

ИНТЕГРАЛЬНАЯ ОЦЕНКА НУКЛИДНОГО СОСТАВА И ТЕПЛОВЫДЕЛЕНИЯ ПОТЕНЦИАЛЬНЫХ ЯДЕРНЫХ ОТХОДОВ, ОБРАЗОВАННЫХ ТОПЛИВОМ В БАССЕЙНЕ ВЫДЕРЖКИ ЭНЕРГБЛОКА 1 АЭС ФУКУСИМА ДАЙИЧИ

К. С. Долганов

Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Москва

Статья поступила в редакцию 22 сентября 2023 г.

В предположении повреждения отработавших тепловыделяющих сборок в результате аварии на АЭС ядерное топливо в бассейне выдержки может рассматриваться в качестве радиоактивных отходов. Важной характеристикой таких отходов является нуклидный состав и тепловыделение. С помощью интегрального кода СОКРАТ/ВЗ, используемого для моделирования тяжелых аварий на АЭС, выполнен расчетный анализ нуклидного состава и остаточного тепловыделения в топливе бассейна выдержки на энергоблоке 1 АЭС Фукусима Дайичи. Показано, что при использовании СОКРАТ/ВЗ относительное отклонение активности большинства дозобразующих радионуклидов от реперных данных IAEA (Япония) не превышает 15%.

Ключевые слова: радионуклид, продукт деления, радиоактивные отходы, бассейн выдержки, Фукусима Дайичи.

Введение

По многим аспектам авария на АЭС Фукусима Дайичи, произошедшая в 2011 году, является уникальным событием в истории мирного использования атомной энергии. Это первая тяжелая авария (ТА), инициированная катастрофическим внешним воздействием (цунами). Впервые она затронула одновременно три энергоблока, причем на каждом из них наблюдалось взаимное влияние процессов и событий. Впервые произошло масштабное разрушение активных зон сразу в трех реакторах, с потенциальным риском разрушения топлива в четырех бассейнах выдержки отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Кроме того, в ходе аварии произошли последовательные взрывы водородо-воздушной смеси, разрушившие верхнюю часть трех реакторных зданий.

При таком масштабе аварии радиационные последствия оказались относительно незначительными — в совокупности вследствие счастливого стечения обстоятельств (погодные условия), эффективных проектных решений и действий персонала. Потенциальный риск большого радиоактивного выброса был, однако, велик и связан не столько с разрушением активных зон (АЗ) реакторов, сколько с потенциальным разрушением топлива в бассейнах выдержки (БВ), расположенных вне герметичной оболочки реакторной установки. Несмотря на то, что в ходе аварии удалось избежать осушения БВ на всех энергоблоках, падение в БВ крупных обломков строительных конструкций и крыши реакторного здания при взрывах водорода могло привести к нарушению герметичности твэлов и

нарушению охлаждаемой геометрии отработавших тепловыделяющих сборок (ТВС). В настоящее время отсутствуют свидетельства повреждения твэлов в БВ, а на энергоблоках № 3 и № 4 топливо полностью выгружено из реакторного в общий пристанционный бассейн выдержки. Аналогичные работы на энергоблоке 1 еще не начаты и запланированы на 2027–2028 гг. [1], [2].

После перемещения всех ОТВС энергоблоков в общий пристанционный БВ они будут обследованы более детально на предмет повреждений. Однако в любом случае вопрос их классификации на поврежденные и неповрежденные (т. е. формально пригодные для переработки) остается открытым [3]. В случае повреждения отработавшие сборки фактически могут представлять собой ядерные радиоактивные отходы, поскольку переработка поврежденного топлива становится невозможной или неоправданно дорогостоящей. В настоящее время в Японии отсутствует четкое решение о судьбе этого топлива, поскольку возможности по промышленной переработке отработавшего топлива в стране в ближайшей перспективе будут ограничены (ввод в эксплуатацию завода в Роккасе и временного хранилища ОЯТ в Муцу постоянно откладываются, завод Токаи выводится из эксплуатации [4], мировое сообщество требует сократить накопленные запасы плутония), а вывоз на переработку за рубеж (во Францию, Великобританию), в соответствии с ранее использовавшейся схемой, может быть проблематичен именно для топлива, хранившегося на аварийных энергоблоках. С другой стороны, захоронение этого топлива без переработки в Японии маловероятно, учитывая геологическую нестабильность региона и общественное мнение. В данной работе ОТВС, выгруженные из бассейнов выдержки АЭС Фукусима Дайичи, рассматриваются в качестве радиоактивных отходов.

Поскольку ОТВС в ближайшие 10 лет планируется хранить в пристанционном БВ, необходимо знать их нуклидный состав. Эти данные, среди прочего, являются исходными для моделирования радиоактивного выброса в случае тяжелой аварии в БВ. Нуклидный состав также определяет величину остаточного тепловыделения (ОТВ), важную для прогнозирования запаса времени до осушения и разрушения топлива и начала выхода радиоактивных веществ в окружающую среду. Нуклидный состав ОЯТ формируется в ходе топливной кампании в активной зоне реактора, предшествующей выгрузке в БВ, и зависит от особенностей топливной загрузки, а при хранении в БВ он определяется, кроме того, еще и временем, прошедшим с момента прекращения

облучения данной партии топлива в реакторе (длительностью выдержки в БВ).

Одним из средств прогнозирования радиоактивного выброса в целом являются так называемые интегральные программы для ЭВМ (коды) для анализа ТА, позволяющие моделировать процессы и события на энергоблоке АЭС, начиная от исходного события аварии и до формирования радиоактивного выброса в окружающую среду. Численные оценки нуклидного состава в ядерном топливе ранее выполнялись при решении реальных задач: в рамках оперативного реагирования после аварии на АЭС Фукусима Дайичи в 2011 году и событий на Запорожской АЭС в 2022 году.

В данной работе выполняется расчетное исследование нуклидного состава ядерного топлива в БВ энергоблока 1 АЭС Фукусима Дайичи в сравнении с реперными данными [5], полученными Японским институтом атомной энергии (JAEA) при помощи кода ORIGEN2.

Метод анализа и исходные данные

Основным методом анализа в этой работе является моделирование накопления радионуклидов в топливе в процессе топливной кампании и последующих превращений в процессе выдержки, а также сопоставление (кросс-верификация) результатов, полученных в интегральной постановке, с результатами прецизионных расчетов. В качестве объекта моделирования рассматривается топливо в бассейне выдержки на энергоблоке 1 АЭС Фукусима Дайичи по состоянию на момент аварии в 2011 году, а также через 10 и 15 лет после аварии.

Исходными данными является информация о предыстории и объеме загрузки БВ на энергоблоке 1 АЭС Фукусима Дайичи, приведенная в отчете JAEA [5]. В нем приводятся также соответствующие результаты прецизионных оценок выгорания топлива, накопления в нем радионуклидов и мощности ОТВ, выполненные при помощи кода ORIGEN2 по состоянию на момент аварии и спустя различное время после нее. Эти данные далее будут использоваться в качестве референтных для результатов моделирования с помощью отечественного интегрального кода СОКРАТ/В3 [6].

Ранее код СОКРАТ/В3 использовался для оценки накопленной активности в активных зонах аварийных энергоблоков АЭС Фукусима Дайичи в рамках подготовки Отчета Генерального директора МАГАТЭ об аварии на АЭС Фукусима Дайичи [7]. Позднее, после уточнения модели БОНУС в коде СОКРАТ/В3, обновленные

результаты этих оценок были опубликованы в статье [8]. Результаты анализа нуклидного состава в топливе БВ при помощи СОКРАТ/ВЗ публикуются впервые.

При расчете тепловых процессов в БВ следует учитывать особенность наличия в партиях топлива, выгружаемых из АЗ в рамках частичных перегрузок, ОТВС с разным выгоранием. Например, в случае ВВЭР выгружаемое топливо обычно включает ТВС с разным числом циклов облучения (например, 6 и 7 для топлива ВВЭР-440, 2 и 3 для топлива ВВЭР-1000), т. е. с разным выгоранием. Теоретически в расчетной модели возможно разбить каждую партию выгружаемого топлива на 2 группы с одинаковым выгоранием, но с учетом того, что в БВ таких партий обычно 5–6, число эффективных групп становится слишком большим и существенно усложняет расчеты. Что касается БВ АЭС Фукусима Дайичи, данные о распределении выгорания в партиях выгружавшегося топлива неизвестны. В отчете JAEA для каждой партии ТВС приводятся усредненные характеристики. Это может вносить некоторую погрешность в результаты оценки нуклидного состава, но незначительную, поскольку разброс выгорания в каждой партии топлива обычно небольшой, не более 10%.

В большинстве интегральных программ для численного анализа ТА отсутствуют встроенные модели, позволяющие рассчитать начальный состав топлива, его изменение в ходе аварии из-за радиоактивных превращений и соответствующее изменение мощности остаточного тепловыделения. Обычно содержание радионуклидов в топливе на начало аварии и кривая мощности остаточного тепловыделения определяются при помощи автономных нейтронно-физических расчетов и задаются в интегральных моделях энергоблока в качестве начальных и граничных условий. Особенностью российского кода СОКРАТ/ВЗ является наличие встроенной соответствующей модели БОНУС [9]–[11]. Это дает пользователю возможность независимой согласованной оценки выгорания топлива в ходе топливной кампании и учета изменения нуклидного состава топлива после остановки реактора. Мощность остаточного тепловыделения также рассчитывается внутри СОКРАТ/ВЗ.

В интегральном расчете ТА модель БОНУС вызывается не только в начале, но регулярно в течение всей расчетной сессии для отслеживания изменения остаточного тепловыделения и концентрации актиноидов и продуктов деления (ПД) с учетом их радиоактивного распада. Важным преимуществом модели является высокое быстродействие. Характерная доля

процессорного времени, занимаемого моделью БОНУС при расчете интегральной ТА, составляет около 0,2%. Быстродействие достигается использованием в модели ряда упрощающих допущений, описанных в работах [10], [11].

Обратной стороной быстродействия модели БОНУС является повышенная погрешность прогнозной оценки по сравнению с автономными кодами класса ORIGEN2. Она может быть неприемлемой для ряда специальных задач (например, для оценки рисков повторной критичности ядерного топлива, обоснования безопасной транспортировки отработавшего топлива), но для моделирования ТА она допустима, поскольку соответствует погрешности моделирования других процессов, определяющих выход из топлива и перенос радиоактивных веществ и материалов в окружающую среду.

Оценка нуклидного состава топлива в БВ

С точки зрения радиационных последствий ТА на энергоблоке АЭС представительный изотопный состав радиоактивного выброса определяется следующими параметрами:

- накопленная активность;
- дозовые характеристики радионуклидов (с учетом внутреннего и внешнего облучения человека);
- период полураспада радионуклидов.

При сопоставлении результатов, полученных по СОКРАТ/ВЗ, с результатами JAEA в статье [8] ранее рассматривались следующие радиационно значимые нуклиды:

- актиноиды ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{239}Np , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm ;
- продукты деления ^{140}Ba , ^{141}Ce , ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{137}Cs , ^{138}Cs , ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I , $^{85\text{m}}\text{Kr}$, ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{140}La , ^{99}Mo , ^{88}Rb , ^{103}Ru , ^{106}Ru , ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{91}Sr , $^{131\text{m}}\text{Te}$, ^{132}Te , ^{135}Xe , $^{135\text{m}}\text{Xe}$.

В данной работе в этот перечень были также добавлены ПД, учитываемые в детерминистических расчетах радиоактивных выбросов при моделировании ТА на АЭС с ВВЭР с помощью кода СОКРАТ/ВЗ (1), а также ПД, учитываемые в современных программных средствах быстрой оценки радиоактивного выброса [12]–[15] (2):

- (1) $^{135\text{m}}\text{Xe}$, $^{135\text{m}}\text{Xe}$, ^{147}Nd , ^{149}Nd , ^{95}Zr , ^{144}Ce , ^{127}Sb , ^{95}Nb ;
- (2) ^{85}Kr , ^{105}Rh , ^{90}Y , ^{91}Y , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{127\text{m}}\text{Te}$, $^{137\text{m}}\text{Ba}$, ^{129}Te , ^{143}Pr .

Кроме этого, в рассмотрение был добавлен актиноид ^{239}U .

Отметим, что выбранный перечень содержит радионуклиды, приведенные в статье [16] в качестве значимых для регулирования и контроля выбросов (за исключением ^3H , ^{14}C , ^{22}Na , ^{41}Ar , ^{54}Mn ,

^{60}Co , ^{65}Zn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{222}Rn , являющихся специфическими для ТА).

В общем случае этот перечень нуклидов характерен как для топлива в активной зоне, так и для топлива в БВ (если рассматривается авария с недавней выгрузкой очередной партии ОТВС). В случае энергоблока 1 АЭС Фукусима Дайичи авария началась, когда с момента выгрузки последней партии ОТВС прошел почти 1 год. А в настоящее время с момента аварии прошло еще почти 13 лет. Поэтому часть нуклидов из представленного списка уже не представляет интереса, поскольку полностью распалась.

Оценки нуклидного состава топлива в БВ были выполнены при помощи СОКРАТ/ВЗ с учетом группировки ОТВС в пределах каждого пакета ОТВС, выгруженного из АЗ в БВ в разные годы. Соответствующая информация приведена в отчете JAEA [5]. Использованный способ группировки ОТВС соответствует подходу, используемому при моделировании ТА в БВ ВВЭР. Однако в данном случае в обеспечение более точных условий сравнения результатов с данными JAEA не производилось объединение пакетов ОТВС с длительностью выдержки свыше 3 лет, как обычно делается в реальных расчетах аварий для экономии вычислительных затрат. В реакторных расчетах такая группировка оправдана, поскольку вклад ОТВС длительной выдержки в радиационные последствия и тепловыделение крайне мал по сравнению с более свежими.

Таким образом, для каждого пакета ОТВС использовались следующие данные:

- число ОТВС в пакете;
- время облучения в АЗ;
- длительность выдержки в БВ;
- удельная мощность ОТВС;
- удельная масса урана в ОТВС (в предположении, что она одинакова для всех партий топлива).

Среднее начальное обогащение свежего топлива, загружаемого в АЗ и облучаемого в течение топливной кампании, отдельно для каждой партии ОТВС в отчете JAEA не приводится, поэтому предполагалось, что начальное обогащение одинаково для всех партий.

Согласно опубликованным данным, в бассейне выдержки на энергоблоке 1 на момент аварии находилось 292 ОТВС, из которых наиболее свежая партия в количестве 64 штук была загружена почти за 1 год до аварии. Интересно, что в БВ хранились 74 ОТВС, выгруженных из АЗ еще в 1970-х годах.

Результаты расчета активности в БВ по коду СОКРАТ/ВЗ представлены в таблицах 1, 2. Как было отмечено выше, к моменту начала аварии в БВ энергоблока 1 значительная часть дозобразующих ПД

Таблица 1. Активность (Бк) дозобразующих продуктов деления в БВ энергоблока 1, полученная в интегральных расчетах по коду СОКРАТ/ВЗ для разного времени с момента аварии

Нуклид	Время (годы)		
	0	10	15
$^{137\text{m}}\text{Ba}$	$1,60 \cdot 10^{17}$	$1,28 \cdot 10^{17}$	$1,14 \cdot 10^{17}$
^{140}Ba	$2,06 \cdot 10^9$	0	0
^{141}Ce	$2,11 \cdot 10^{14}$	0	0
^{144}Ce	$1,75 \cdot 10^{17}$	$2,45 \cdot 10^{13}$	$2,89 \cdot 10^{17}$
^{134}Cs	$1,07 \cdot 10^{17}$	$3,77 \cdot 10^{15}$	$7,04 \cdot 10^{14}$
^{135}Cs	$1,11 \cdot 10^{12}$	$1,11 \cdot 10^{12}$	$1,11 \cdot 10^{12}$
^{136}Cs	$1,21 \cdot 10^8$	0	0
^{137}Cs	$1,70 \cdot 10^{17}$	$1,36 \cdot 10^{17}$	$1,21 \cdot 10^{17}$
^{85}Kr	$1,27 \cdot 10^{16}$	$6,73 \cdot 10^{15}$	$4,88 \cdot 10^{15}$
^{140}La	$2,38 \cdot 10^9$	0	0
^{95}Nb	$1,79 \cdot 10^{16}$	0	0
^{103}Ru	$8,02 \cdot 10^{14}$	0	0
^{106}Ru	$1,45 \cdot 10^{17}$	$1,60 \cdot 10^{14}$	$5,33 \cdot 10^{12}$
^{89}Sr	$1,53 \cdot 10^{15}$	0	0
^{90}Sr	$1,16 \cdot 10^{17}$	$9,15 \cdot 10^{16}$	$8,12 \cdot 10^{16}$
$^{127\text{m}}\text{Te}$	$1,70 \cdot 10^{14}$	0	0
^{90}Y	$1,16 \cdot 10^{17}$	$9,16 \cdot 10^{16}$	$8,12 \cdot 10^{16}$
^{91}Y	$3,89 \cdot 10^{15}$	0	0
^{95}Zr	$8,29 \cdot 10^{15}$	0	0
^{147}Nd	$1,09 \cdot 10^{17}$	0	0
^{154}Eu	$8,13 \cdot 10^{15}$	$3,66 \cdot 10^{15}$	$2,45 \cdot 10^{15}$
^{147}Pm	$1,09 \cdot 10^{17}$	$7,86 \cdot 10^{15}$	$2,10 \cdot 10^{15}$
^{143}Pr	$6,13 \cdot 10^9$	0	0
^{144}Pr	$1,75 \cdot 10^{17}$	$2,45 \cdot 10^{13}$	$2,89 \cdot 10^{11}$

Таблица 2. Активность (Бк) актинидов в БВ энергоблока 1, полученная в интегральных расчетах по коду СОКРАТ/ВЗ для разного времени с момента аварии

Нуклид	Время (годы)		
	0	10	15
^{241}Am	$1,32 \cdot 10^{15}$	$3,18 \cdot 10^{15}$	$3,80 \cdot 10^{15}$
^{242}Cm	$5,94 \cdot 10^{15}$	$1,07 \cdot 10^9$	0
^{244}Cm	$3,92 \cdot 10^{15}$	$2,69 \cdot 10^{15}$	$2,22 \cdot 10^{15}$
^{237}Np	$4,50 \cdot 10^{11}$	0	0
^{238}Pu	$5,94 \cdot 10^{15}$	$5,56 \cdot 10^{15}$	$5,34 \cdot 10^{15}$
^{239}Pu	$5,09 \cdot 10^{14}$	$5,12 \cdot 10^{14}$	$5,12 \cdot 10^{14}$
^{240}Pu	$8,71 \cdot 10^{14}$	$8,76 \cdot 10^{14}$	$8,76 \cdot 10^{14}$
^{241}Pu	$1,47 \cdot 10^{17}$	$9,14 \cdot 10^{16}$	$7,17 \cdot 10^{16}$
^{242}Pu	$3,56 \cdot 10^{12}$	$3,58 \cdot 10^{12}$	$3,58 \cdot 10^{12}$
^{235}U	$4,73 \cdot 10^{10}$	$4,77 \cdot 10^{10}$	$4,77 \cdot 10^{10}$
^{236}U	$4,72 \cdot 10^{11}$	$4,75 \cdot 10^{11}$	$4,75 \cdot 10^{11}$
^{238}U	$5,75 \cdot 10^{11}$	$5,80 \cdot 10^{11}$	$5,80 \cdot 10^{11}$

уже почти или полностью распалась. Относительное отклонение результатов СОКРАТ/ВЗ от данных из отчета JAEA показано на рис. 1, 2. Как следует из рисунков, для большинства оставшихся радиационно значимых радионуклидов разница в накоплении не превышает 15 %, но для некоторых (^{136}Cs , ^{106}Ru , ^{144}Ce , ^{144}Pr , ^{147}Pm , $^{148\text{m}}\text{Pm}$, ^{241}Am , ^{242}Cm) она достигает 20–30 %.

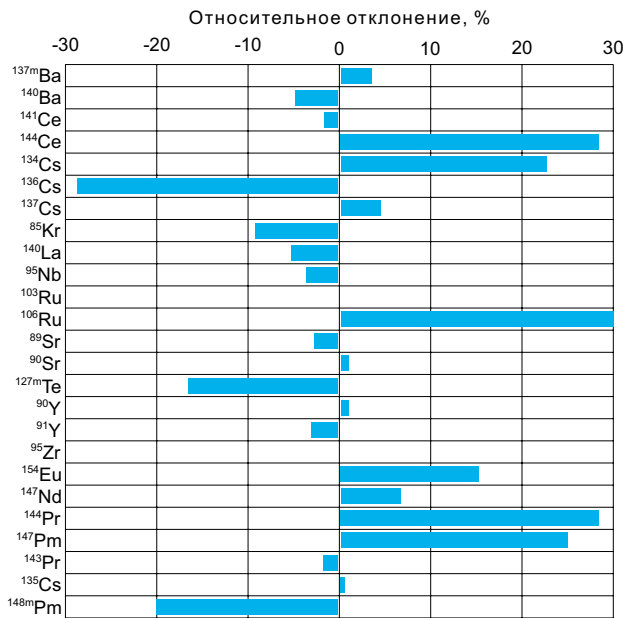


Рис. 1. Относительное отклонение расчетного накопления продуктов деления от данных JAEA в БВ энергоблока 1 на момент начала аварии



Рис. 2. Относительное отклонение расчетного накопления актинидов от данных JAEA в БВ энергоблока 1 на момент начала аварии

Отметим, что для ^{239}Np данные JAEA демонстрируют постоянную высокую активность $3,4\text{E}+13$ Бк вне зависимости от времени выдержки. Корректность этого результата вызывает сомнение, учитывая малый период полураспада ^{239}Np относительно времени выдержки (2,4 суток и 351 сутки соответственно), быстрый полный распад родительских ядер ^{239}U (период полураспада 23 минуты) и, наоборот, очень медленный α -распад родительских ядер ^{243}Am .

Совпадающие отклонения активности ^{144}Pr и ^{144}Ce объясняются тем, что активность ^{144}Pr определяется радиоактивным распадом ^{144}Ce .

Расчеты для времени выдержки 10 лет с начала аварии (11 лет выдержки последней выгруженной партии топлива) показали аналогичные отклонения от реперных данных JAEA (рис. 3, 4). Для большинства радиационно значимых нуклидов с существенной активностью отклонение не превышает 15 %, для ^{144}Ce , ^{106}Ru , ^{106}Rh , ^{144}Pr , ^{147}Pm , ^{241}Am , ^{242}Cm она составляет 20–30 %. Лишь для $^{127\text{m}}\text{Te}$ величина отклонения выросла с -16% до -55% .



Рис. 3. Относительное отклонение расчетного накопления продуктов деления от данных JAEA в БВ энергоблока 1 через 10 лет после аварии

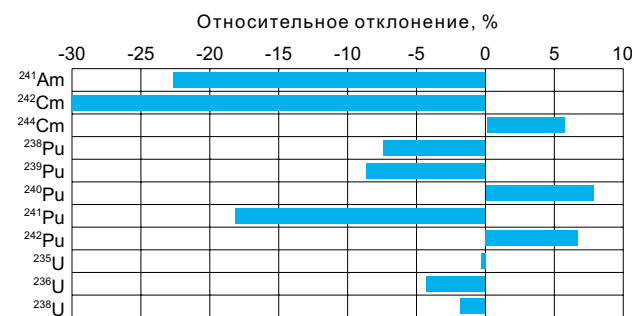


Рис. 4. Относительное отклонение расчетного накопления актинидов от данных JAEA в БВ энергоблока 1 через 10 лет после аварии

Оценка мощности ОТВ в активной зоне и в БВ

На основе рассчитанного нуклидного состава при помощи СОКРАТ/ВЗ был выполнен расчет мощности ОТВ для топлива в БВ энергоблока 1 (табл. 3). Результат расчета мощности тепловыделения в БВ с хорошей точностью совпадает с оценкой 180 кВт, выполненной ТЕРСО [17]. Можно отметить относительно невысокую мощность тепловыделения в БВ на момент аварии,

что обеспечило значительный запас времени до начала кипения воды и, соответственно, для принятия мер по организации подпитки БВ 31 марта 2011 года, т. е. почти спустя три недели с начала аварии. В настоящее время мощность ОТВ в БВ энергоблока 1 снизилась более чем на порядок.

Таблица 3. Результаты расчета мощности ОТВ в топливе БВ в зависимости от времени с начала аварии

Время, годы	0	1	2	5	10	15
Мощность, кВт	178	117	89	60	49	12

Результаты для разного времени от 0 до 10 лет после начала аварии были сопоставлены с результатами, полученными JAEA по коду ORIGEN2. Относительное отклонение значений мощности ОТВ от реперных данных JAEA представлено на рис. 5. Модели СОКРАТ/ВЗ демонстрируют тенденцию к переоценке мощности ОТВ, полученной JAEA, причем в первые 2 года переоценка составляет 12–16%, а затем снижается почти вдвое. Также для примера на рис. 5 приведены относительные отклонения результатов СОКРАТ/ВЗ от данных JAEA в те же моменты времени, но для топлива активной зоны. Следует оговориться, что, строго говоря, прямое сопоставление результатов кросс-верификации с данными JAEA для БВ и для АЗ некорректно, поскольку выгорание топлива и нуклидный состав в АЗ и в БВ на момент аварии разные. Однако качественное сравнение показывает, что при времени выдержки более 1 года и для топлива в АЗ, и для топлива в БВ наблюдается похожая по порядку величины и зависимости от времени переоценка мощности по данным JAEA.

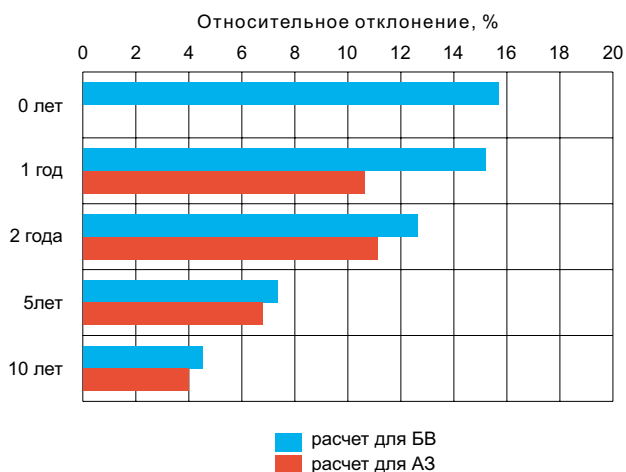


Рис. 5. Относительное отклонение расчетной мощности ОТВ по СОКРАТ/ВЗ от результатов JAEA для топлива в БВ и для топлива в АЗ

Анализ результатов JAEA показывает, что основной вклад в мощность ОТВ в первые годы выдержки топлива вносят следующие радионуклиды (рис. 6): ^{106}Ru (19%), ^{144}Pr (18%), ^{134}Cs (16%), ^{90}Y (11%), $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (10%), ^{242}Cm (7%). Как было показано выше, в расчетах нуклидного состава топлива в БВ при помощи СОКРАТ/ВЗ получены активности ^{106}Ru , ^{144}Pr и ^{134}Cs , превышающие данные JAEA на 20–30%. Для ^{90}Y и $^{137\text{m}}\text{Ba}$ относительное отклонение расчетной активности очень мало. Для ^{242}Cm активность по СОКРАТ/ВЗ меньше данных JAEA на 30%, но и вклад ^{242}Cm в тепловыделение в разы меньше, чем вклад нуклидов, для которых получена переоценка активности. Таким образом, результаты кросс-верификации для мощности ОТВ согласуются с результатами для нуклидного состава.



Рис. 6. Относительный вклад радионуклидов в мощность ОТВ в БВ энергоблока 1 в начале аварии (по данным JAEA)

Заметим также, что заметная переоценка накопления ^{106}Ru и ^{134}Cs относительно данных JAEA была получена и для активной зоны [8]. В то же время, если проанализировать результаты валидационных расчетов по СОКРАТ/ВЗ для данных SFCOMPO2.0, погрешность для ^{134}Cs составляет [–8%; +10%], т. е. тенденция к переоценке отсутствует, а максимальное значение почти вдвое меньше, чем величина отклонения от данных JAEA для БВ на начало аварии.

Как отмечается в [8], в случае ^{134}Cs и ^{106}Ru относительно большая переоценка накопления может быть вызвана различиями в расчете основных делящихся актинидов (^{235}U и ^{239}Pu), так как, в соответствии с кривой выхода осколков деления, выход этих ПД расположен вблизи максимума вероятности прямого выхода. С другой стороны, отклонения также могут быть связаны с особенностями моделей и использованием разных библиотек оцененных ядерных данных при подготовке сечений, а также с недостаточной информацией по конкретным нуклидам и разными

сопутствующими допущениями. Для выяснения причины полученного отклонения результатов требуется более подробная информация об исходных данных и допущениях, сделанных JAEA в их исследовании.

Аналогично, снижение переоценки мощности ОТВ по СОКРАТ/ВЗ для времени 10 лет с момента аварии также объясняется различиями в активности радионуклидов, вносящих основной вклад в тепловыделение. В данном случае, это ^{90}Y (29%), $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (25%), ^{238}Pu (12%), ^{137}Cs (8%), ^{241}Am (8%), ^{90}Sr (6%), ^{244}Cm (5%) (рис. 7). За исключением ^{241}Am , активности всех этих радионуклидов в расчетах по СОКРАТ/ВЗ и в данных JAEA близки, с небольшой тенденцией к переоценке для СОКРАТ/ВЗ. Поэтому в целом различие в прогнозе мощности ОТВ небольшое.

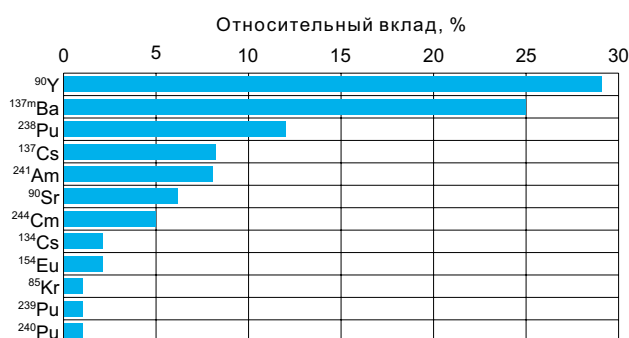


Рис. 7. Относительный вклад радионуклидов в мощность ОТВ в БВ энергоблока 1 через 10 лет после начала аварии (по данным JAEA)

Заметим, что полученные отклонения для мощности ОТВ в день аварии и через 10 лет после нее (или через 1 год и 11 лет выдержки топлива в БВ после прекращения облучения) качественно согласуются с результатами валидации модели БОНУС на данных РБ-093-20 [18]. В работе [11] было получено, что при выдержке ТВС ВВЭР с обогащением 4,3% и выгоранием 36 МВт·сут/кгU в течение 1 года мощность ОТВ переоценивается на 5%, при выдержке в течение 3 лет — на 8%, и при выдержке в течение 10 лет — менее чем на 1%. Причины количественного отличия степени переоценки реперных данных могут быть связаны как с немного разными параметрами ОТВС (обогащение 3,7% и 4,3%, глубина выгорания 40 МВт·сут/кгU и 36 МВт·сут/кгU), так и с погрешностями реперных данных (выше отмечались примеры несогласованности в результатах JAEA) или неполнотой описания допущений, принятых JAEA. Например, для всех партий выгруженного в разные годы топлива принималось одинаковое обогащение, что, возможно, не так, и в работе JAEA использовались разные значения обогащения.

Заключение

В данной работе выполнен расчетный анализ нуклидного состава и остаточного тепловыделения в топливе, находящемся в БВ на энергоблоке 1 АЭС Фукусима Дайичи, которое рассматривается в качестве радиоактивных отходов, исходя из консервативных предположений о невозможности его переработки в перспективе 10–20 лет. Целью анализа являлась оценка радиоактивности топлива в случае возникновения тяжелой аварии либо в БВ энергоблока 1, либо в пристанционном БВ, а также сравнение полученных результатов с реперными данными института JAEA (Япония). В качестве средства анализа использовался отечественный интегральный код СОКРАТ/ВЗ, включающий как модель накопления и распада радионуклидов в топливе, так и модель согласованной оценки мощности остаточного тепловыделения в топливе вследствие радиоактивных превращений.

На основании сопоставления результатов интегральных расчетов при помощи СОКРАТ/ВЗ с реперными данными, полученными JAEA при помощи кода ORIGEN2, получены относительные отклонения для активности дозообразующих радионуклидов и мощности остаточного тепловыделения в бассейне выдержки.

Применительно к нуклидному составу топлива, находившегося на начало аварии в БВ и включавшего партии с длительностью выдержки от 1 года до 30 лет, показано, что отклонение активности долгоживущих дозообразующих радионуклидов от реперных данных JAEA не превышает 30%, а для большинства нуклидов укладывается в диапазон $\pm 10\%$. Полученные отклонения можно считать допустимыми для задач интегрального моделирования ТА в БВ.

Сопоставление рассчитанной мощности остаточного тепловыделения топлива с данными JAEA продемонстрировало и тенденцию к переоценке в пределах 5–16% для топлива в БВ (от 1 года до 10 лет выдержки). Таким образом, при моделировании процессов в БВ во время аварии на энергоблоке 1 АЭС Фукусима Дайичи при помощи СОКРАТ/ВЗ следует ожидать небольшую переоценку скорости нагрева и осушения БВ до начала разрыва оболочек твэлов, когда тепловыделение в твэлах начинает уменьшаться за счет выхода среднелетучих ПД из топлива.

Из сравнения результатов расчетов с данными JAEA следует, что в дальнейшем необходимо обратить внимание на точность моделирования в СОКРАТ/ВЗ наработки следующих радионуклидов: ^{85}Kr , ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{136}Cs и ^{144}Ce , для которых получены наибольшие отклонения. Недостаток

экспериментальных данных существенно ограничивает возможности для валидации модели выгорания топлива, поэтому для проверки точности прогнозных оценок необходимы дополнительные экспериментальные исследования. Возможным решением этой проблемы является использование интегральных экспериментов с измерением мощности тепловыделения в облученных топливных образцах в разное время после прекращения облучения.

Литература

1. URL: <https://www.tepco.co.jp/en/hd/decommission/project/roadmap/index-e.html> (дата обращения: 22.09.2023).
2. Mid-and-Long-Term Decommissioning Action Plan 2022 // TEPCO, 31 March 2022.
3. Nagasaki S. Radioactive Waste Management after Fukushima Daiichi Accident // Chapter 15 in: Ahn J. et al. (eds.), Reflections on the Fukushima Daiichi Nuclear Accident. SpringerOpen, 2015. DOI: 10.1007/978-3-319-12090-4_1.
4. Japan Atomic Energy Commission's Views on Plutonium Utilization Plans Announced by Electric Power Companies and the Japan Atomic Energy Agency. Japan Atomic Energy Commission Cabinet Office, Government of Japan. 28 February 2023.
5. Nishihara K., Iwamoto H., Suyama K. Estimation of Fuel Compositions in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant. JAEA-Data/Code 2012-018. — Japan Atomic Energy Agency, 2012.
6. Bolshov L. A., Dolganov K. S., Kiselev A. E., Strizhov V. F. Results of SOCRAT code development, validation and applications for NPP safety assessment under severe accidents // Nuclear Engineering and Design. 2019. Vol. 341. Pp. 326–345. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2018.11.013
7. The Fukushima Daiichi accident. Report by the Director General. — IAEA, Vienna, 2015.
8. Dolganov K. S., Dolzhenkov E. A., Fokin A. L. et al. Applicability of the nuclide kinetics fast estimate model for severe accident codes // Annals of Nuclear Energy. 2022. Vol. 167. Pp. 108858. DOI: 10.1016/j.anucene.2021.108858.

9. Тарасов В. И. Пакет БОНУС 1.2. Нарботка радионуклидов в реакторах на тепловых нейтронах. Руководство пользователя. Отчет NSI-SARR-137-2002. — Москва, ИБРАЭ РАН, 2002.
10. Долженков Е. А., Долганов К. С., Томащук Д. Ю. Усовершенствование модели нуклидной кинетики в составе интегрального кода СОКРАТ/В3 // Сборник трудов 11-й Международной научно-технической конференции «Обеспечение безопасности АЭС с ВВЭР». — Подольск, ОКБ «Гидропресс», 2019. — URL: <http://www.gidropress.podolsk.ru/files/proceedings/mntk2019/autorun/index-ru.htm> (дата обращения: 15.03.2022).
11. Долженков Е. А., Томащук Д. Ю., Рыжов Н. И. Модель нуклидной кинетики для расчета тяжелых аварий // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерно-реакторные константы. 2022. Вып. 4. С. 5–14.
12. PERSAN Source Term calculation tool. Capabilities and functions used by the Reactor Assessment Team of IRSN emergency organization. — FASTNET School, 2019.
13. Ramsdell J. V., Athey G. F., McGuire A. et al. RASCAL 4.3: Description of Models and Methods. — USA, NRC, 2015.
14. Hage M., Löffler H. Weiterentwicklung eines Analysewerkzeugs zur Quelltermprognose. — GRS-455. — GRS, 2017.
15. Mascari F. Fastnet Scenarios Database Development and Status // ERMSAR conf., p. 104. — Czech Republic, Prague, 2019.
16. Лунге И. И. О рационализации систем обращения с РАО и обеспечения радиационной безопасности // Радиоактивные отходы. 2023. № 2 (23). С. 21–34. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-2-21-34.
17. Additional Report of the Japanese Government to the IAEA – The Accident at TEPCO's Fukushima Nuclear Power Stations (Second Report). — Nuclear Emergency Response Headquarters Government of Japan, September 2011.
18. РБ-093-20. Радиационные и теплофизические характеристики отработавшего ядерного топлива водо-водяных энергетических реакторов и реакторов большой мощности канальных. — Москва, НТЦ ЯРБ, 2020.

Информация об авторе

Долганов Кирилл Сергеевич, кандидат технических наук, заведующий лабораторией, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: dolganov@ibrae.ac.ru.

Библиографическое описание статьи

Долганов К. С. Интегральная оценка нуклидного состава и тепловыделения потенциальных ядерных отходов, образованных топливом в бассейне выдержки энергоблока 1 АЭС Фукусима Дайичи // Радиоактивные отходы. 2023. № 4 (25). С. 101—110. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-4-101-110.

INTEGRALLY ESTIMATED NUCLIDE INVENTORY AND DECAY HEAT FROM POTENTIAL NUCLEAR WASTE REPRESENTED BY THE SPENT FUEL FROM THE FUKUSHIMA DAIICHI UNIT 1

Dolganov K. S.

Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow

Article received on September 22, 2023

Assuming an accident that may damage spent fuel assemblies at an NPP, nuclear fuel in the spent fuel pool can be considered as radioactive waste. Data on its nuclide composition and heat generation is seen important for the safety assessment of its storage and potential radiological consequences in case of an accident. The SOCRAT/V3 integral code designed to simulate severe accidents at nuclear power plants with VVER power units is able to estimate the nuclide inventory of irradiated fuel based on a one-through calculation and a built-in model. This code was used for a computational analysis of the spent fuel from the Fukushima Daiichi Unit 1, namely, evaluated was its nuclide composition and its decay heat release. The results were compared with the reference data from JAEA (Japan). The calculations demonstrate that in case of severe accident simulations, the use of an integral approach causes no large errors in the estimated nuclide inventory. For most dose-forming radionuclides in the spent fuel, relative deviation of activity from the reference data does not exceed 15%, which appears to be lower than the typical uncertainty under source term predictions. Despite certain overestimation tendency that can be noticed, the decay heat levels calculated for the spent fuel pool appear to be quite similar to those presented in the JAEA report differing by no more than 16% in the first years after the accident, and by 5% ten years after the accident.

Keywords: radionuclide, fission product, radioactive waste, spent fuel pool, Fukushima Daiichi.

References

1. URL: <https://www.tepco.co.jp/en/hd/decommission/project/roadmap/index-e.html> accessed on: 22.09.2023).
2. *Mid-and-Long-Term Decommissioning Action Plan 2022*. TEPCO, 31 March 2022.
3. Nagasaki S. Radioactive Waste Management after Fukushima Daiichi Accident. Chapter 15 in: Ahn J. et al. (eds.), *Reflections on the Fukushima Daiichi Nuclear Accident*. SpringerOpen, 2015. DOI: 10.1007/978-3-319-12090-4_1.
4. *Japan Atomic Energy Commission's Views on Plutonium Utilization Plans Announced by Electric Power Companies and the Japan Atomic Energy Agency*. Japan Atomic Energy Commission Cabinet Office, Government of Japan. 28 February 2023.
5. Nishihara K., Iwamoto H., Suyama K. *Estimation of Fuel Compositions in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant*. JAEA-Data/Code 2012-018. — Japan Atomic Energy Agency, 2012.
6. Bolshov L. A., Dolganov K. S., Kiselev A. E., Strizhov V. F. Results of SOCRAT code development, validation and applications for NPP safety assessment under severe accidents. *Nuclear Engineering and Design*, 2019, vol. 341, pp. 326—345. DOI: 10.1016/j.nucengdes.2018.11.013.
7. *The Fukushima Daiichi accident. Report by the Director General*. — IAEA, Vienna, 2015.
8. Dolganov K. S., Dolzhenkov E. A., Fokin A. L. et al. Applicability of the nuclide kinetics fast estimate model for severe accident codes. *Annals of Nuclear Energy*, 2022, vol. 167, pp. 108858. DOI: 10.1016/j.anucene.2021.108858.

9. Tarasov V. I. *Paket BONUS 1.2 Narabotka radio-nuklidov v reaktorah na teplovyh nejtronah. Rukovodstvo pol'zovatelya* [Build-up of radionuclides in thermal reactors. User's guide]. NSI-SARR-137-2002. Moscow, IBRAE RAN Publ., 2002.
10. Dolzhenkov E. A., Dolganov K. S., Tomashchik D. Yu. *Usovershenstvovanie modeli nuklidnoj kinetiki v sostave integral'nogo koda SOCRAT/V3* [Improvement of the nuclide kinetics model in the integral code SOCRAT/V3]. *Sbornik trudov 11 Mezhdunarodnoj nauchno-tekhnicheskoy konferencii "Obespechenie bezopasnosti AES s VVER"* [Materials of Int. Sc. And Tech. Conf. "Safety of VVER NPPs"]. Podolsk, OKB "Gidropress" Publ., 2019. — URL: <http://www.gidropress.podolsk.ru/files/proceedings/mntk2019/autorun/index-ru.htm> (accessed on: 15.03.2022).
11. Dolzhenkov E. A., Tomashchik D. Yu., Ryzhov N. I. Model' nuklidnoj kinetiki dlya rascheta tyazhelyh avarij [Nuclide kinetics model for severe accident calculations]. *Voprosy atomnoj nauki i tekhniki. Seriya: Yaderno-reaktornye konstanty — Issues of nuclear science and technology. Series: nuclear constants*, 2022, issue 4, pp. 5–14.
12. PERSAN Source Term calculation tool. Capabilities and functions used by the Reactor Assessment Team of IRSN emergency organization. FASTNET School, 2019.
13. Ramsdell J. V., Athey G. F., McGuire A. et al. *RASCAL 4.3: Description of Models and Methods*. USA, NRC, 2015.
14. Hage M., Löffler H. *Weiterentwicklung eines Analysewerkzeugs zur Quelltermprognose*. GRS-455. GRS, 2017.
15. Mascari F. Fastnet Scenarios Database Development and Status. *ERMSAR conf.*, p. 104. Czech Republic, Prague, 2019.
16. Linge I. I. O racionalizacii sistem obrashcheniya s RAO i obespecheniya radiacionnoj bezopasnosti [Streamlining RW management and radiation safety systems]. *Radioaktivnye othody — Radioactive Waste*, 2023, no. 2 (23), pp. 21–34. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-2-21-34.
17. *Additional Report of the Japanese Government to the IAEA — The Accident at TEPCO's Fukushima Nuclear Power Stations (Second Report)*. Nuclear Emergency Response Headquarters Government of Japan, September 2011.
18. RB-093-20. *Radiatsionnye i teplofizicheskie kharakteristiki otrabotavshogo yadernogo topliva vodo-vodyanykh ehnergeticheskikh reaktorov i reaktorov bol'shoi moshchnosti kanal'nykh* [Radiation, Thermal and Physical Characteristics of Spent Nuclear Fuel from Water-Moderated Power Reactors and High Power Channel-Type Reactors]. Moscow, 2020.

Information about the author

Dolganov Kirill Sergeevich, PhD, head of the laboratory, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulsкая st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: dolganov@ibrae.ac.ru.

Bibliographic description

Dolganov K. S. Integrally Estimated Nuclide Inventory and Decay Heat from Potential Nuclear Waste Represented by the Spent Fuel from the Fukushima Daiichi Unit 1. *Radioactive Waste*, 2023, no. 4 (25), pp. 101–110. DOI: 10.25283/2587-9707-2023-4-101-110. (In Russian).