

УДК 621.039.58

## СПЕКТРАЛЬНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ВВЭР-1000, ПРЕДНАЗНАЧЕННОГО ДЛЯ СУХОГО ХРАНЕНИЯ

С.А. Письменецкий<sup>1</sup>, В.Б. Пышкин<sup>1</sup>, В.Г. Рудычев<sup>1</sup>, Е.В. Рудычев<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Харьковский национальный университет им. В.Н. Каразина, г. Харьков, пл. Свободы, 4, Украина

<sup>2</sup>Национальный Научный Центр «Харьковский физико-технический институт», г. Харьков, ул. Академическая, 1, Украина

E-mail: rud@pht.univer.kharkov.ua

Поступила в редакцию 21 ноября 2007 г.

На основе базы данных JEF-2.2 разработан пакет SpectrOJAT, позволяющий для произвольного набора и концентрации радионуклидов рассчитать спектральный состав гамма-квантов. Спектральные распределения могут быть рассчитаны как для наперед заданных энергетических интервалов, так и средних энергий гамма-квантов, а также в произвольный момент времени. Для отработавшего ядерного топлива (ОЯТ), предназначенного для сухого хранения, выполнены сравнения спектров SpectrOJAT с рассчитанными в пакете FISPACT для фиксированных энергетических интервалов. При уточнении базы данных JEF-2.2 получено хорошее согласие во всем диапазоне энергий гамма-квантов. Получены спектральные распределения от ОЯТ в виде необходимом для выполнения расчетов защитных свойств контейнеров хранения. Получены зависимости изменения спектральных распределений от времени при хранении ОЯТ. Показан резкий спад высокоэнергетической составляющей спектра от времени хранения.

**КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА:** отработавшее ядерное топливо, сухое хранение ОЯТ, спектр гамма-квантов, ВВЭР-1000, особенности многолетней выдержки

На Запорожской АЭС (ЗАЭС) в 2001 году было введено в эксплуатацию сухое хранилище отработавшего ядерного топлива (СХОЯТ) по технологии, разработанной американской компанией «Duke Engineering & Services». Предполагается строительство СХОЯТ и для других АЭС Украины, вероятным разработчиком технологии сухого хранения будет «Holtec International Inc.». В документации проектов указанных компаний нет детальной информации о характеристиках излучений вне контейнеров хранения, например, таких как спектральный состав гамма-квантов. Отсутствие таких данных не позволяет рассчитать ни защитных сооружений, ни оценить изменение радиационной обстановки вокруг хранилища со временем. В свою очередь, для расчета характеристик излучения вне контейнера хранения необходимо знать характеристики излучения внутри контейнера от отработавшего ядерного топлива.

Целью настоящей работы является разработка методики, позволяющей для произвольного набора и концентрации радионуклидов рассчитать спектральный состав гамма-квантов и его изменение от времени.

### СУХОЕ ХРАНЕНИЕ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

В Украине эксплуатируются 13 энергоблоков с реакторами ВВЭР-1000. Перегрузка топлива в реакторе производится один раз в год, при этом заменяется примерно 1/3 из 163 тепловыделяющих сборок, находящихся в активной зоне реактора при "3-годовой кампании". Отработавшее ядерное топливо выгружается в приреакторные бассейны выдержки, где хранится в течение 3-5 лет. За это время существенно уменьшается как энерговыделение, так и активность отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС). После хранения в бассейнах выдержки топливо всех реакторов ВВЭР-1000 направлялось на переработку в Россию. В связи с существенным повышением стоимости услуг предприятий России в 2001 г. на Запорожской АЭС было введено в эксплуатацию сухое хранилище отработавшего ядерного топлива (СХОЯТ) со сроком эксплуатации 50 лет. Такой подход называется отложенным решением, предполагающим долгосрочное хранение ОЯТ в расчете на изменение экономических условий и возникновение новых технологий обращения с ОЯТ в будущем.

В настоящее время на Запорожской АЭС находится в эксплуатации сухое хранилище ОЯТ по технологии компании DE&S, которая для промежуточного длительного хранения ОЯТ использует вентилируемые контейнеры хранения - ВКХ-ВВЭР-1000. Внутри бетонного контейнера устанавливается многоместная герметичная корзина из углеродистой стали (см. рис.1), в которой в шестигранных направляющих трубах размещены 24 ОТВС. Корзина заполнена гелием под давлением, близким к атмосферному, улучшающем теплопередачу от ОТВС к стенам корзины. Между нагретыми стенами корзины и металлической обечайкой, внутри бетонного контейнера, вследствие естественной конвекции проходит воздух, унося излучаемое ОТВС тепло. В совокупности: стенки корзины (25 мм стали), металлическая обечайка (75 мм стали) и стенки контейнера (70 см бетона) служат противорадиационной биологической защитой в радиальном направлении. Хранилище предназначено для хранения 380 контейнеров типа ВКХ-ВВЭР-1000 или хранения 9120 ОТВС реактора ВВЭР-1000. Хранилище представляет собой открытую площадку, на которой с шагом 4,5 м установлены контейнеры ВКХ-ВВЭР-1000. Площадка расположена в пределах промплощадки ЗАЭС и оборудована дополнительной радиационно-защитной стеной. При загрузке ВКХ, их перемещении и последующем размещении и хранении на террито-

рии АЭС, необходимы данные о спектральном составе и потоке гамма-квантов как на поверхности контейнера, так и на удалении от него. Для анализа радиационной обстановки в процессе размещения новых ВКХ требуются данные об изменении спектрального состава и количества фотонов от уже размещенных ВКХ.

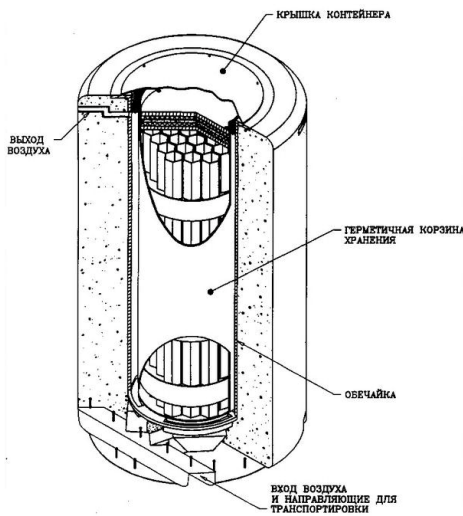


Рис.1. Схема вентилируемого контейнера хранения ОЯТ (ВКХ-ВВЭР-1000), используемого на ЗАЭС.

## ХАРАКТЕРИСТИКИ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

Характеристики излучения определяются активностью и энергетическим спектром гамма-квантов отработавшего ядерного топлива. Радионуклидный состав и активность ОЯТ зависят от времени пребывания его в реакторе (продолжительность кампании), максимального начального обогащения, среднего выгорания и времени выдержки в приреакторном бассейне выдержки. В Украине в последние годы добываются максимальной эффективности работы АЭС, оснащенных реакторами ВВЭР-1000. Это достигается при использовании топлива с максимальным начальным обогащением 4,4 вес. % U-235, кампанией в 3 года и средним выгоранием топлива 41,5 МВт·сут./кгU. Выгруженное из реакторов ОЯТ с такими характеристиками имеет максимальные радиационные характеристики и тепловыделение. Перед загрузкой в ВКХ такого ОЯТ его содержат в течение 5 лет в бассейне выдержки.

Энергетический спектр гамма-квантов и их количество зависят от концентрации радионуклидов, содержащихся в ОЯТ (продуктов деления, актиноидов, продуктов активации элементов ОТВС). Активности продуктов деления и концентрации долгоживущих актиноидов ОТВС, время выдержки которых 3 и более лет, приведены в [1]. Для расчета энергетического спектра полного числа испускаемых ОЯТ гамма-квантов нами учитывались 60 радионуклидов, концентрация которых максимальна, и 20 долгоживущих актиноидов.

Известно [1], что число  $\gamma$ -квантов, испускаемых  $l$ -м нуклидом в единицу времени определяется выражением:

$$N_l(t) = Q_l(t) \cdot \sum_k n_{lk}, \quad (1)$$

где  $Q_l(t)$  - активность  $l$ -го нуклида,  $n_{lk}$  - квантовый выход  $k$ -й  $\gamma$ -линии  $l$ -го нуклида на распад. Для смеси нуклидов спектральный состав  $\gamma$ -излучения принято представлять в виде нескольких фиксированных энергетических интервалов с расчетом средней энергии внутри каждого из них и относительного вклада числа  $\gamma$ -квантов  $Ng_i$  каждого  $i$ -го интервала в полное число  $\gamma$ -квантов смеси нуклидов:

$$\bar{E}_i(t) = \left[ \sum_l Q_l(t) \sum_k E_{lk} n_{lk} \right]_i / \left[ \sum_l Q_l(t) \sum_k n_{lk} \right]_i, \quad (2a)$$

$$Ng_i(t, E_i) = \left[ \sum_l Q_l(t) \sum_k n_{lk} \right]_i / \sum_i \left[ \sum_l Q_l(t) \sum_k n_{lk} \right]_i, \quad (26)$$

где  $E_{lk}$  - энергия  $k$ -й  $\gamma$ -линии  $l$ -го нуклида.

База данных выходов гамма-квантов для каждого радионуклида и актиноида была сформирована на основе пакета JEF - 2.2 [2]. Нами разработан пакет SpectrOJAT, использующий данные по активностям радионуклидов и концентрациям актиноидов из [1], постоянные распада и квантовые выходы из [2], который позволяет рассчитать спектральный состав и интенсивность гамма-излучения ОЯТ на любой заданный момент времени с произвольно заданным энергетическим интервалом. Пакет SpectrOJAT учитывает также гамма-кванты, сопровождающие цепочки последующих  $\beta^-$ - $\beta^+$ -распадов и распад изомерных состояний. Такой распад показан на рис.2 на примере такого радионуклида, как  $^{144}\text{Ce}$ , имеющего достаточно большую активность:  $3,77 \times 10^{15}$  распадов/с на тонну топлива.

Спектр ОЯТ состоит из нескольких сотен линий гамма-квантов с разными энергиями и интенсивностями (например, только у  $^{152}\text{Eu}$ -128 линий [2]). Обычно спектральный состав гамма-излучения смеси радионуклидов представляют в виде ряда фиксированных энергетических интервалов (или с указанием средней энергии для каждого интервала-соотношения (2)) и относительного числа гамма-квантов в каждом энергетическом интервале (в процентах) к полному числу гамма-квантов. Следует отметить, что в зависимости от выбора интервалов может существенно изменяться визуальное представление спектрального распределения. В доступной литературе отсутствуют детальные данные по спектральному составу ОЯТ ВВЭР-1000 и его изменению от времени. В работе [1] выполнено разбиение всего энергетического интервала на 6 групп, что практически не позволяет вы-

полнить детальный анализ.

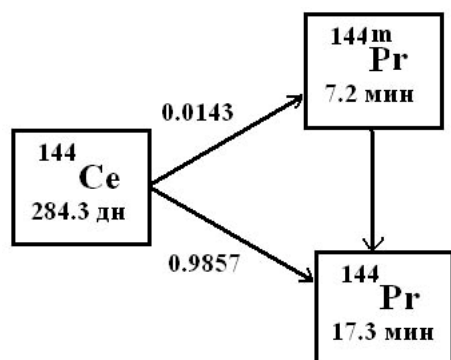


Рис. 2. Цепочка распада  $^{144}\text{Ce}$ , содержащая образование и распад изомерного состояния  $^{144m}\text{Pr}$ .

Существует программный модуль FISPACT [3], который позволяет для исходного нуклидного состава, рассчитать с заданным временным шагом: 1) изменения в активности нуклидного состава, 2) изменение спектрального состава, а также 3) тепловыделение за счет альфа, бета и гамма излучения как продуктов деления, так и актиноидов. При расчете спектрального состава  $\gamma$ -излучения пакет FISPACT использует 24 фиксированных интервала энергий (см. табл.1).

Для расчета прохождения гамма излучения ОЯТ через стены ВКХ либо другие защитные сооружения большой толщины такое разбиение на интервалы мало приемлемо. В диапазоне от 0,4 МэВ до 3 МэВ слишком велика ширина каждого интервала, что приводит к большой погрешности расчетов. Поэтому, в пакете SpectrJAT выполняются расчеты с интервалом не превышающим 50 кэВ.

Таблица 1. Энергетические интервалы  $\gamma$ -излучения, используемые пакетом FISPACT

№ интервала	1	2	3	4	5	6	7	8
Интервал, МэВ	0-0,01	0,01-0,02	0,02-0,05	0,05-0,1	0,1-0,2	0,2-0,3	0,3-0,4	0,4-0,6
№ интервала	9	10	11	12	13	14	15	16
Интервал, МэВ	0,6-0,8	0,8-1,0	1,0-1,22	1,22-1,44	1,44-1,66	1,66-2,0	2,0-2,5	2,5-3,0
№ интервала	17	18	19	20	21	22	23	24
Интервал, МэВ	3-4	4-5	5,0-6,5	6,5-8,0	8-10	10-12	12-14	>14

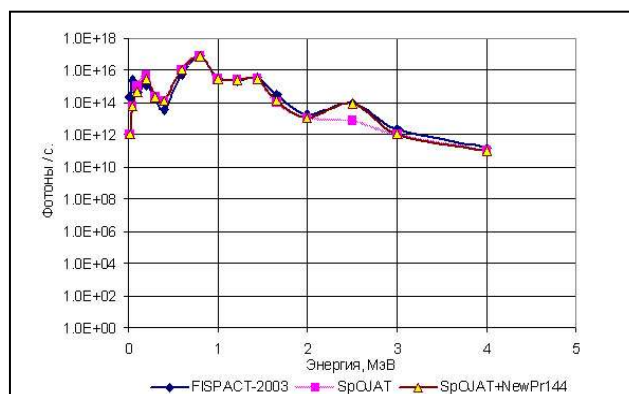


Рис.3. Спектральный состав ОЯТ, рассчитанный в пакетах SpectrOJAT и FISPACT (время выдержки 5 лет).

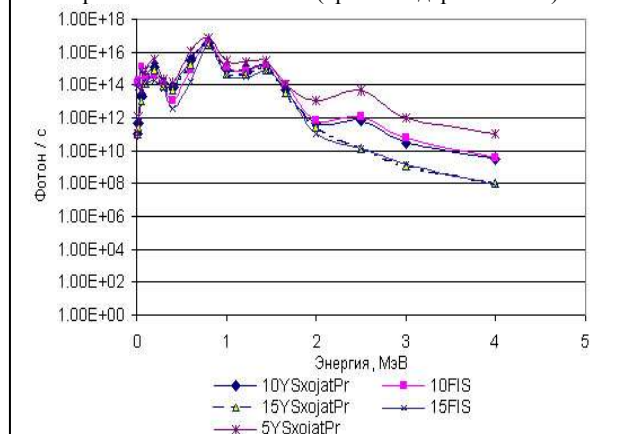


Рис.4. Спектральный состав ОЯТ рассчитанный в пакетах SpectrOJAT и FISPACT для 5, 10 и 15 лет выдержки.

Важным моментом при использовании полученных результатов является их достоверность. Полученные в работе данные сравниваются с результатами, рассчитанными в пакете FISPACT. На рис.3 приведены зависимости числа  $\gamma$ -квантов от энергии, излучаемых 1-й тонной ОЯТ с начальным обогащением 4,4 вес. % U-235, которое прошло 3-х летнюю кампанию и от его среднего выгорания 41,5 МВт-сут./кгU после 5 лет содержания в приреакторном бассейне выдержки. Зависимости рассчитаны с использованием пакетов SpectrOJAT и FISPACT для интервалов энергий, приведенных в таблице 1. Графики на рис. 3 показывают хорошее совпадение результатов для всего диапазона энергий за исключением интервала (2-3) МэВ. Выполненный анализ показал, что причина расхождения результатов кроется в использовании разных баз данных для квантовых выходов. Программный пакет SpectrOJAT использует JEF - 2.2, а пакет FISPACT также в основном JEF - 2.2 (оцененные данные 1994 г.), но для ряда нуклидов JEF - 3 (оцененные данные 1999 г. [4]). При этом, основной вклад в расхождение результатов дает  $^{144}\text{Pr}$ . В таблице 2 приведены энергии и выходы  $\gamma$ -квантов для баз данных JEF - 2.2 и JEF - 3. Приведенные данные показывают, что за последние годы в  $^{144}\text{Pr}$  обнаружено дополнительно 13 линий, при этом высокоэнергетическая линия с энергией 2190 кэВ весьма интенсивна и дает основной вклад в спектр ОЯТ для интервала (2-2.5 МэВ). На рис. 4 показаны спектры, рассчитанные в пакете SpectrOJAT, которые дополнены данными для квантовых выходов  $^{144}\text{Pr}$ , а также спектры, рассчитанные в пакете FISPACT для выдержки в 10 и 15 лет. Для сравнения на этом же рисунке показан спектр для выдержки 5 лет. Данные, приведенные на рис.3,4, показывают, что пакет SpectrOJAT,

дополненный данными из базы JEF – 3, хорошо воспроизводит спектральный состав ОЯТ. Отметим, что характер кривых, приведенных на рис.4, показывает существенное уменьшение количества высокоэнергетических гамма-квантов (энергия больше 1,5 МэВ) при увеличении времени хранения ОЯТ. На рис.5 представлен вид спектральных распределений, рассчитанных для энергетических интервалов = 50 кэВ при помощи пакета SpectrOJAT, который дополнен данными из базы JEF – 3. В такой форме спектры используются для проведения расчетов транспорта гамма-квантов, создаваемых ОЯТ, сквозь защитные барьеры большой толщины.

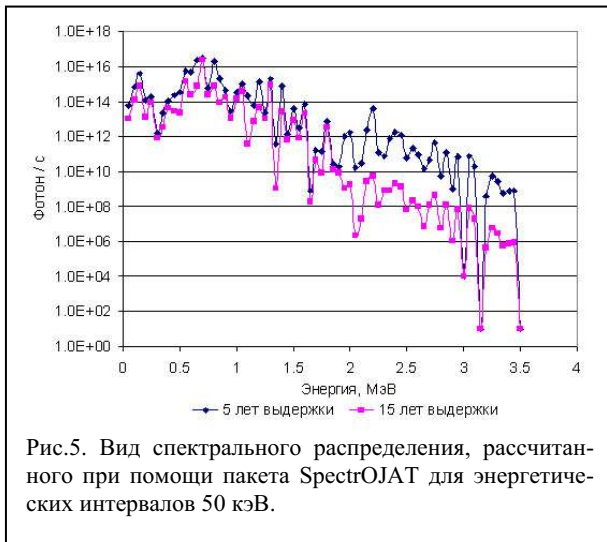


Рис.5. Вид спектрального распределения, рассчитанного при помощи пакета SpectrOJAT для энергетических интервалов 50 кэВ.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе базы данных JEF-2.2 разработан пакет SpectrOJAT, позволяющий для произвольного набора и концентрации радионуклидов рассчитать спектральный состав гамма-квантов и изменение его со временем. Показано хорошее согласие результатов, получаемых SpectrOJAT, с сертифицированным Nuclear Energy Agency пакетом FISPACT во всем диапазоне энергий гамма-квантов. Для отработавшего ядерного топлива, предназначенного для сухого хранения, получены спектральные распределения в виде, необходимом для выполнения расчетов защитных свойств контейнеров хранения. Получены зависимости изменения спектральных распределений от времени при хранении ОЯТ, показан резкий спад высокоэнергетической составляющей спектра при увеличении времени хранения.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. В.М. Колобашкин и др. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива. - М.: Энергоатомиздат, 1983. - 384 с.
2. JEF-2.2 Radioactive Decay Data, OECD Nuclear Energy Agency, JEF Report 13, 1994.
3. FISPACT is the inventory code in the EASY-2003 (European Activation System), PACKAGE-ID: NEA-1564.
4. A.L. Nichols Assessment and evaluation of decay data for EAF – 1999/2000, UKNSF(99). - 1999. – P.130.

### SPECTRAL CHARACTERISTICS OF VVER-1000 SPENT NUCLEAR FUEL WHICH IS INTENDED FOR A DRY STORAGE KEEPING

S.A. Pismenetskiy<sup>1</sup>, V.B. Pyshkin<sup>1</sup>, V.G. Rudychev<sup>1</sup>, Y.V. Rudychev<sup>2</sup>

<sup>1</sup>V.N. Karazin Kharkov National University

<sup>2</sup>National Scientific Center, Kharkov Institute of Physics and Technology

A program code package SpectrOJAT has been worked out on the base of JEF-2.2 fibs, which provides a calculation of gamma-ray spectrum from an arbitrary set of radionuclides. These spectra can be obtained both in a given energy intervals and for the set of fixed average energies for a needed time moment. For the irradiated nuclear fuel which will have to keep in dry depository, a comparison has been made of two spectra – after SpectrOJAT procedure and after FISPACT code application. After JEF-2.2 base modification a good agreement has been obtained in full energy region. The spectra from an irradiated fuel were obtained in a form required for a subsequent calculation of the cask shield properties. A time dependence of obtained spectra has drastic downfall for high energy end.

**KEY WORDS:** irradiated nuclear fuel, spent fuel storage gamma-ray spectrum, VVER-1000, particularities of long-time keeping.

Таблица 2. Квантовые выходы <sup>144</sup>Pt в базах данных JEF-2.2 и JEF-3

База данных JEF-2.2			База данных JEF-3		
№ п/п	Энергия кэВ	Квантовый выход	№ п/п	Энергия кэВ	Квантовый выход
			1	196	9,39E-07
			2	574	1,61E-05
			3	618	9,4E-07
1	624,7	1,13E-05	4	625	1,13E-05
			5	675	2,61E-05
2	696,51	0,013	6	697	0,013415
3	814,1	3,22E-05	7	814	3,16E-05
4	864,45	2,42E-05	8	864	2,33E-05
5	1182	5,37E-07	9	1180	5,37E-06
			10	1380	3,88E-06
6	1388	6,72E-05	11	1390	6,62E-05
			12	1490	0,002819
			13	1560	2,15E-06
			14	1670	2,02E-06
			15	1960	2,68E-07
7	1979	8,72E-06	16	1980	9,14E-06
8	2046	2,68E-06	17	2050	2,81E-06
			18	2070	2,29E-06
			19	2190	0,007123
			20	2370	4,81E-07
			21	2650	1,75E-06