12. DOE/RW-0472 Rev. 1, Topical Report on Actinide-Only Burnup Credit for PWR Spent Nuclear Fuel Packages, May 1997, U.S. Department of Energy.
- **13.** ABB-Atom, BR 94-164, Inledande studie beträffande slutförvaring av LWR-bränsle, 1994-02-23.
- **14.** ABB-Atom, SDB 94-1433, Inledande studie beträffande slutförvaring av LWR-bränsle. Kompletterande analyser 1994-12-21.
- **15.** KBS Teknisk rapport 108, Criticality in spent fuel repository in wet cristalline rock, Hannerz-Behrenz, ASEA-ATOM 1978-05-30.