

EKSPERIMENTALNA VERIFIKACIJA METODOLOGIJE ZA ODREĐIVANJE JAČINE DOZE GAMA ZRAČENJA U OKOLINI KONTEJNERA SA ISLUŽENIM GORIVOM REAKTORA RA

Miodrag Milošević, Stevo Cupać, Milan Pešić
Institut za nuklearne nauke Vinča, NTI-150, P.P. 522, 11001 Beograd

Sadržaj - U radu je predstavljena metodologija pripremljena za potrebe određivanja jačine ekvivalentne doze gama zračenja u okolini postojećih kontejnera sa isluženim gorivom reaktora RA u Institutu u Vinči i prikazana je njena eksperimentalna verifikacija u polju gama zračenja u hali reaktora RA oko tehnološkog kanala sa isluženim gorivom izvučenog iz čeličnog kontejnera broj 275. Metodologija je zasnovana na postojećoj arhivi o stepenu izgaranja isluženog goriva reaktora RA, na metodama i modelima za određivanje izvora gama zračenja iz isluženog goriva razvijenim u Institutu u Vinči, i postojećim Monte Karlo programima za numeričke simulacije raspodele jačine ekvivalentne doze gama zračenja.

1. UVOD

U okviru projekta kojim treba da se izvrše pripreme za transport isluženog nuklearnog goriva sa reaktora RA [1] iz Instituta u Vinči do postrojenja za preradu ovog goriva u Rusiji, obezbeđenje radijacione i nuklearne sigurnosti tokom operacija rukovanja isluženim nuklearnim gorivom predstavlja strateški važan zadatak.

Ovaj rad ima za cilj da predstavi metodologiju pripremljenu u Institutu u Vinči za potrebe osiguranja radijacione sigurnosti tokom rukovanja isluženim gorivnim elementima iz eksploatacije reaktora RA i opiše eksperiment izveden u hali reaktora RA za potrebe verifikacije predložene metodologije. Rad sadrži kratke prikaze: postojeće arhive o stepenu izgaranja isluženog goriva reaktora RA; razvijenih metoda i modela za određivanje izvora gama zračenja u zavisnosti od izgaranja i vremena hlađenja isluženog goriva; izabranih Monte Karlo računarskih programa za numeričke simulacije raspodele jačine ekvivalentne doze gama zračenja u okolini kontejnera sa isluženim gorivom; osnove eksperimentalne verifikacije i poređenja izmerenih i izračunatih vrednosti jačine ekvivalentne doze gama zračenja.

2. METODOLOGIJA ZA ODREĐIVANJE JAČINE EKVALENTNE DOZE GAMA ZRAČENJA

Osnovnu karakteristiku pripremljene metodologije u Institutu u Vinči predstavlja orijentacija na primenu Monte Karlo metoda u svim fazama vezanim za određivanje izgaranja goriva, određivanje izvora zračenja i analize radijacione sigurnosti. Sa druge strane, istovremene potrebe za izborom radnih parametara opreme za kontrolu i obezbeđenje radijacione sigurnosti rukovanja isluženim gorivom, bile su razlog da se u ovoj fazi rada izvrši opredeljenje za korišćenje postojećih arhiva o stepenu

izgaranja goriva u jezgru reaktora RA.

2.1. Izgaranje goriva u reaktoru RA

Postojeća arhiva [2] o istoriji korišćenja i stepenu izgaranja isluženog goriva u jezgrima reaktora RA obuhvata samo isluženo metalno gorivo početnog obogaćenja od 2% ^{235}U . U ovoj arhivi, rezultati izgaranja svakog gorivnog elementa (izraženi u $\text{MWd}\cdot\text{t}^{-1}$) dobijeni su:

a) na osnovu podataka o pozicijama gorivnih elemenata i efektivnim vremenima zadržavanja u jezgrima reaktora RA na nominalnoj snazi od 6,5 MW, odnosno na snagama pri kojima je gustina neutronskog fluksa, merena pomoću jonizacionih komora u stalnim pozicijama u vodenom reflektoru, bila ista;

b) uvedenog uprošćenog modela sa nepromenljivim vrednostima gustine fluksa termičkih neutrona u 6 radijalnih i 11 aksijalnih pozicija za sva jezgra sa gorivom početnog obogaćenja od 2% ^{235}U u kojima nije vršeno aksijalno izmeštanje goriva (ukupno 3 jezgra) i sva jezgra u kojima je korišćen režim rada sa aksijalnim izmeštanjem gorivnih elemenata (ukupno 14 jezgara sa gorivom početnog obogaćenja od 2% ^{235}U) i 29 jezgara sa mešanim gorivom (početnog obogaćenja od 2% ^{235}U i od 80% ^{235}U), pri čemu su vrednosti gustine neutronskog fluksa izabrane na osnovu rezultata apsolutnih merenja aktivnosti folija u vertikalnim eksperimentalnim kanalima i rezultata difuzionih proračuna raspodele gustine fluksa termičkih neutrona u jedno-dimenzionalnim (1D) radijalnim i aksijalnim modelima reaktora RA; i

c) odabranih parametara Westcott-ovog modela [3] za efektivne mikroskopske neutronske preseke za nuklide uranijuma i plutonijuma.

Poređenja rezultata dobijenih pomoću opisanog uprošćenog modela sa rezultatima izvedenim obradom energetskog spektra gama zračenja iz ukupno 18 isluženih gorivnih elemenata pomoću poluprovodničkog Ge detektora pokazala su [4]:

a) da se za tehnološke kanale u kojima nije vršeno aksijalno izmeštanje gorivnih elemenata, rezultati za srednje izgaranje dobro slažu (odstupanja su manja od $\pm 5\%$), s tim da se maksimalna odstupanja uprošćenog modela (do +25%) dobijaju za gorivne elemente na vrhu tehnološkog kanala (odnosno u zoni delovanja upravljačkih šipki reaktora RA); i

b) da su maksimalna odstupanja kod tehnoloških kanala kod kojih je vršeno aksijalno izmeštanje gorivnih elemenata, srazmerno veća (odnosno uprošćeni model daje izgaranja koja su veća za +25%), kako za srednje izgaranje po tehnološkom kanalu tako i za pojedinačne gorivne elemente.

Da bi se obezbedili tačniji podaci o izgaranju onih gorivnih elemenata koji su u jezgru reaktora RA bili blizu upravljačkih šipki, i pre svega da bi se odredili podaci o

stepenu izgaranja goriva sa početnim obogaćenjem od 80% ^{235}U , pripremljena je proširena verzija postojeće metodologije SAS2H/KENO-V.a [5]. Suština ove metodologije je u razdvajanju problema izgaranja goriva u 3D modelima nuklearnih reaktora sa većim brojem nodova (zona sa gorivom) na dva nezavisna problema. U prvom se određuje raspodela fisione snage u detaljnom 3D modelu jezgra reaktora pomoću višegrupnog Monte Karlo programa KENO-V.a [6], a u drugom se dobijena raspodela snage koristi u 1D modelima za određivanje energetske raspodele gustine neutronske fluksa i izgaranja goriva u nodovima jezgra reaktora pomoću kontrolnog modula SAS2H [7] iz paketa programa SCALE-4.4a [8]. Ova ideja utemeljena je na rezultatima proračuna, kojima je potvrđeno da se u zonama jezgra čije su dimenzije veće od migracione dužine neutrona u ovim zonama, uspostavljaju asimptotska polja neutrona koja se mogu opisati međusobno razdvojenim analizama.

2.2. Metode određivanja izvora gama zračenja

Potrebe za tačnim (referentnim) rezultatima proračuna izvora gama zračenja u zavisnosti od izgaranja nuklearnog goriva su nametnule primenu Monte Karlo metoda, te se u Institutu u Vinči otpočelo sa korišćenjem paketa programa MOCUP [9]. U ovom paketu programa referentni Monte Karlo program MCNP-4C [10] se koristi za određivanje jednogrupnih neutronske preseke, a referentni program ORIGEN2.1 [11] za proračune izgaranja goriva. Osnovno unapređenje procedure MOCUP u Institutu u Vinči [12] postignuto je zamenom postojećeg modula koji je jednogrupne preseke dobijene programom MCNP-4C za (n,γ) apsorpciju kod nuklida koji sa verovatnoćom $f_{\gamma 1}$ prelaze u metastabilno stanje dodeljivao isključivo osnovnom stanju, dok je za metastabilno stanje preuzimao preseke iz izabrane ORIGEN2.1 biblioteke. Ispravljeni modul sadrži najnovije vrednosti parametra $f_{\gamma 1}$ (koji su preuzeti iz biblioteke programa ORIGEN-S [13]) i izračunati presek za (n,γ) apsorpciju (pomoću programa MCNP-4C) deli na dve frakcije, frakciju $1-f_{\gamma 1}$ za osnovno stanje i frakciju $f_{\gamma 1}$ za metastabilno stanje.

U cilju skraćivanja vremena potrebnog za referentne proračune razvijena je još jedna referentna procedura [12] (pod nazivom KWO2) zasnovana na višegrupnom Monte Karlo programu KENO-V.a, programu ORIGEN2.1 i uvedenim poboljšanjima procedure. Osim uvođenja modela prediktor/korektor za određivanje izgaranja (prediktor do polovine jednog koraka izgaranja, i korektor od početka do kraja tekućeg koraka izgaranja sa jednogrupnim neutronske preseke dobijenim usrednjavanjem za stanje na polovini koraka izgaranja), procedura KWO2 je obezbedila značajno skraćivanje vremena proračuna (za faktor 20 u odnosu na MOCUP).

Da bi obezbedili još jednu proveru, nezavisnu od korišćenja referentnog programa ORIGEN2.1, u trećoj proceduri, zasnovanoj na primeni kontrolnog modula SAS2H, u kome se izgaranje goriva određuje pomoću programa ORIGEN-S, uveden je uprošćeni 1D model složene ćelije jezgra reaktora RA sa 5 zona i izotropnom refleksijom neutrona na spoljašnjoj površini ćelije.

Najvažnije poboljšanje u metodologiji pripremljenoj u Institutu u Vinči postignuto je razvojem pomoćnog računarskog programa, koji polazeći od dobijenih koncentracija aktinida i fisionih produkata sa bilo kojom od tri pomenute procedure i najnovije biblioteke ENSDF [14] priprema diskretne ili višegrupne vrednosti energetskog spektra izvora gama zračenja. Biblioteka ENSDF je izvedena iz ENDF/B-VI.8 odnosno EPDL-97 evaluacije i sadrži podatke o energiji i prinosu gama zračenja koje nastaje radioaktivnim raspadima. Na ovaj način se postiže:

a) otklanjanje neodređenosti koju program ORIGEN2.1 unosi pripisujući gama liniju $^{137\text{m}}\text{Ba}$ energije 661.7 keV (koja reprezentuje više od 95% ukupnog izvora gama zračenja isluženog goriva reaktora RA) unapred izabranoj diskretnoj energiji na 575 keV; i

b) omogućava povećanje tačnosti višegrupnih proračuna zasnovanih na 18 grupnoj energetskoj raspodeli izvora gama zračenja koju obezbeđuje program ORIGEN-S iz paketa programa SCALE-4.4a, uvođenjem većeg broja energetskih grupa (sa 94 energetske grupe se otklanja odstupanje od 25% u jačini ekvivalentne doze gama zračenja koje unose 18 grupni proračuni).

Ostale specifičnosti i detaljan prikaz razvijenih metoda i modela za određivanje izvora gama zračenja u isluženim gorivnim elementima reaktora RA u zavisnosti od izgaranja i vremena hlađenja gorivnih elemenata dati su u Ref. [15].

2.3. Određivanje jačine ekvivalentne doze gama zračenja

Za referentne proračune jačine ekvivalentne doze gama zračenja u okolini kontejnera sa isluženim gorivom reaktora RA izabrani su Monte Karlo program MCNP-4C i biblioteka MCPLIB2 [10] sa kontinualnom reprezentacijom mikroskopskih preseka za fotone u opsegu od 1 keV do 10 MeV (izvedenih na osnovu ENDF/B-IV, odnosno DLC-7E evaluacije), dok je za brže, rutinske analize, izabran 18 grupni kontrolni modul SAS4 [16] iz paketa programa SCALE-4.4a.

3. EKSPERIMENTALNA VERIFIKACIJA

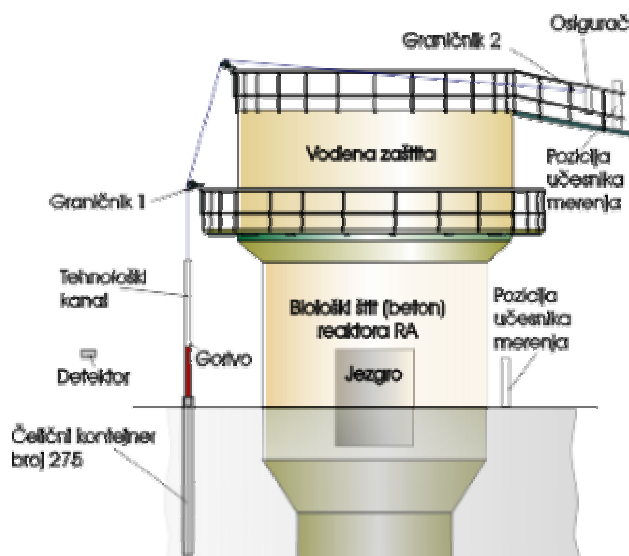
Trenutni raspored čeličnih kontejnera sa isluženim gorivnim elementima u transportnom kanalu u hali reaktora RA i složena procedura premeštanja ovih kontejnera usloveli su da se za eksperimentalnu verifikaciju prikazane metodologije izabere čelični kontejner broj 275. Pokazalo se:

a) da je aktivnost ^{137}Cs u vodi ovog kontejnera ($7.3 \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$) sa 11 isluženih gorivnih elemenata srednjeg izgaranja od $11800 \text{ MWd} \cdot \text{t}^{-1}$ i vremenom hlađenja od 26 godina niža u odnosu na druge čelične kontejnere sa isluženim gorivom (kod kojih dostiže vrednost od $10^6 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$ do $4 \cdot 10^9 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$); i

b) da se u izabranom kontejneru nalaze gorivni elementi koji su tokom aksijalnog izmeštanja imali različite pozicije u različitim jezgrima reaktora RA, što je uslovalo da se eksperimentalnoj verifikaciji pristupi sa poznatom neodređenošću ukupnog izgaranja gorivnih elemenata od 25%.

Izabrani čelični kontejner broj 275 je ručno pomećen kroz transportni kanal ispunjen vodom do pozicije koja je

udaljena 150 cm od biološkog štita reaktora RA, i učvršćen na posebno pripremljenom gvozdenom stolu. Za vrh tehnološkog kanala bila je pričvršćena čelična sajla kojom je preko dva kotura tehnološki kanal ručno podignut uvis, a zatim je drugi kraj čelične sajle zakačen za graničnik 2, čime je eliminisana mogućnost da se podignuti tehnološki kanal otkaçi i vrati slobodnim padom u čelični kontejner. Posebnim držačima obezbeđeno je da čelična sajla ne može da sklizne sa koturova, a pomoću alpinističkog užeta vezanog za čeličnu sajlu i alpinističkog osigurača sprečeno je nekontrolisano vraćanje tehnološkog kanala (slobodnim padom) u čelični kontejner (u slučaju da glavni operator ispusti čeličnu sajlu). Kako se ručnim povlačenjem sajle i vučenjem njenog kraja do graničnika 2, tehnološki kanal ne bi potpuno izvadio iz čeličnog kontejnera, na čeličnoj sajli je bio učvršćen i graničnik 1, kojim je sprečavano podizanje tehnološkog kanala na veću visinu od one pri kojoj dno ovog kanala leži najmanje 33 cm u čeličnom kontejneru, slika 1.



Sl.1. Šematski prikaz položaja tehnološkog kanala sa isluženim gorivnim elementima u čeličnom kontejneru broj 275 i učesnika u eksperimentu u hali reaktora RA

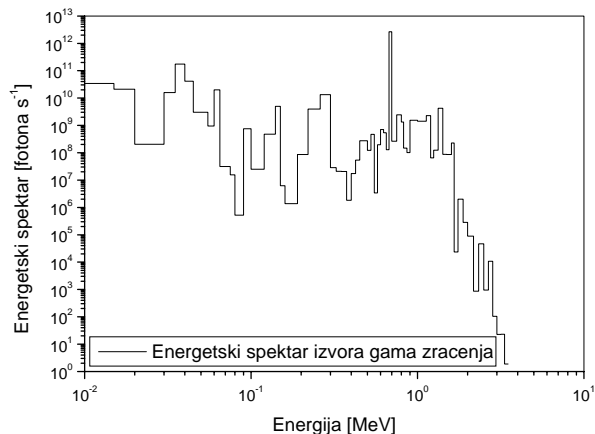
Jačina ekvivalentne doze gama zračenja u okolini podignutog tehnološkog kanala merena je pomoću instrumenta THERMO-EBERLINE FH-40G povezanog kablom sa kompenzovanom GM cevi FHZ-312. Za vreme merenja svi učesnici eksperimenta nalazili su se iza biološkog štita reaktora RA i bila je obezbeđena kontinualna kontrola alfa i beta aktivnosti aerosola u hali reaktora RA.

4. REZULTATI

Primenom opisane metodologije utvrđeno je da ukupni izvor gama zračenja iz 11 isluženih gorivnih elemenata smeštenih u čeličnom kontejneru broj 275 iznosi $3.0143 \cdot 10^{12}$ fotona \cdot s $^{-1}$ i da ima energetska raspodelu prikazanu na slici 2.

Referentni proračuni su urađeni za detaljne geometrijske modele: tehnološkog kanala sa isluženim gorivnim elementima; reaktora RA (sa postojećim jezgrom, reflektorima i biološkim štitom) i hale reaktora RA. Dobijeni rezultati

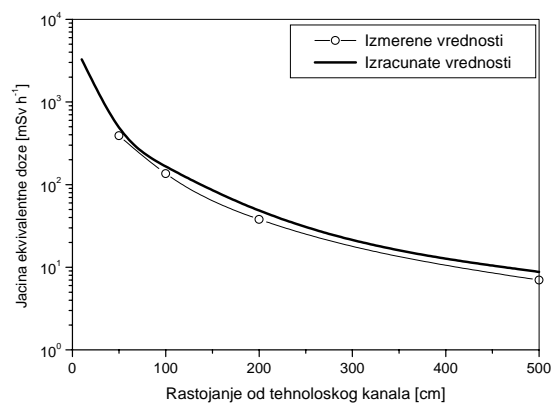
merenja i proračuna jačine doze gama zračenja u funkciji rastojanja od podignutog tehnološkog kanala sa 11 isluženih gorivnih elemenata dati su u tabeli I i na slici 3. Ovi rezultati pokazuju da je odstupanje izračunatih vrednosti u odnosu na izmerene vrednosti jačine ekvivalentne doze gama zračenja ravno neodređenosti izgaranja gorivnih elemenata smeštenih u čeličnom kontejneru broj 275.



Sl. 2. Energetski spektar izvora gama zračenja iz 11 isluženih gorivnih elemenata u tehnološkom kanalu broj 275

Tabela I. Rezultati izmerenih (E) vrednosti¹ i odstupanje izračunatih (C) vrednosti jačine ekvivalentne doze gama zračenja u funkciji rastojanja od tehnološkog kanala broj 275

Rastojanje od tehnološkog kanala broj 275 [cm]	Jačina ekvivalentne doze gama zračenja (detektor FHZ-312) [mSv \cdot h $^{-1}$]	100 \cdot (C/E-1) [%]
50	390 \pm 3%	26
100	136 \pm 3%	22
200	38 \pm 3%	28
500	7 \pm 3%	26



Sl. 3 Rezultati merenja i proračuna jačine ekvivalentne doze gama zračenja u funkciji rastojanja od tehnološkog kanala broj 275

¹ U istom eksperimentu, M. Kovačević i M. Vukčević, saradnici Laboratorije za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, mereci sistemom PTW-DI-4 dobili su 10% niže vrednosti u odnosu na prikazane rezultate ostvarene korišćenjem sistema sa kompenzovanom GM cevi FHZ-312.

5. ZAKLJUČAK

Prikazana poređenja rezultata proračuna i merenja potvrdila su da metodologija određivanja jačine ekvivalentne doze gama zračenja, pripremljena u Institutu u Vinči, može da odgovori potrebama obezbeđenja radijacione sigurnosti tokom rukovanja isluženim gorivom reaktora RA.

ZAHVALNICA

Ovaj rad sadrži rezultate istraživanja koja su finansirana od strane Ministarstva za nauku i zaštitu životne sredine Republike Srbije (na projektu "Transport ozračenog nuklearnog goriva reaktora RA" u okviru "PROGRAMA NUKLEARNE DEKOMISIJE U INSTITUTU U VINČI (VIND)" i koja su sufinansirana od strane Međunarodne agencije za atomsku energiju (IAEA) iz Beča (na projektu IAEA-TC SCG/4/003, "Safe Removal of Spent Fuel of the Vinca RA Research Reactor").

Autori rada zahvaljuju se kolegama iz Instituta za nuklearne nauke u Vinči: R. Martincu i Z. Vukadinu za pomoć u korišćenju arhive o istoriji rada reaktora RA i stepenu izgaranja isluženog goriva; V. Ljubenuvu, N. Dašiću i D. Milićeviću za pruženu pomoć u pripremanju i izvođenju eksperimenta, i M. Ninkoviću i S. Pavloviću za obezbeđenje operativnih dozimetrijskih merenja tokom rukovanja isluženim gorivom.

Prvopotpisani autor rada izražava posebnu zahvalnost profesorima E. Greenspan-u i J. Vujić sa Univerziteta Kalifornija u Berkliju na pruženoj mogućnosti da koristi referentne programe SCALE-4.4a, MCNP-4C i ORIGEN2.1 na njihovim (Linux) računarskim klasterima.

REFERENCE

- [1] "Heavy Water Research Reactor RA," in the *Directory of Nuclear Reactors*, Vol. V, pp.217-222, IAEA, Vienna, Austria, 1964.
- [2] R. Martinc, Z. Vukadin, S. Cupać, "Historical Review of Fuel Depletion and Fuel Burnup Data for the RA Reactor Spent Fuel Elements," Vinča Institute of Nuclear Sciences, November 1986 (in Serbian).
- [3] C.H. Westcott, "The Specification of Neutron Flux and Effective Cross Sections in Reactor Calculations," Report CRRP-662, Atomic Energy of Canada Limited, Chalk River, Ontario, August 1956.
- [4] R. Martinc, V. Bulović, "Reactor RA Fuel Burnup Measurement by Spatial Power Distribution and the Gamma Spectrometry Method," Proceedings of a Symposium Nuclear Safeguards Technology, IAEA, Vienna, October 2-6, 1978, Vol. I, pp. 339-351, 1979.
- [5] M. Milošević, E. Greenspan, J. Vujić, "A SA2H/KENO-V.a Methodology for a Combined 1D/3D Full Core Fuel Burnup Analysis," *Nuclear Technology and Radiation Protection*, Vol. XVI, No. 2, pp. 8-15, 2001.
- [6] L.M. Petrie, N.F. Landers, "KENO-V.a: An Improved Monte Carlo Criticality Program with Supergrouping," NUREG-CR-0200, Rev. 6, Vol. 2, Section F11, Oak Ridge National Laboratory, March 2000.

- [7] O.W. Hermann, C.V. Parks, "SAS2H: A Coupled One - Dimensional Depletion and Shielding Analysis Module," NUREG-CR-0200, Rev. 6, Vol. 1, Section 2, Oak Ridge National Laboratory, March 2000.
- [8] "SCALE-4.4a: A Modular Code System for Performing Standardised Computer Analyses for Licensing Evaluation," NUREG-CR-0200, Rev.6, Oak Ridge National Laboratory, March 2000.
- [9] R.L. Moore, B. Schnitzler, C. Wemple, R. Babcock, D. Wessel, "MOCUP: MCNP-ORIGEN2 Coupled Utility Program," INEL-95/0523, Idaho National Engineering Laboratory, September 1995.
- [10] J.F. Briesmeister, Editor, "MCNPTM – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C," LA-13709-M Report, Los Alamos National Laboratory, April 2000.
- [11] A.G. Croff, "A User's Manual for the ORIGEN2.1 Computer Code," ORNL/TM-7175, Oak Ridge National Laboratory, July 1980.
- [12] M. Milošević, E. Greenspan, J. Vujić, "Monte Carlo with Fuel Burnup Method for the ENHS Benchmark Calculations," *Nuclear Technology and Radiation Protection*, Vol. XVIII, No. 2, pp. 3-11, 2003.
- [13] O.W. Hermann and R.M. Westfall, "ORIGEN-S: SCALE System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms," NUREG/CR-0200, Rev. 6, Vol. 2, Section F7, Oak Ridge National Laboratory (March 2000).
- [14] J.K. Tuli, "Evaluated Nuclear Structure Data File," BNL-NCS-51655-01/02 Rev., National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, February 2001.
- [15] M. Milošević, "Photon Source and Shielding Studies Related to the Spent Fuel Storage of the RA Reactor," The International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, RERTR-2004, IAEA, Vienna, November 7-12, 2004.
- [16] J.S. Tang, M.B. Emmett, "SAS4: a Monte Carlo Cask Shielding Analysis Module Using an Automated Biasing Procedure," NUREG-CR-0200, Rev. 6, Vol. 1, Section S4, Oak Ridge National Laboratory, March 2000.

Abstract – The methodology for equivalent gamma dose rate determination on the outer surface of existing containers with the spent fuel elements of the RA reactor is briefly summarised, and experimental verification of this methodology in the field of gamma rays near the aluminium channel with spent fuel elements lifted from the stainless steel containers no. 275 in the RA reactor hall is presented. The proposed methodology is founded on: the existing fuel burnup data base; methods and models for the photon source determination in the RA reactor spent fuel elements developed in the Vinča Institute, and validated Monte Carlo codes for the equivalent gamma dose rate calculations.

EXPERIMENTAL VERIFICATION OF METHODS FOR GAMMA DOSE RATE CALCULATIONS IN THE VICINITY OF CONTAINERS WITH THE RA REACTOR SPENT FUEL ELEMENTS

Miodrag Milošević, Stevo Cupać, Milan Pešić