

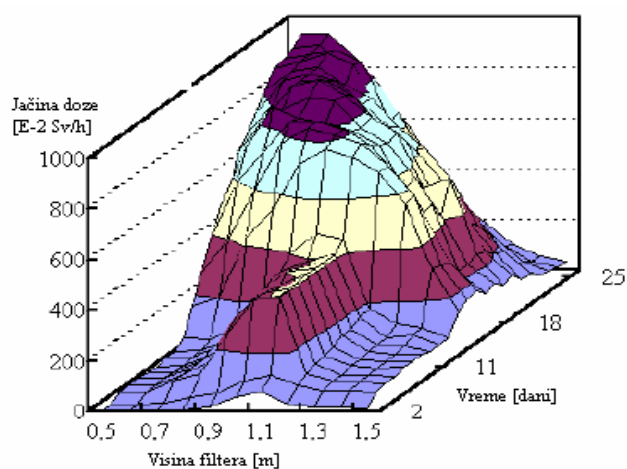
## NUMERIČKA SIMULACIJA JAČINE DOZE GAMA-ZRAČENJA IZ KONTEJNERA ZA SKLADIŠTENJE RADIOAKTIVNOG SORBENTA

Ivana Avramović, Milan Pešić  
Institut za nuklearne nauke "Vinča", Centar NTI

**Sadržaj** – Iskustvo stečeno u Institutu "Vinča" u numeričkim Monte-Karlo simulacijama jačine ambijentalne doze gama-zračenja koje potiče od kontejnera zapremine 200 litara sa kondicioniranim muljem kontaminiranim radioaktivnim nuklidima  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{60}\text{Co}$  korišćeno je za ocenu mogućnosti kondicioniranja i skladištenja sorbenta koji se predlaže za upotrebu radi prečišćavanje vode u bazenima za čuvanje isluženog nuklearnog goriva na reaktoru RA.

### 1. UVOD

Za proces prečišćavanja vode u bazenima za čuvanje isluženog nuklearnog goriva reaktora RA [1] tokom operacije prepakivanja, kada se očekuje velika kontaminacija vode fisionim fragmentima (prvenstveno  $^{137}\text{Cs}$ ), predložena je tehnologija primenjena na Byeloyarskaya NPP u Rusiji [2]. Ova tehnologija se zasniva na procesu uklanjanja nuklida  $^{137}\text{Cs}$  forsiranom cirkulacijom vode ( $30 \text{ m}^3/\text{h}$ ) kroz primarni mehanički filter (na bazi titanijum oksida) i sekundarni filter (sorbent Termoksid 3A ('TA3') na bazi cirkonijum-fosfata), oba potopljena u bazen. Pokazalo se da je ova tehnologija veoma efikasna: specifična zapreminska aktivnost  $^{137}\text{Cs}$  je smanjena 140 puta posle dve nedelje neprekidnog rada. Najveća količina radioaktivnih nuklida je uklonjena u prvih pet dana rada i akumulirana u sorbentu Termoksid 3A. Dva bazena sa isluženim nuklearnim gorivom su čišćena jedan za drugim korišćenjem istog sorbenta (zapremine  $1 \text{ m}^3$ ) u periodu od 25 dana. Uklonjena je ukupna aktivnost u iznosu od 250 TBq. Samo 2,33 TBq aktivnosti je preostalo u vodi bazena. Visoka koncentracija nuklida  $^{137}\text{Cs}$  koja se akumulira u sorbentu generiše veliku jačinu doze (Slika 1). Merenja su vršena na rastojanju od 20 cm od suda sa sorbentom. Ovakvi uslovi zahtevaju odgovarajući tretman sorbenta posle upotrebe da bi se omogućilo skladištenje (eventualno kondicioniranog) sorbenta kao radioaktivnog otpada.



Slika 1. Jačina doze gama zračenja na filteru Termoksid 3A

Ukupna aktivnost koja može biti ispuštena u bazen za čuvanje isluženog goriva reaktora RA tokom operacije prepakivanja procenjena je na 10 TBq [3]. Procenjeno je da

će ta aktivnost biti uklonjena iz bazena korišćenjem oko 100 kg sorbenta Termoksid 3A u sistemu za prečišćavanje vode u periodu od jedne godine. Ova aktivnost je skoro 200 puta manja nego što je to bio slučaj u Byeloyarskaya NPP. Neophodno je razmotriti mogućnosti za odgovarajući tretman nastalog radioaktivnog sorbenta u Institutu "Vinča". U ovom radu je primenjeno iskustvo u numeričkim simulacijama jačine doze gama zračenja koja potiče od kontejnera sa kondicioniranim radioaktivnim muljem u Institutu "Vinča" [4-6] da bi se izvršila procena jačine doze gama zračenja iz vrlo sličnog kontejnera zapremine 200 l sa sorbentom Termoksid 3A, kondicioniranim razvijenim postupkom.

### 2. TEHNOLOGIJA ZA KONDICIONIRANJE I SKLADIŠTENJE RADIOAKTIVNOG MULJA U INSTITUTU "VINČA"

Inspekcijom bazena sa isluženim gorivom reaktora RA u toku 1994. godine, otkrivene su debele korozione i muljevite naslage na zidovima i dnu bazena kao i na kontejnerima sa isluženim gorivom. Uzorci vode i mulja sa različitih lokacija bazena uzeti su 1995 godine da bi se odredio sastav materijala, hemijski parametri vode i aktivnost. Pokazalo se da voda iz bazena ima agresivno koroziono dejstvo na leguru aluminijuma ( $\text{pH} \approx 8.5$ , provodljivost oko  $500 \mu\text{S}/\text{cm}$ ) sa specifičnom aktivnošću gama-zračenja oko  $100 \text{ Bq}/\text{cm}^3$  koja potiče od  $^{137}\text{Cs}$ . Uzorci mulja su analizirani u Institutu "Vinča" i Laboratoriji IAEA u Seibersdorf-u u periodu od 1996. do 2006. godine [5-6]. Merenja su potvrdila da aktivnost nuklida  $^{137}\text{Cs}$  u vodi bazena i mulju potiče od curenja fisionih produkata iz aluminijumskih burića koji sadrže ozračene gorivne elemente. Curenje fisionih produkata je posledica oštećenja aluminijumskih košuljica gorivnih elemenata (debljine 1 mm) i zidova aluminijumskih burića usled dejstva korozije.

Ukupna količina mulja uklonjena iz bazena tokom 1995. godine iznosila je oko  $3 \text{ m}^3$ . Na osnovu rezultata merenja urađenih u IAEA tokom 1996. godine, mulj je tretiran kao nisko-radioaktivni otpad. Razvijena je tehnologija [4] za imobilizaciju mulja u kontejnerima napravljenim od metalnih burića zapremine 200 l kondicioniranjem u cementnu matricu. Kontejneri imaju zidove i dno napravljene od betona debljine 7 do 8 cm. Plastična cev (debljina zidova oko 1 cm) nalazi se sa unutrašnje strane cilindričnog betonskog zida. Unutrašnja strana plastične cevi je prekrivena tankim slojem epoksi-smole. Cev i smola služe kao barijera koja treba da spreči curenje radionuklida imobilisanih u cementnu matricu. U tako dizajniranom kontejneru, zapremina koju zauzima radioaktivni otpad iznosi  $(80 \pm 5) \text{ l}$ . Ukupna masa kontejnera sa kondicioniranim muljem iznosi  $(465 \pm 15) \text{ kg}$ . Detaljni opis tehnologije korišćene za uklanjanje mulja iz bazena sa isluženim nuklearnim gorivom, kondicioniranje i skladištenje kontejnera opisano je u [5-6]. Četrdest kontejnera sa imobilisanim muljem je proizvedeno i uskladišteno na privremenom skladištu RAO u Institutu "Vinča" tokom 1996. godine.

### 3. NUMERIČKA SIMULACIJA JAČINE DOZE IZ KONTEJNERA SA RADIOAKTIVNIM MULJEM

Razvijen je trodimenzioni model kontejnera za skladištenje, napunjenog mešavinom mulja i cementa, na osnovu poznate geometrije i sastava materijala [5-6]. Ovaj model je korišćen u simulaciji pomoću programa MCNP4B [7]. Rezultati prikazani u [6] nisu bili u najboljoj saglasnosti sa rezultatima koji su dobijeni merenjima (M) u blizini kontejnera ili uzorka mešavine mulj-cement ("kocka"). Specifična aktivnost nuklida  $^{137}\text{Cs}$  je merena u različitim uzorcima mulja ("vlažni" i "suvi") i bila je u intervalu od 1.8 kBq/mL za "vlažni" mulj, preko 25 kBq/g za "suvi" do 250 kBq/g za "jako suvi" mulj. Novo određivanje težinskih frakcija za "100% suv" mulj urađeno je u periodu 2002-2006. Novi proračuni izvedeni pomoću koda MCNP5 dali su mnogo prihvatljivije rezultate numeričkih simulacija (C) za jačinu doze gama zračenja u funkciji aktivnosti izvora gama-zračenja u kondicioniranom mulju [6, 8]. Rezultati novih proračuna (nesigurnost <10%) su prikazani u Tabeli 1.

Tabela 1. Poređenje izmerenih vrednosti i proračuna

Geometrija	Izvor	Jačina doze [ $\mu\text{Sv/h}$ ]			
		Gornja površina		Bočna strana	
		C	M	C	M
Kocka	[6]			9,0	8 -10
	[8]			12,1	
Kontejner	[6]	46,6	50-60	63,3	80
	[8]	67,5	- 6060	92,3	

### 4. NUMERIČKA SIMULACIJA JAČINE DOZE IZ KONTEJNERA SA RADIOAKTIVNIM SORBENTOM TERMOKSID 3A

Po svom hemijskom sastavu, sorbent Termoksid 3A je fosfat cirkonijuma i njegova hemijska formula je [2]:



gde je  $P/\text{Zr}=1.8$  i  $x+y=1$ .

Kao prvi korak u ovoj analizi, razmatrana je mogućnost skladištenja oko 92 kg nekondicioniranog Termoksid 3A sorbenta u betonskom kontejneru korisne zapremine 88 L. U ovom slučaju jačina doze na bočnoj površini kontejnera je neprihvatljivo visoka, oko 1 Sv/h.

Potom je pretpostavljeno da se za kondicioniranje upotrebljenog sorbenta Termoksid 3A može upotrebiti ista tehnologija kao kod tretmana mulja iz bazena. Mešanjem 35,36 kg sorbenta sa 90 kg Portland cementa i 8,42 L vode u slobodnoj zapremini od 84,2 L u betonskom kontejneru od 200 L dobiće se smeša čiji sastav je dat u Tabeli 2.

Tabela 2. Osobine smeše Termoksid 3A, vode i cementa

Materijal	Odnos zapremina	m [kg]	$\rho$ [ $\text{g/cm}^3$ ]	V [l]
TA3	0,4000	35,36	1,05	33,68
Cement	0,5000	90,00	2,10	42,10
voda	0,1000	8,42	1,00	8,42
<b>Ukupno</b>	<b>1,0000</b>	<b>133,78</b>	<b>1,57</b>	<b>84,19</b>

Ukoliko se pretpostavi da je  $x=0.5$  i da vlažnost sorbenta iznosi 33%, faktor  $n$  u hemijskoj formuli (1) imaće vrednost

8.1. U tom slučaju, sadržaj nuklida u smeši Termoksid 3A, vode i cementa je dat u Tabeli 3. Gustine nuklida ostalih materijala koji su korišćeni u proračunu dat je u Tabeli 4. Horizontalni i vertikalni preseki olovno-betonskog kontejnera sa kondicioniranim sorbentom dati su na Slikama 2 i 3.

Tabela 3. Sadržaj nuklida u smeši

Nuklid	$N_{\text{atoma}}$ [ $10^{24} \text{cm}^{-3}$ ]	Komponenta
H	$8,1909 \cdot 10^{-03}$	$\text{H}_2\text{O} + \text{TA3}$
O	$2,8946 \cdot 10^{-02}$	$\text{TA3} + \text{H}_2\text{O} + \text{Cement}$
Na	$5,4094 \cdot 10^{-04}$	TA3
Mg	$3,1377 \cdot 10^{-04}$	Cement
Al	$9,9226 \cdot 10^{-04}$	Cement
Si	$2,4217 \cdot 10^{-03}$	Cement
P	$1,0819 \cdot 10^{-03}$	TA3
Ca	$7,1038 \cdot 10^{-03}$	Cement
Fe	$3,1678 \cdot 10^{-04}$	Cement
Zr	$6,0105 \cdot 10^{-04}$	TA3

Tabela 4. Sastav ostalih materijala

Nuklid	$N_{\text{atoma}}$ [ $10^{24} \text{cm}^{-3}$ ]	Materijal
H	0,01374	Beton, $\rho = 2,3 \text{ g/cm}^3$
O	0,04606	
Si	0,01662	
Al	0,00175	
Na	0,00175	
Ca	0,00152	
Fe	0,00035	Plastična cev, $\rho = 1,65 \text{ g/cm}^3$
H	0,04771	
C	0,03180	
Cl	0,01590	Metalno bure, $\rho = 7,874 \text{ g/cm}^3$
Fe	0,08491	
Pb	0,03302	Olovo, $\rho = 11,36 \text{ g/cm}^3$

Numerička simulacija je vršena sa 10 miliona istorija gama zraka iz izvora i za nekoliko debljina sloja olova pri čemu je ukupna debljina sloja betona i olova bila konstantna

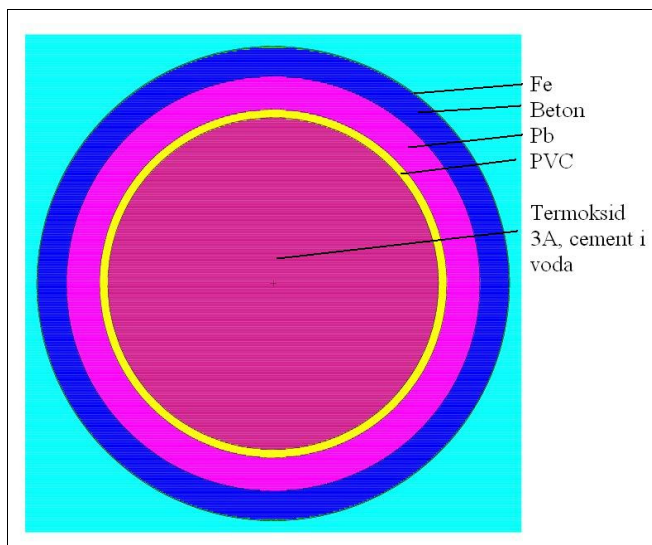
Ako se uzme u obzir da maksimalna aktivnost nuklida  $^{137}\text{Cs}$  koja će biti apsorbovana u 100 kg sorbenta u vodi bazena sa isluženim nuklearnim gorivom iznosi  $10^{13} \text{ Bq}$  u toku jedne godine rada, jačina izvora gama zračenja iz 35,36 kg sorbenta iznosi  $2,87 \cdot 10^{12}$  gama-kvanata u sekundi.

Rezultati numeričke simulacije jačine doze gama zračenja (nesigurnost <10%) iz betonsko-olovnog kontejnera sa radioaktivnim sorbentom, u zavisnosti od debljine sloja olova, dati su u Tabeli 5. Može se zaključiti da pored kontejnera koji je u potpunosti napravljen od olova, uslov da jačina doze na kontaktu sa kontejnerom ne prelazi 2 mSv/h [9] može zadovoljiti kontejner koji u sebi sadrži unutrašnju olovnu zaštitu debljine 4 cm i spoljašnji betonski sloj 3,5 cm.

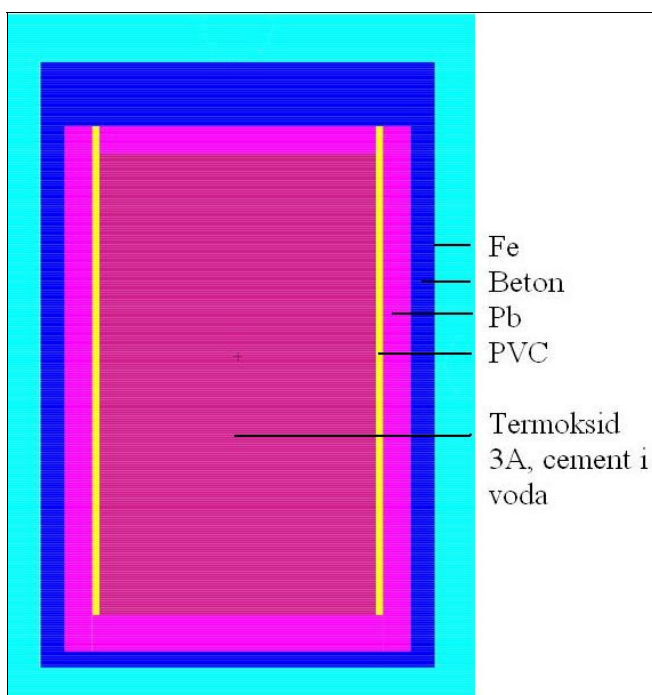
Kako su debljine betona na dnu i vrhu kontejnera različite, izvršena je dodatna simulacija jačine doze na dnu kontejnera. Dobijeno je da jačina doza na dnu kontejnera sa

4 cm olovne zaštite iznosi 3,5 mSv/h što ne zadovoljava kriterijum za siguran transport i čuvanje kontejnera, pa je proračun ponovljen uz povećanje debljine olova na dnu. Rezultati su prikazani u Tabeli 6.

Kontejner koji ima zaštitu od 5 cm olova na dnu i 4 cm bočno i na vrhu, u potpunosti zadovoljava kriterijum vezan za jačinu doze. Numeričkom simulacijom je takodje dobijeno da energija koja se deponuje apsorpciom zračenja u toku jedne sekunde u ovakvom olovno-betonskom kontejneru sa kondicioniranim sorbentom iznosi 0,3 J (nesigurnost <10%), što odgovara termičkoj snazi od 1,5 W/m<sup>3</sup>. Težina ovakvog kontejnera iznosi 973 kg.



Slika 2. Horizontalni presek kontejnera



Slika 3. Vertikalni presek kontejnera

Tabela 5. Rezultati numeričke simulacije

Olovna zaštita	Jačina doze [mSv/h]	
	Bočna strana	Vrh bureta
nema, beton 7,5 cm	249	190
1cm dno 1cm radijalno	54,4	165
2cm dno 2cm radijalno 3cm vrh	16,4	5,65
3cm dno 3cm radijalno 3cm vrh	5,26	5,65
4cm dno 4cm radijalno 4cm vrh	1,68	1,91
7.5 cm (u potpunosti napravljen od olova)	21,7 10 <sup>-3</sup>	37,9 10 <sup>-6</sup>

Tabela 6. Jačina doze na dnu kontejnera

Olovna zaštita	Jačina doze [mSv/h]		
	Vrh bureta	Bočna strana	Dno bureta
4cm dno 4cm radijalno 4cm vrh	1,90	1,60	3,51
5cm dno 4cm radijalno 4cm vrh	1,83	1,53	1,39

## 5. ZAKLJUČAK

Na osnovu obavljenih numeričkih simulacija može se zaključiti da kontejner sa betonskom zaštitom debljine 3.5 cm i olovnom zaštitom debljine 4 cm radijalno i na vrhu i 5 cm na dnu u potpunosti zadovoljava transportni kriterijum vezan za jačinu doze. Praktična primena ovakvog kontejnera za skladištenje upotrebljenog sorbenta treba da bude predmet budućih analiza.

## LITERATURA

- [1] M. V. Mataušek, Z. Vukadin, S. Pavlović, T. Maksin, Z. Idjaković, N. Marinković, "Detection of fission products release in the reactor RA spent fuel storage pool," in *Proc. Annual Meeting on Nuclear Technology*, pp. 415-418, Aachen, Germany, 1997.
- [2] ZAO PNF "Termoksid & Byeloyarskaya AES", "Water cleaning system in storage basins of the 1<sup>st</sup> and 2<sup>nd</sup> block of the Byeloyarskaya NPP using radiation resistant inorganic sorbent Termoksid-3A", (in Russian), Termoksid research 2000/1, pp. 1-10, 2000.
- [3] "Концепция вывоза ОЯТ Исследовательского реактора РА", draft, ИПФ «Сосны», Димитровград, Россия, стр. 1-155, 2007.
- [4] I. Plečaš, S. Pavlović, "Development of concrete composition in radioactive waste management", *Proc. 6th Int. Conf. Radioactive waste management and*

*Environmental Remediation ICEM '97*, pp. 565-566, Singapore, October 12-16, 1997.

- [5] M. Pešić, I. Plećaš, R. Pavlović, S. Pavlović, M. Šokčić-Kostić, "An attempt to estimate gamma-dose rate from radioactive waste storage cask", Proc. 5th Int. Symp. KONTC 2001, (28-30 Maerz 2001), pp. 754-762, KTG, Berlin, Deutschland, 2001.
- [6] M. Pešić, I. Plećaš, R. Pavlović, S. Pavlović, "Calculation of gamma-ray dose rate from storage cask with radioactive sludge" Proc. 4th YUNSC 2002, Belgrade, (September 30 – October 4, 2002), CD ROM, pp. 277-284, 2003.
- [7] J.F. Briesmeister (ed.), "MCNP<sup>TM</sup> – A General Monte Carlo N-particle transport code", version 4B, LA-12625-M, LANL, Los Alamos, NM, USA, 1997.
- [8] M. Pešić, T. Maksin, G. Jordanov, R. Dobrijević, Z. Idjaković, "Study of corrosion of aluminium alloys of nuclear purity in ordinary water", Part I: Nuclear Technology & Radiation protection, Vol. XIX, No. 2,

pp. 77-93 (2004), Part II: Nuclear Technology & Radiation protection, Vol. XX, No. 2, pp. 45-60 (2005)

- [9] Safety Standards Series No. TS-R-1, Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, Safety Requirements, 2005 Edition, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2005

**Abstract** – Experience gained in the Vinča Institute in Monte Carlo numerical simulations of ambient dose equivalent rate of gamma-rays from 200 L storage cask with conditioned sludge contaminated by <sup>137</sup>Cs and <sup>60</sup>Co nuclides is used for estimation of application of the same conditioning process and storage of contaminated resins, considered to be used for purification of water in the spent fuel storage pool of the RA research reactor.

**NUMERIC SIMULATION OF GAMMA-RAY DOSE RATE FROM STORAGE CASK WITH RADIOACTIVE RESIN**

Ivana Avramović, Milan Pešić