

**ЭНЕРГЕТИКА, ТЕПЛО- И МАССОБМЕН**  
**POWER ENGINEERING, HEAT AND MASS TRANSFER**

УДК 621.039.5

Поступила в редакцию 23.11.2015

Received 23.11.2015

**Л. И. Сальников, Н. М. Днепровская, И. Е. Рубин, И. А. Сальникова, Н. А. Тетерева**

*Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны  
Национальной академии наук Беларуси, Минск, Беларусь*

**ОЦЕНКА НАВЕДЕННОЙ АКТИВНОСТИ В ОБЛУЧАЕМЫХ МАТЕРИАЛАХ  
ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ ОТРАБОТАВШЕГО ТОПЛИВА РЕАКТОРА ВВЭР-1200  
В РАДИАЦИОННЫХ ТЕХНОЛОГИЯХ И ПУТИ ЕЕ ОСЛАБЛЕНИЯ**

Обосновывается техническая возможность использования отработавшего ядерного топлива реактора ВВЭР-1200 в качестве источника гамма-излучения в радиационных технологиях, не требующих больших поглощенных доз. Для определения мощности поглощенной дозы в облучаемых материалах от отработавшей тепловыделяющей сборки (ОТВС) применена программа EGSnrc, представляющая систему компьютерных кодов, которая образует универсальный пакет для моделирования методом Монте-Карло связанного переноса электронов и  $\gamma$ -квантов применительно к энергиям выше нескольких килоэлектронвольт. Предложена конструкция радиационной установки, в которой облучатель на основе ОТВС или составленный из ряда твэлов, находящийся на дне бассейна, для облучения может подниматься как выше уровня воды, так и при необходимости оставаться под ее поверхностью. При этом слой воды между облучателем и облучаемым материалом играет роль экрана, ослабляющего наведенную нейтронную активность до безопасного уровня. В некоторых случаях уменьшить толщину слоя воды позволяет растворенная в воде борная кислота. Представлены результаты оценки времени облучения материалов и толщины экрана.

*Ключевые слова:* реактор ВВЭР, отработавшие тепловыделяющие сборки (ОТВС), наведенная активность, источник гамма-излучения, коэффициенты выноса, мощность дозы, конструкция радиационной установки, защитные экраны, ядерные реакции.

**L.I. Salnikov, N.M. Dneprovskaya, I.E. Rubin, I.A. Salnikova, N.A. Tetereva**

*Joint Institute for Power and Nuclear Research – Sosny of the National Academy of Sciences of Belarus, Minsk, Belarus*

**INDUCED ACTIVITY ESTIMATE IN IRRADIATED MATERIALS WHEN USING VVER-1200 SPENT FUEL  
FOR RADIOTECHNOLOGY AND WAYS OF ITS ATTENUATION**

Technical ability to use the VVER-1200 spent nuclear fuel as a source of  $\gamma$ -radiation to solve radiation technology problems is substantiated. The technology area for these sources is limited to the problems which do not require large absorbed doses. EGSnrc program is used to determine the absorbed dose in irradiated materials from the spent fuel assemblies (SFA). This program is a computer code system, which forms a versatile package for simulation by Monte Carlo method the bound transfer of electrons and gamma-rays with energy above a few keV. The design of the radiation installation with the irradiator based on the SFA or composed of a number of fuel rods is proposed. The irradiator is located on the bottom of the pool and can be raised above the water level, or remain under its surface, if necessary. This layer of water plays a role of the shield and decreases neutron activation of irradiated material to a safe level. In some cases, boric acid dissolved in water allows reduction of the thickness of the water layer. Results of the evaluation of materials irradiation time and the thickness of the water shield are presented.

*Key words:* VVER reactor, spent fuel assemblies (SFA), induced activity,  $\gamma$ -ray source, carrying out coefficients, dose power, design of radiation installations, shield, nuclear reactions.

**Введение.** После ввода в эксплуатацию Белорусской АЭС и перевода ее блоков в режим стационарной годичной перегрузки (через 4–5 лет работы реактора ВВЭР-1200 на номинальной мощности) на площадке АЭС появятся отработавшие тепловыделяющие сборки (ОТВС) со средней глубиной выгорания топлива 55,5 МВт·сут/кгU. Ежегодно количество отработавшего ядер-

ного топлива (ОЯТ) будет увеличиваться на 84 ОТВС. Вследствие большой глубины выгорания топлива в реакторе ВВЭР-1200 каждая ОТВС на момент выгрузки из активной зоны содержит  $130 \text{ г } ^{134}\text{Cs}$  и  $955 \text{ г } ^{137}\text{Cs}$  – основных излучателей  $\gamma$ -квантов; интенсивность источника составляет  $2,8 \cdot 10^{16} \text{ } \gamma\text{-кв./с}$  при средней энергии  $\sim 0,6 \text{ МэВ}$ . После 5-летнего хранения в приреакторном бассейне выдержки интенсивность источника  $\gamma$ -квантов равна  $5,7 \cdot 10^{15} \text{ } \gamma\text{-кв./с}$ , что соответствует активности 150 кКи. Таким образом, открывается принципиальная возможность использования ОТВС реактора ВВЭР-1200 как источника излучения в радиационных технологиях [1].

Однако, в отличие от стандартного кобальтового источника, при использовании ОТВС в качестве облучателей радиационных установок не исключено возникновение наведенной активности в облучаемых материалах вследствие появления радионуклидов в ядерных реакциях, вызванных нейтронами, которые испускаются актинидами выгоревшего топлива. Хотя сопутствующая гамма-излучению нейтронная активность ОТВС после 5-летней выдержки не превышает  $4 \cdot 10^8 \text{ нейтр./с}$  (т. е. на несколько порядков ниже максимально допустимого уровня потока в критических сборках), необходимо подтверждение радиационной безопасности использования ОТВС в радиационных технологиях. С этой целью в данной работе рассчитывается накопление радионуклидов по количеству тех или иных реакций для разных материалов и типов задач радиационной технологии, после чего проводится сравнение с предельно допустимыми концентрациями этих радионуклидов. При необходимости ослабление наведенной в облучаемых материалах активности до безопасного уровня может быть достигнуто путем введения защитного экрана между ОТВС и облучаемым материалом, пропускающего гамма-излучение с большей вероятностью, чем нейтроны. Кроме того, вместо цельной ОТВС, вероятность вылета из которой  $\gamma$ -квантов составляет только 1/5, можно использовать облучатели, в которых твэлы расположены в один ряд и, следовательно, имеют вероятность вылета  $\gamma$ -квантов на одну сторону около 1/2.

**Примеры задач радиационной технологии и составы материалов.** Вследствие больших внешних размеров цельной ОТВС интенсивность потока вылетающих  $\gamma$ -квантов невелика и составляет примерно 10-ю часть интенсивности потока от стандартного кобальтового источника с активностью 200 кКи. Поэтому в данной работе рассматриваются задачи, требующие поглощенной дозы не более 30 кГр:

- 1) 50–500 Гр: предпосевное облучение семян с целью стимулирования всхожести (картофель (100 Гр), зерно (500 Гр));
- 2) 0,25–1,50 кГр: облучение продуктов питания для увеличения срока хранения (яблоки (0,25 кГр), картофель (1 кГр), мясо курицы (1,5 кГр));
- 3) 1–15 кГр: обработка медицинского сырья перед изготовлением лекарств (сухие травы, зерно (5 кГр), крахмал, мука (15 кГр));
- 4) 15–25 кГр: модификация полимерных изделий (полиэтилен);
- 5) 20–30 кГр: стерилизация медицинских изделий однократного применения: иглы инъекционные, хирургические инструменты (сталь); шприцы инъекционные (полиэтилен и сталь); чашки Петри и др. (стекло); одноразовые комплекты медицинского белья (хлопок).

Возможность облучения продуктов питания путем использования ОЯТ реакторов ВВЭР рассматривается в работе [2]. Показано, что необходимая поглощенная доза для рассмотренных продуктов (яблоки и куриное мясо) достигается за несколько часов облучения, причем наведенная нейтронами активность за этот промежуток времени мала и не превышает допустимых стандартов, действующих в США.

В данной работе предлагается конструкция радиационной установки (РУ), показанная на рис. 1. В положении облучателя 1 облучение происходит в воздухе, при необходимости в качестве экрана между облучателем и облучаемым материалом будет находиться слой воды 3. Положение 2 облучателя потребуется, если время выдержки ОЯТ в приреакторном хранилище недостаточно большое и остаточное тепловыделение существенно.

В табл. 1 приведены изотопные составы материалов, рассматриваемых в данной работе. Перечень ядерных реакций, вызываемых нейтронами и приводящих к образованию тех или иных радионуклидов, приведен в табл. 2. Это реакции радиационного захвата ( $n, \gamma$ ), размножения ( $n, 2n$ ), реакции поглощения нейтрона с вылетом протона ( $n, p$ ) или  $\alpha$ -частицы ( $n, \alpha$ ).



Рис. 1. Упрощенная схема предлагаемой радиационной установки: 0 – нерабочее положение облучателя, 1 – облучатель в воздухе, 2 – облучатель в самой верхней части бассейна, 3 – облучатель под поверхностью воды

Fig. 1. Simplified diagram of the proposed radiation installation: 0 – “off” position of the irradiator, 1 – irradiator in the air, 2 – irradiator in the uppermost part of the pool, 3 – irradiator under the water surface

Таблица 1. Весовые доли элементов в облучаемых материалах, %  
Table 1. Weight fraction of elements in the irradiated materials, %

Элемент	Облучаемый материал									
	Яблоко	Картофель	Курица	Мука (зерно)	Крахмал	Полиэтилен	Сталь	Сталь + полиэтилен	Стекло	Хлопок
H	10,3	10,01	9,1	7,05	6,2	14,3		12,518		6,5
C	6,1	9,75	23,3	39,34	44,4	85,7	0,12	75,037		46,0
N		0,33	2,9	1,81						
O	83,5	79,39	57,1	51,253	49,4				46,7	47,5
Na				0,004					11,1	
Mg		0,02	0,1	0,044						
Si		0,01					0,8	0,09968	35,1	
P		0,06	2,5	0,115						
S			0,1	0,16			0,02	0,00249		
Cl				0,024						
K	0,1	0,43	5,0	0,176						
Ca				0,024					7,1	
Cr							18	2,2428		
Mn							2	0,2492		
Fe							68,6	8,5476		
Co							0,5	0,0623		
Ni							9,96	1,2410		

**Допустимые уровни содержания радионуклидов.** Принятые значения предельных содержаний радионуклидов  $A_{нр,l}$  в материалах для разных задач радиационной технологии основаны на референтных уровнях содержания радионуклидов в питьевой воде, представлены в Санитарных нормах и правилах «Требования к радиационной безопасности». Средние за год значения удельной активности радионуклидов в питьевой воде не могут превысить установленных. В указанных Санитарных нормах и правилах референтные уровни представлены не для всех радионуклидов, для части из них приняты минимальные (из всех приведенных) значения.

Таблица 2. Ядерные реакции, приводящие к образованию радионуклидов

Table 2. Nuclear reactions leading to the formation of radionuclides

Радионуклид	Период полураспада	Постоянная распада, 1/с	Реакции образования
$^3\text{H}$	12,3 лет	$1,787\text{e}-9$	$^2\text{H}(n, \gamma)^3\text{H}$
$^{11}\text{C}$	0,340 ч	$5,663\text{e}-4$	$^{12}\text{C}(n, 2n)^{11}\text{C}$
$^{14}\text{C}$	5730 лет	$3,836\text{e}-12$	$^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$ ; $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ ; $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$
$^{22}\text{Na}$	2,60 лет	$8,454\text{e}-9$	$^{23}\text{Na}(n, 2n)^{22}\text{Na}$
$^{24}\text{Na}$	15,0 ч	$1,284\text{e}-5$	$^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ ; $^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$
$^{31}\text{Si}$	2,62 ч	$7,349\text{e}-5$	$^{30}\text{Si}(n, \gamma)^{31}\text{Si}$ ; $^{31}\text{P}(n, p)^{31}\text{Si}$
$^{32}\text{P}$	14,3 сут	$5,610\text{e}-7$	$^{31}\text{P}(n, \gamma)^{32}\text{P}$ ; $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ ; $^{35}\text{Cl}(n, \alpha)^{32}\text{P}$
$^{33}\text{P}$	25,4 сут	$3,158\text{e}-7$	$^{33}\text{S}(n, p)^{33}\text{P}$
$^{35}\text{S}$	87,4 сут	$9,179\text{e}-8$	$^{34}\text{S}(n, \gamma)^{35}\text{S}$ ; $^{35}\text{Cl}(n, p)^{35}\text{S}$
$^{36}\text{Cl}$	$3,01 \cdot 10^5$ лет	$7,302\text{e}-14$	$^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ ; $^{37}\text{Cl}(n, 2n)^{36}\text{Cl}$ ; $^{39}\text{K}(n, \alpha)^{36}\text{Cl}$
$^{38}\text{Cl}$	0,620 ч	$3,105\text{e}-4$	$^{37}\text{Cl}(n, \gamma)^{38}\text{Cl}$ ; $^{41}\text{K}(n, \alpha)^{38}\text{Cl}$
$^{40}\text{K}$	$1,28 \cdot 10^9$ лет	$1,717\text{e}-17$	$^{39}\text{K}(n, \gamma)^{40}\text{K}$ ; $^{41}\text{K}(n, 2n)^{40}\text{K}$ ; $^{40}\text{Ca}(n, p)^{40}\text{K}$
$^{42}\text{K}$	12,4 ч	$1,553\text{e}-5$	$^{41}\text{K}(n, \gamma)^{42}\text{K}$ ; $^{42}\text{Ca}(n, p)^{42}\text{K}$
$^{43}\text{K}$	22,6 ч	$8,520\text{e}-6$	$^{43}\text{Ca}(n, p)^{43}\text{K}$
$^{44}\text{K}$	0,369 ч	$5,218\text{e}-4$	$^{44}\text{Ca}(n, p)^{44}\text{K}$
$^{41}\text{Ca}$	$1,40 \cdot 10^5$ лет	$1,570\text{e}-13$	$^{40}\text{Ca}(n, \gamma)^{41}\text{Ca}$ ; $^{42}\text{Ca}(n, 2n)^{41}\text{Ca}$
$^{45}\text{Ca}$	163 сут	$3,412\text{e}-8$	$^{44}\text{Ca}(n, \gamma)^{45}\text{Ca}$
$^{49}\text{Cr}$	0,702 ч	$2,743\text{e}-4$	$^{50}\text{Cr}(n, 2n)^{49}\text{Cr}$
$^{51}\text{Cr}$	27,7 сут	$2,896\text{e}-7$	$^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$ ; $^{52}\text{Cr}(n, 2n)^{51}\text{Cr}$ ; $^{54}\text{Fe}(n, \alpha)^{51}\text{Cr}$
$^{54}\text{Mn}$	312 сут	$2,571\text{e}-8$	$^{55}\text{Mn}(n, 2n)^{54}\text{Mn}$ ; $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$
$^{56}\text{Mn}$	2,58 ч	$7,463\text{e}-5$	$^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$ ; $^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$
$^{55}\text{Fe}$	2,70 г.	$8,141\text{e}-9$	$^{54}\text{Fe}(n, \gamma)^{55}\text{Fe}$ ; $^{56}\text{Fe}(n, 2n)^{55}\text{Fe}$ ; $^{58}\text{Ni}(n, \alpha)^{55}\text{Fe}$
$^{59}\text{Fe}$	44,5 сут	$1,803\text{e}-7$	$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$ ; $^{59}\text{Co}(n, p)^{59}\text{Fe}$ ; $^{62}\text{Ni}(n, \alpha)^{59}\text{Fe}$
$^{58}\text{Co}$	70,8 сут	$1,133\text{e}-7$	$^{59}\text{Co}(n, 2n)^{58}\text{Co}$ ; $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$
$^{58\text{m}}\text{Co}$	9,15 ч	$2,104\text{e}-5$	$^{59}\text{Co}(n, 2n)^{58\text{m}}\text{Co}$ ; $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58\text{m}}\text{Co}$
$^{60}\text{Co}$	5,27 г.	$4,171\text{e}-9$	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60\text{m}}\text{Co}$ ; $^{60}\text{Ni}(n, p)^{60\text{m}}\text{Co}$
$^{60\text{m}}\text{Co}$	0,174 ч	0,001107	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ ; $^{60}\text{Ni}(n, p)^{60}\text{Co}$
$^{61}\text{Co}$	1,65 ч	$1,167\text{e}-4$	$^{61}\text{Ni}(n, p)^{61}\text{Co}$
$^{62\text{m}}\text{Co}$	0,232 ч	$8,299\text{e}-4$	$^{62}\text{Ni}(n, p)^{62\text{m}}\text{Co}$
$^{57}\text{Ni}$	1,50 сут	$5,348\text{e}-6$	$^{58}\text{Ni}(n, 2n)^{57}\text{Ni}$ ;
$^{59}\text{Ni}$	$7,50 \cdot 10^4$ лет	$2,931\text{e}-13$	$^{58}\text{Ni}(n, \gamma)^{59}\text{Ni}$ ; $^{60}\text{Ni}(n, 2n)^{59}\text{Ni}$
$^{63}\text{Ni}$	96 лет	$2,290\text{e}-10$	$^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$ ; $^{64}\text{Ni}(n, 2n)^{63}\text{Ni}$
$^{65}\text{Ni}$	2,52 ч	$7,641\text{e}-5$	$^{64}\text{Ni}(n, \gamma)^{65}\text{Ni}$

Допустимые значения содержания радионуклидов в рассматриваемых продуктах питания увеличены по сравнению с референтными уровнями содержания радионуклидов в питьевой воде, учитывая, что потребление этих продуктов существенно меньше: например, в яблоках и картофеле – в 3 раза, в мясе курицы – в 10 раз. Принятые максимально допустимые значения содержания радионуклидов после обработки медицинского сырья и облучения семян (крахмал, зерно, мука) превышают соответствующие уровни для воды в 25 раз.

Для модификации полимеров и стерилизации медицинских изделий (сталь, полиэтилен, сталь + полиэтилен, стекло, хлопок) в качестве допустимых значений содержания радионуклидов принимаются уровни изъятия для умеренных количеств (< 1 т) материала без дальнейшего рассмотрения по удельной активности (Санитарные нормы и правила, прил. 4, табл. 1, с. 162).

**Модели расчета переноса  $\gamma$ -квантов и нейтронов.** Для определения мощности поглощенной дозы в облучаемых материалах от ОТВС применена программа EGSnrc [3], представляющая систему компьютерных кодов, которая образует универсальный пакет для моделирования методом Монте-Карло связанного переноса электронов и  $\gamma$ -квантов применительно к энергиям выше нескольких килоэлектронвольт. Все 312 тепловыделяющих элементов и 19 каналов ТВС образуют 11 шестиугольных рядов. Поскольку прямое моделирование переноса  $\gamma$ -квантов внутри ТВС с помощью кода EGSnrc оказывается достаточно сложным, создана упрощенная модель в двумерной ( $r, z$ )-геометрии. В центральной части расчетной области находится гомогенный цилиндр высотой 373 см и радиусом 12 см, моделирующий ОТВС, за ним – кольцевой слой облучаемого материала с внутренним радиусом 30 см и толщиной (в зависимости от плотности) от 15 до 2 см, разбитый равномерно по радиусу на три зоны. Уменьшение толщины слоя облучаемого материала при увеличении плотности позволяет сохранить его «оптическую толщину» (произведение плотности и толщины материала) и тем самым поддерживать неравномерность поглощенной дозы по толщине в заданных пределах: ближняя зона получает дозу примерно вдвое большую, чем дальняя, как и в [2]. При меньших толщинах материалов доза была бы более однородна по объему. В расчетах учитывалось энергетическое распределение рожденных  $\gamma$ -квантов, показанное для различных значений времени выдержки на рис. 2.

В данной работе накопление радионуклидов оценивается нами как произведение четырехгрупповых потоков нейтронов в облучаемых материалах и соответствующих сечений реакций

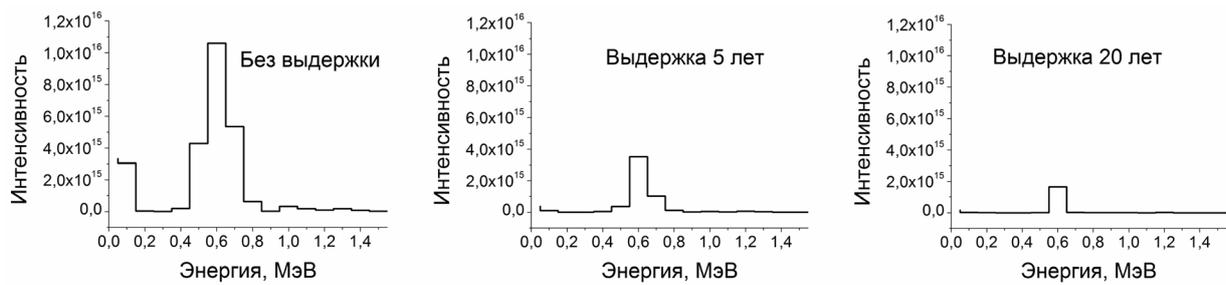


Рис. 2. Энергетический спектр источника  $\gamma$ -квантов  
 Fig. 2. Energy spectrum of the  $\gamma$ -quanta source

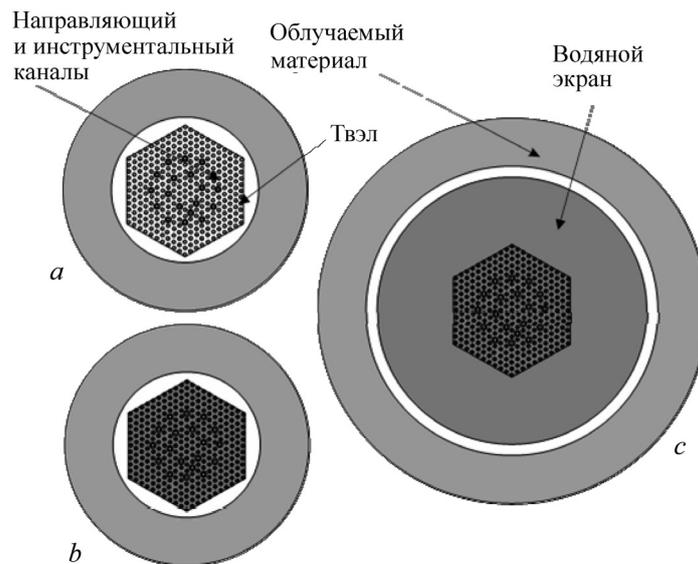


Рис. 3. Модель расчета потока нейтронов в облучаемых материалах по коду MCU-FREE: *a* – ОТВС в воздухе, *b* – в воде только ОТВС, *c* – ОТВС и пространство до облучаемого материала заполнены водой

Fig. 3. Neutron flux calculation model in irradiated materials using code MCU-FREE: *a* – spent fuel assemblies in the air, *b* – only spent fuel assemblies in water, *c* – spent fuel assemblies and space to the irradiated material are filled with water

образования радионуклидов. Распределение плотности потока нейтронов в облучаемых материалах рассчитывалось методом Монте-Карло по коду MCU-FREE, расширенной версии MCURFFI [4]. Геометрия расчетных моделей приведена на рис. 3. Энергетическое распределение нейтронов источника, главным образом обусловленного спонтанными делениями изотопа  $^{244}\text{Cm}$ , мало отличается от спектра вынужденного деления  $^{235}\text{U}$  [5]. Четырехгрупповые сечения реакций определялись с помощью доступных модулей кода NJOI [6].

Величины мощности поглощенной дозы  $d_m$  материалов  $m$  для двух вариантов облучения, когда облучатель и облучаемые материалы находятся в воздухе и когда облучатель и пространство до облучаемого материала заполнено водой, играющей роль защитного экрана, представлены в табл. 3. В качестве примера приводятся данные только для ОТВС после 5-летней выдержки в хранилище.

Таблица 3. Мощности дозы  $d_m$ , Гр/ч, получаемые разными материалами при облучении от одной ОТВС пятилетней выдержки

Table 3. Dose rates  $d_m$ , Gy/h, received by various materials at irradiation from one spent fuel assemblies of five-year endurance

Параметр	Яблоко	Картофель	Курица	Мука (зерно)	Крахмал	Полиэтилен	Сталь	Сталь + полиэтилен	Стекло	Хлопок
Плотность, г/см <sup>3</sup>	0,6	0,6	1,0	0,65	1,5	0,92	7,9	0,27919	2,5	0,55
Толщина зоны, см	5,0	5,0	3,5	4,75	2,5	3,5	0,67	7,5	1,75	5,1
<i>ОТВС в воздухе</i>										
1-я зона	156	157	161	153	160	168	165	152	156	150
2-я зона	111	111	117	110	118	122	121	106	116	108
3-я зона	79	79	82	77	84	87	83	76	82	78
Средняя мощность	112	112	118	110	119	123	122	107	117	109
<i>ОТВС в воде</i>										
1-я зона	52	52	55	51	54	55	67	56	57	50
2-я зона	36	37	39	35	38	39	39	38	39	35
3-я зона	25	25	26	25	27	27	25	26	26	25
Средняя мощность	37	37	39	36	39	39	43	38	40	35

**Зависимость интенсивности излучения от толщины экрана в расчетной модели.** Зависимость интенсивности  $\gamma$ -квантов и нейтронов  $I$  от «оптической толщины» экрана (произведения его плотности и толщины) экспоненциальная [3]:

$$I(x) = I_0 e^{-cx}, \quad (1)$$

где  $I_0$  – интенсивность излучения, падающего на экран,  $\text{с}^{-1}$ ;  $x$  – толщина экрана, см. Данная формула не учитывает особенности предложенной конструкции облучателя (и соответствующих расчетных моделей), когда водяной экран и облучаемые материалы имеют вид цилиндрических слоев, окружающих ОТВС. В такой геометрии с увеличением толщины экрана ослабление излучения происходит не только вследствие поглощения, но и при их «геометрическом растекании». И наоборот, при небольшой толщине экрана можно приблизить облучаемые материалы к облучателю, что приведет к увеличению интенсивности облучения и сокращению необходимого времени облучения. С учетом сказанного зависимость интенсивности излучения от  $x$  для принятой расчетной модели описывается выражением

$$I(x) = I_0 e^{-cx} \frac{R_2}{R_1 + \Delta R + x}. \quad (2)$$

В соответствии с расчетной моделью (когда облучатель – цельная ОТВС), показанной на рис. 3 (при выдержке 20 лет),  $R_1$  – эффективный радиус ОТВС, примерно равный 12 см;  $R_2$  – внутренний радиус слоя облучаемого материала, равный 30 см;  $\Delta R$  – промежуток между слоем воды и облучаемым материалом, принятый равным 3 см.

При поиске времен облучения материалов и (в случае необходимости) оптимальных толщин экрана  $x$  предполагается, что зависимость (2) справедлива и для мощности поглощенной дозы  $d$ , и для характеристики скорости наводимой нейтронами активности  $A$ . Коэффициенты  $c$  определяются следующим образом:

$$c = -\frac{1}{R_2 - R_1} \ln \frac{I(x)}{I_0}. \quad (3)$$

Характеристика суммарной по всем радионуклидам  $l$  скорости наводимой активности  $A$ ,  $1/\text{ч}$ , является указателем степени радиационного воздействия на человека облученного материала для всех категорий лиц (персонал и население) (см. Санитарные нормы и правила):

$$A = \sum_l \frac{A_l}{A_{np,l}}, \quad (4)$$

где  $A_l$ , Бк/(кг·ч), и  $A_{np,l}$  Бк/кг, – соответственно рассчитанная скорость образования и предельно допустимая концентрации радионуклида  $l$  в материале. Величина  $A_l$  определяется из соотношения

$$A_l = 1000 \delta_l \lambda_l / (V \gamma), \quad (5)$$

где  $\delta_l$  – количество образующегося в облучаемом материале ядер радионуклида  $l$  в единицу времени, ядер/ч;  $\lambda_l$  – постоянная распада,  $1/\text{с}$ ;  $V$  и  $\gamma$  – соответственно объем,  $\text{см}^3$ , и плотность,  $\text{г}/\text{см}^3$ , облучаемого материала; 1000 – переводной коэффициент. Значение произведения  $AT < 1$  ( $T$  – время облучения, ч) указывает на безопасность для человека суммарной наведенной активности материала.

Скорость образования радионуклида  $l$  в единицу времени определяется следующим выражением:

$$\delta_l = N \sum_{l'} \rho_{l'} \sum_{i=1}^4 \sigma_{i,l' \rightarrow l} \Phi_i V, \quad (6)$$

где  $\rho_{l'}$  – концентрации исходных ядер  $l'$ , ядер/ $\text{см}^3$ ;  $\sigma_{i,l' \rightarrow l}$  четырехгрупповые сечения реакции образования радионуклида  $l$ ,  $\text{см}^2$ ;  $\Phi_i V$  – четырехгрупповые интегральные по объему облучаемого материала  $V$  потоки, полученные по коду MCU-FREE, нейтр.: $\text{см}/\text{с}$ ;  $N$  – коэффициент нормировки. Значения  $N$  равны  $3600 \cdot 4,6 \cdot 10^8 / 312$ ;  $3600 \cdot 3,8 \cdot 10^8 / 312$  и  $3600 \cdot 2,2 \cdot 10^8 / 312$  для ОТВС выдержки 0, 5 и 20 лет.

Характеристики скорости, наводимой нейтронами активности в материалах для двух типов облучателя при пятилетней выдержке топлива в воздухе и с водяным слоем толщиной 18 см, приведены в табл. 4.

Таблица 4. Характеристики скорости наводимой нейтронами активности в облучаемых материалах  $A_m$ ,  $10^{-3}/\text{ч}$  для ОЯТ с выдержкой в хранилище 5 лет

Table 4. Characteristics of speed of the activity induced by neutrons in the irradiated materials  $A_m$ ,  $10^{-3}/\text{h}$  for spent nuclear fuel with endurance in storage of 5 years

Облучатель	Среда между облучателем и материалом	Материал						
		Яблоко	Картофель	Курица	Мука (зерно)	Сталь	Полиэтилен + сталь	Стекло
Цельная ОТВС	Воздух	3,93	31,1	129	4,74	17,6	58,5	0,0215
	Вода	0,418	3,36	12,6	0,648	25,7	7,67	0,825
Ряд из 13 твэлов	Воздух	0,164	1,30	5,38	0,198	0,733	2,44	0,00090
	Вода	0,0174	0,140	0,525	0,027	1,07	0,320	0,0344

Примечание: для составов, приведенных в табл. 1, скорость наводимой нейтронами активности в крахмале, полиэтилене и хлопке оказывается пренебрежимо малой и в данной таблице не приводится.

Таблица 5. Время облучения и при необходимости толщины экрана (слоя воды) для задач радиационной технологии  
 Table 5. Irradiation time and, if necessary, shield thickness (water layer) for problems of radiation technology

Тип облучателя	Время выдержки ОЯТ, лет	Задачи радиационных технологий / Облучаемые материалы / Принятые дозы, кГр														
		Стимулирование всхожести семян			Увеличение срока хранения продуктов питания			Обработка медицинского сырья			Модифицирование полимеров			Стерилизация медицинских изделий		
		Картофель	Зерно	Яблоко	Картоф.	Курица	Зерно	Крахмал	Мука	Полиэтилен	Сталь	П+С	Стекло	Хлопок		
Цельная ОТВС	0	0,1	0,5	0,25	1,0	1,5	5	15	15	15	15	20	25	25	25	25
	5	7 мин	34 мин	16 мин	1,1 ч	1,6 ч	5,6 ч	17 ч	20 ч	—	—	20 ч	12 сут	1,1 сут	—	1,2 сут
	20	27 мин	2,3 ч	1,1 ч	4,5 ч	14 ч	23 ч	2,8 сут	3,4 сут	—	—	3,4 сут	—	4,5 сут	—	4,8 сут
Ряд из 13 ТВЭЛОВ	0	1,5 ч	7,6 ч	3,7 ч	15 ч	4,6 сут	3,2 сут	8,7 сут	11 сут	—	—	11 сут	—	15 сут	—	16 сут
	5	9 мин	48 мин	23 мин	1,6 ч	2,2 ч	7,9 ч	22 ч	1,2 сут	—	—	1,2 сут	1,5 сут	1,6 сут	—	1,7 сут
	20	38 мин	3,3 ч	1,6 ч	6,4 ч	9,2 ч	1,4 сут	3,8 сут	4,9 сут	—	—	4,9 сут	6,2 сут	6,4 сут	—	7,0 сут
		2,1 ч	10 ч	5,2 ч	21 ч	1,2 сут	4,3 сут	13 сут	16 сут	—	—	16 сут	20 сут	21 сут	2 мес.	23 сут
		—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	9 см	—

Примечания. Верхнее число – время облучения, нижнее – толщина экрана (слоя чистой воды над облучателем).  
 П+С – полиэтилен и сталь (объемные доли стали, полиэтилена и пустоты 0,01944; 0,1366; 0,844).  
 В случаях, когда время облучения превышает 2 мес., результаты оценки не приводятся.

Определение времени облучения (и, если требуется, толщины экрана) начинается с проверки возможности облучения в воздухе при  $x = 0$ . В соответствии с зависимостью (2) мощность поглощенной дозы при минимальном удалении облучаемого материала от облучателя составляет  $2d_{0,m}$ , Гр/ч ( $d_{0,m}$  – мощность дозы, соответствующая нулевой толщине экрана). Тогда время облучения материала  $t$

$$T_{0,m} = \frac{D_m}{2d_{0,m}}, \quad (7)$$

где  $D_m$  – величина дозы, требуемая для материала  $t$ , Гр;  $T_{0,m}$ , – время облучения, ч, при котором обеспечивается получение дозы.

Когда произведение  $2A_{0,m}T_{0,m} < 1$ , допустимый предел не превышает и необходимость в экране отсутствует. Но если  $2A_{0,m}T_{0,m} \geq 1$ , то между облучателем и облучаемым материалом следует расположить экран (в предлагаемой конструкции слой воды толщиной  $x$ ). Минимальное значение толщины экрана  $x_m$  определяется следующим образом:

$$A_{\text{экр.,}m}(x_m)T_{\text{экр.,}m}(x_m) = 1,$$

где

$$A_{\text{экр.,}m}(x_m) = A_{0,m} \exp(-c_n x_m) \frac{R_2}{R_1 + \Delta R + x_m}, \quad d_{\text{экр.,}m}(x_m) = d_{0,m} \exp(-c_\gamma x_m) \frac{R_2}{R_1 + \Delta R + x_m}.$$

**Результаты расчетов.** Результаты оценки времени облучения материалов и, при необходимости, толщины экрана (слоя чистой воды над облучателем) приведены в табл. 5. Поскольку время облучения пропорционально требуемой поглощенной дозе, то наименьшее время облучения, как правило, от нескольких минут до нескольких часов, требуется для стимулирования всхожести семян и облучения продуктов питания (для увеличения срока хранения). Максимальное время облучения при использовании ОЯТ (от нескольких суток до нескольких месяцев) необходимо для радиационных технологий, требующих поглощенной дозы 25 кГр. Для целей практики времена облучения порядка нескольких месяцев неприемлемы, поэтому в табл. 5 результаты оценки в таких случаях не приводятся.

С увеличением времени выдержки ОЯТ в хранилище интенсивность испускаемых  $\gamma$ -квантов падает, а требуемое время облучения растет. Кроме того, с увеличением времени выдержки растет и соотношение интенсивности испускаемых нейтронов и  $\gamma$ -квантов, а также и наведенная нейтронами активность в облучаемых материалах. Так, в случае облучения мяса курицы с помощью цельной ОТВС требуется защита от нейтронов, еще больше увеличивающая время облучения.

Таблица 6. Времена облучения и толщины экрана из чистой и борированной воды для некоторых радиационных технологий при использовании ОТВС

Table 6. Irradiation time and thickness of the shield from clean and borated water for some radiation technologies while using the spent fuel assemblies

Время выдержки ОТВС в хранилище, лет	Облучаемые материалы (требуемые поглощенные дозы, кГр)					
	Мясо курицы (1,5)		Мука (15)		Сталь (25)	
	1	2	1	2	1	2
0	1,6 ч нет экрана		17 ч нет экрана		> 2 мес.	2,6 сут 9 см
5	14 ч 8 см	7,3 ч 2 см	2,8 сут нет экрана		> 2 мес.	1,6 мес. 26 см
20	4,6 сут 17 см	1,9 сут 8 см	21 сут 6 см	8,7 сут 1 см	> 2 мес.	> 2 мес.

Примечание: 1 – результат соответствует экрану из чистой воды (если есть), 2 – результат соответствует экрану из борированной воды.

Использование облучателя, составленного из ряда 13 твэлов, примерно в 20 раз уменьшает выход нейтронов из ОЯТ, а выход  $\gamma$ -квантов – только в 1,5 раза. Таким образом, применение облучателя, представляющего собой ряд твэлов, хотя и увеличивает время облучения, однако позволяет практически полностью обходиться без защитных экранов для уменьшения наведенной активности. Исключение составляет только случай облучения среды полиэтилена и стали, когда облучатель собран из твэлов 20-летней выдержки после извлечения из активной зоны.

**Использование раствора борной кислоты в радиационной установке.** Наведенная нейтронами активность облучаемых материалов, частично обусловлена появлением радионуклидов в реакции  $(n, \gamma)$ , вызываемой в основном тепловыми нейтронами. В данной работе для дополнительного ослабления тепловых нейтронов экраном применяется концентрированный раствор борной кислоты (при комнатной температуре). Его эффективность на примере облучения мяса курицы, муки и стали показана в табл. 6. Использование борированной воды в качестве экранирующего материала позволяет существенно снизить толщину слоя воды и тем самым уменьшить требуемое время облучения до приемлемых величин.

**Заключение.** Существует принципиальная возможность использовать в качестве облучателей радиационной установки отработавшее топливо реактора ВВЭР-1200 Белорусской АЭС для задач радиационной технологии, не требующих большой поглощенной дозы. В тех случаях, когда наведенная нейтронами активность облучаемых материалов превышает допустимые нормативами пределы, предлагается использовать в качестве экранирующего материала слой борированной воды. Продолжением исследований по использованию ОЯТ в качестве облучателя в задачах радиационной технологии могла бы быть разработка технологических и конструкторских решений, направленных на повышение его эффективности.

#### Список использованных источников

1. Оценка технических возможностей использования отработавших тепловыделяющих сборок реактора ВВЭР-1200 в качестве источника гамма-излучения для радиационно-технологических процессов / Л. И. Сальников [и др.] // Вес. Нац. акад. навук Беларусі. Сер. фіз.-тэхн. навук. – 2014. – № 2. – С. 38–44.
2. Irradiation of Food Using Spent Nuclear Fuel / B. Betzler [et al.] // Trans. Amer. Nucl. Soc. – 2010. – Vol. 103. – P. 67–68.
3. EGSnrc: software tool to model radiation transport [Electronic resource] // National Research Council Canada. – Mode of access: <http://irs.inms.nrc.ca/software/egsnrc/>. – Date of access: 10.06.2010.
4. Описание применения и инструкция для пользователя программой MCU-RFFI расчета методом Монте-Карло нейтронно-физических характеристик ядерных реакторов / Е. А. Гомин [и др.]. – М.: РНЦ «Курчатов. ин-т», 1994. – 63 с.
5. Залубовский, И. И. Внешнее излучение контейнера сухого хранения отработавшего ядерного топлива ВВЭР-1000 Запорожской АЭС / И. И. Залубовский, С. А. Письменецкий, В. Г. Рудычев // Атом. энергия. – 2010. – Т. 109, вып. 6. – С. 324–329.
6. The NJOY Nuclear Data Processing System Version 91: report LA-12740-M / Los Alamos National Laboratory ; R. E. MacFarlane, D. W. Muir. – Los Alamos, 1994.

#### References

1. Salnikov L.I., Dneprovskaya N.M., Kuzmin A.V., Novikov I.A., Rubin I.E., Salnikova I.A., Tetereva N.A. Evaluation of the technical possibilities of using spent fuel assemblies VVER-1200 as a source of gamma radiation for radiation-technological processes. *Vestsi Natsyyanal'nai akademii navuk Belarusi. Seryya fizika-tekhnichnykh navuk* [Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus. Physical-technical series], 2014, no 2, pp. 38–44. (In Russian).
2. Betzler B., Hadgu H., Lawrence C., Orians M., Pavlou A., Poitrasson-Riviere A. Irradiation of Food Using Spent Nuclear Fuel. *Transactions of the American Nuclear Society*, 2010, vol. 103, pp. 67–68.
3. EGSnrc: software tool to model radiation transport. *National Research Council Canada*. Available at: <http://irs.inms.nrc.ca/software/egsnrc/> (accessed 10 June 2010).
4. Gomin E.A., Gurevich M.I., Maiorov L.V., Marin S.V. Application description and instruction for the user of the MCU-RFFI program of calculation by the Monte Carlo method of neutron and physical characteristics of nuclear reactors. Moscow, National Research Center “Kurchatov Institute”, 1994. 63 p. (In Russian).
5. Zalubovskii I.I., Pismeneckii S.A., Rudychev V.G. External radiation of a container used for dry storage of spent VVER-1000 nuclear fuel from the Zaporozhie nuclear power plant. *Atomic Energy*, 2010, vol. 109, no. 6, pp. 396–403. Doi: 10.1007/s10512-011-9374-8
6. MacFarlane R.E., Muir D.W. The NJOY Nuclear Data Processing System Version 91. Los Alamos National Laboratory report LA-12740-M, October 1994.

### Информация об авторах

*Сальников Леонард Игнатьевич* – кандидат физико-математических наук, доцент, заведующий лабораторией, Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны Национальной академии наук Беларуси (ул. Красина, 99, 222109, Минск, Республика Беларусь). E-mail: salnikov@sosny.bas-net.by

*Днепровская Нина Михайловна* – научный сотрудник, Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны Национальной академии наук Беларуси (ул. Красина, 99, 222109, Минск, Республика Беларусь). E-mail: rubin@sosny.bas-net.by

*Рубин Исаак Ефимович* – старший научный сотрудник, Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны Национальной академии наук Беларуси (ул. Красина, 99, 222109, Минск, Республика Беларусь). E-mail: rubin@sosny.bas-net.by

*Сальникова Ирина Аркадьевна* – старший научный сотрудник, Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны Национальной академии наук Беларуси (ул. Красина, 99, 222109, Минск, Республика Беларусь). E-mail: salirina@mail.ru

*Тетерева Наталья Александровна* – научный сотрудник, Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны Национальной академии наук Беларуси (ул. Красина, 99, 222109, Минск, Республика Беларусь). E-mail: tetna@mail.ru

### Для цитирования

Оценка наведенной активности в облучаемых материалах при использовании отработавшего топлива реактора ВВЭР-1200 в радиационных технологиях и пути ее ослабления / Л. И. Сальников [и др.] // Вест. Нац. акад. навук Беларусі. Сер. фіз.-тэхн. навук. – 2017. – № 1. – С. 92–102.

### Information about the authors

*Salnikov Leonard Ignatievich* – Ph. D. (Physical and Mathematics), Head of the laboratory, Joint Institute for Power and Nuclear Research – Sosny of the National Academy of Sciences of Belarus (99, Krasin Str., 222109, Minsk, Republic of Belarus). E-mail: salnikov@sosny.bas-net.by

*Dniaprovskaya Nina Michailovna* – Researcher, Joint Institute for Power and Nuclear Research – Sosny of the National Academy of Sciences of Belarus (99, Krasin Str., 222109, Minsk, Republic of Belarus). E-mail: rubin@sosny.bas-net.by

*Rubin Isaac Efimovich* – Senior Researcher, Joint Institute for Power and Nuclear Research – Sosny of the National Academy of Sciences of Belarus (99, Krasin Str., 222109, Minsk, Republic of Belarus). E-mail: rubin@sosny.bas-net.by

*Salnikova Iryna Arkadieвна* – Senior Researcher, Joint Institute for Power and Nuclear Research – Sosny of the National Academy of Sciences of Belarus (99, Krasin Str., 222109, Minsk, Republic of Belarus). E-mail: salirina@mail.ru

*Tetereva Natalia Aleksandrovna* – Researcher, Joint Institute for Power and Nuclear Research – Sosny of the National Academy of Sciences of Belarus (99, Krasin Str., 222109, Minsk, Republic of Belarus). E-mail: tetna@mail.ru

### For citation

Salnikov L.I., Dneprovskaya N.M., Rubin I.E., Salnikova I.A., Tetereva N.A. Induced activity estimate in irradiated materials when using VVER-1200 spent fuel for radiotechnology and ways of its attenuation. *Vestsi Natsyyanal'nei akademii navuk Belarusi. Seryya fizika-technichnykh navuk* [Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus. Physical-technical series], 2017, no.1, pp. 92–102. (In Russian).