

## Моделирование радиационных характеристик композитных керамик для контейнеров хранения радиоактивных отходов

Методом Монте-Карло проведено моделирование дозовых нагрузок от радиоактивных отходов, находящихся в контейнере КТЗВ-0,2. Для увеличения срока эксплуатации и повышения защитных характеристик контейнера рассмотрена возможность использования в качестве защитного материала композитных керамик большой плотности. Выполнено сравнение характеристик дозовых нагрузок при использовании керамики и стандартного материала.

**Ключевые слова:** радиоактивные отходы, контейнер, радиационные характеристики, высокопрочная керамика, математическое моделирование, метод Монте-Карло.

Е. В. Рудычев, С. Ю. Саенко, М. А. Хажмурадов

### Моделювання радіаційних характеристик композитних керамік для контейнерів зберігання радіоактивних відходів

Методом Монте-Карло проведено моделювання дозових навантажень від радіоактивних відходів, що містяться у контейнері КТЗВ-0,2. Для збільшення строку експлуатації та підвищення захисних характеристик контейнера розглянуто можливість використання за захисний матеріал композитних керамік великої щільності. Виконано порівняння характеристик дозових навантажень під час використання кераміки та стандартного матеріалу.

**Ключові слова:** радіоактивні відходи, контейнер, радіаційні характеристики, високоміцна кераміка, математичне моделювання, метод Монте-Карло.

© Е. В. Рудычев, С. Ю. Саенко, М. А. Хажмурадов, 2010

В настоящее время для хранения радиоактивных отходов (РАО) в Украине применяются контейнеры типа КТЗВ-0,2 [1]. Одним из недостатков таких контейнеров при использовании в качестве основной защиты композита состава 80 % бетон + 20 % железо является возможность коррозионных процессов при долговременной эксплуатации, особенно в условиях с повышенной влажностью. Даже при отсутствии внешних взаимодействий на материал контейнера и стабильных параметрах внешней среды для железобетона характерна коррозия, при которой разрушение материала происходит из-за напряжений, возникающих в результате кристаллизации экспансивных фаз [2]. Композит бетон + железо рассчитан на срок эксплуатации порядка 50 лет, поскольку при более длительном сроке возможно разрушение материала. Кроме этого, при плотности композита  $3,2 \div 3,44 \text{ г/см}^3$ , фиксированных габаритных размерах и массе накладываются естественные ограничения, связанные с максимальной активностью РАО, которые можно перевозить или хранить в контейнере данного типа. Поэтому при анализе проблемы хранения РАО в течение длительного времени необходимо рассматривать возможность использования альтернативных материалов, применение которых могло бы улучшить защитные характеристики контейнера. При этом подобные материалы должны быть долговечными и коррозионностойкими. Такими материалами могут быть композитные керамики высокой плотности [3].

Цель данной работы — оценить радиационные характеристики контейнера с фиксированным объемом РАО (200 л) при использовании альтернативных защитных материалов — керамических композитов — с помощью математического моделирования методом Монте-Карло.

**Методика проведения расчетов.** Контейнер КТЗВ-0,2 состоит из двух частей: первичной упаковки и защитного контейнера (рис. 1). Внешние размеры контейнера КТЗВ-0,2:

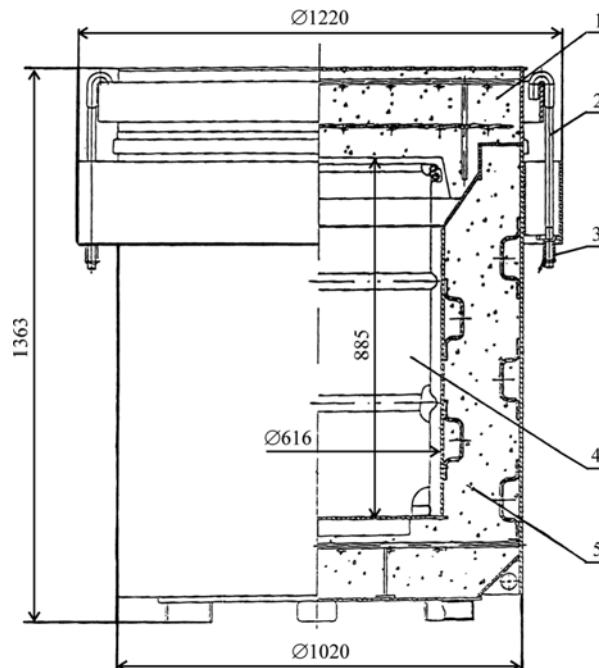


Рис. 1. Контейнер специализированный транспортно-защитный для хранения высокоактивных отходов (КТЗВ-0,2):

1 — крышка контейнера; 2 — фиксирующее устройство (винт); 3 — гайка; 4 — первичная упаковка; 5 — защитный контейнер

диаметр  $1220 \pm 5$  мм; высота  $1363 \pm 5$  мм. Внутренние размеры: диаметр  $616 \pm 3$  мм; высота  $885 \pm 3$  мм. Масса пустого контейнера  $3886 \pm 80$  кг; масса контейнера с первичной упаковкой — не более 4400 кг; масса крышки — 924 кг. Размеры первичной упаковки: диаметр 560 мм, высота 815 мм (стандартная бочка 200 л).

Защитный контейнер представляет собой трехслойный цилиндр:

1-й слой — железо, толщина слоя — 6 мм;

2-й слой — композит бетон + железо (соотношение объемов — 80 % и 20 % соответственно), толщина слоя — 150 мм;

3-й слой — железо, толщина слоя — 8 мм.

В качестве альтернативного материала вместо цилиндрического слоя из смеси бетона и железа выбрана керамика двух типов.

Первый тип — монофазная керамика [частично стабилизированный оксид циркония  $ZrO_2$  (3 мол %  $Y_2O_3$ ) с плотностью  $6,0 \text{ г/см}^3$ ]. Второй тип — гетерофазная керамика, представляющая собой композит с керамической матрицей состава  $V_4C + (50 \% TiB_2 + 50 \% W_2B_5)$  в различных объемных соотношениях (табл. 1).

Таблица 1. Объемные соотношения для гетерофазной керамики

Состав материала, % (об.)		$\rho$ , г/см <sup>3</sup>
50% $TiB_2 + 50\% W_2B_5$	$V_4C$	
100	-	10,27
90	10	9,5
80	20	8,72
70	30	7,94
60	40	7,2

Основной с точки зрения радиационной безопасности характеристикой рассматриваемого контейнера является мощность экспозиционной дозы излучения (МЭД) на его внешней поверхности. Зная МЭД, можно обеспечить соответствующие процедуры при эксплуатации данных контейнеров в зависимости от начальной активности РАО.

Для расчета характерных значений МЭД необходимо знать спектр излучения РАО, зависящий от состава РАО. В качестве модельного РАО были взяты радионуклиды  $Cs^{137}$  и  $Co^{60}$ , характеризующиеся их спектрами излучения, в соотношении 80 % и 20 % соответственно. Распределение РАО по объему принято однородным. Плотность модельного РАО взята равной  $2 \text{ г/см}^3$ .

По построенной геометрической модели контейнера проведено моделирование излучения РАО для расчета МЭД в критических точках — центре боковой стороны и центре торца контейнера. Моделирование проводилось на основе метода Монте-Карло с использованием пакета MCNPX [4].

Поскольку в ходе выполнения работы изучалась возможность применения новых защитных материалов при хранении и транспортировке РАО, на данном этапе не рассматривалась задача оптимизации геометрической формы контейнера. Поэтому при построении геометрической модели контейнера были приняты некоторые упрощения. Геометрическая модель контейнера представляла собой

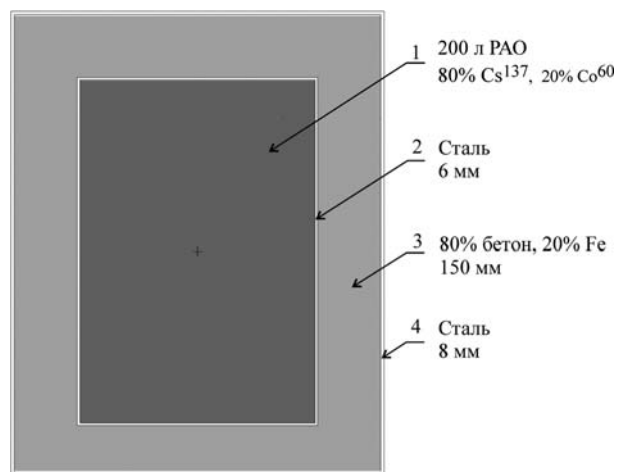


Рис. 2. Геометрическая модель для моделирования методом Монте-Карло

ряд цилиндров различной толщины и различных материалов (рис. 2). Для расчетов МЭД активность РАО была принята равной  $10^9$  Бк.

**Результаты расчетов и их обсуждение.** С помощью моделирования показано, что спектр гамма-квантов, формирующий МЭД на поверхности контейнера, соответствующим образом модифицируется по сравнению с начальным спектром РАО за счет самопоглощения самим РАО, а также за счет поглощения в защите контейнера. Спектр гамма-квантов на расстоянии 10 см от боковой внешней поверхности контейнера представлен на рис. 3.

На данном спектре наблюдаются линии, соответствующие энергиям гамма-распада от элементов  $Cs^{137}$  и  $Co^{60}$ , а также значительное количество низкоэнергетической составляющей за счет перерассеивания в РАО и защите контейнера. Однако с практической точки зрения более важной является характеристика мощности экспозиционной дозы, поэтому при исследовании замены композита бетон + железо на керамику в качестве основной характеристики было решено использовать значения МЭД в заданных точках.

В качестве контрольных точек для МЭД были взяты точки на середине боковой стороны контейнера, удаленные от нее на расстояние 10, 50 и 100 см соответственно, и точки на оси торца контейнера на расстоянии 10, 50, 100 см от поверхности.

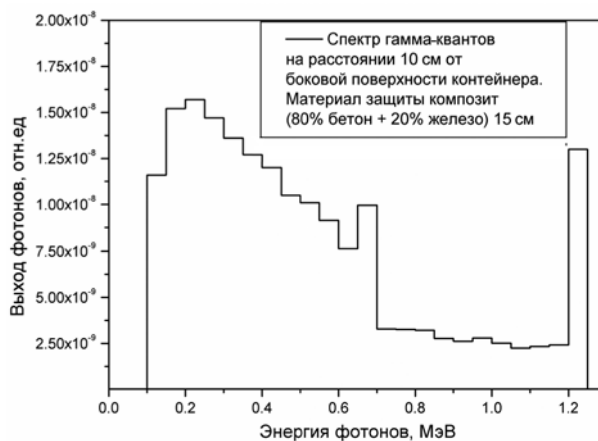


Рис. 3. Спектр гамма-квантов с боковой поверхности контейнера

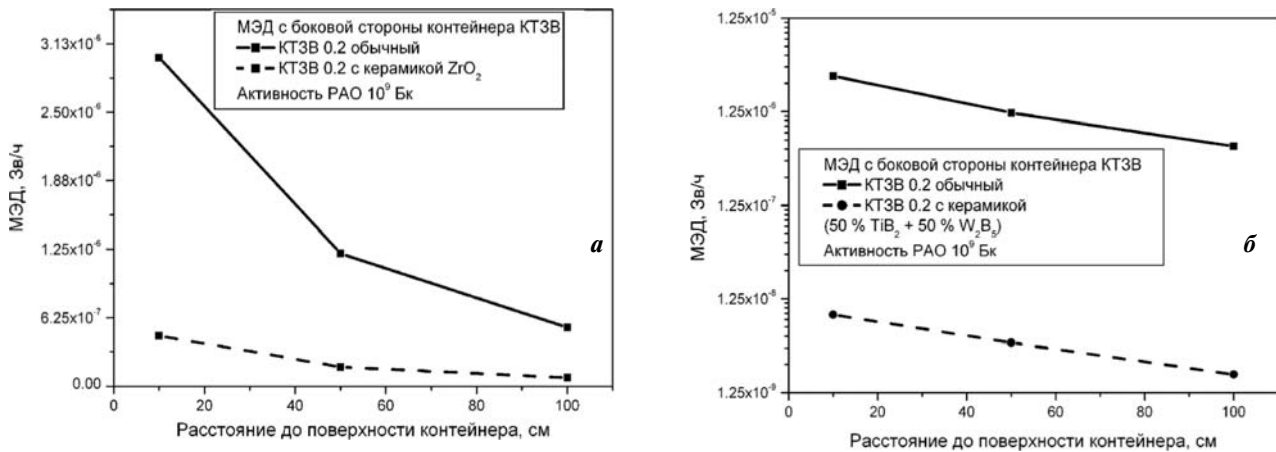


Рис. 4. Сравнение МЭД при замене наполнителя композит бетон + железо керамикой: а — гомофазная керамика  $ZrO_2$ ; б — гетерофазная керамика (50 %  $TiB_2$  + 50 %  $W_2B_5$ )

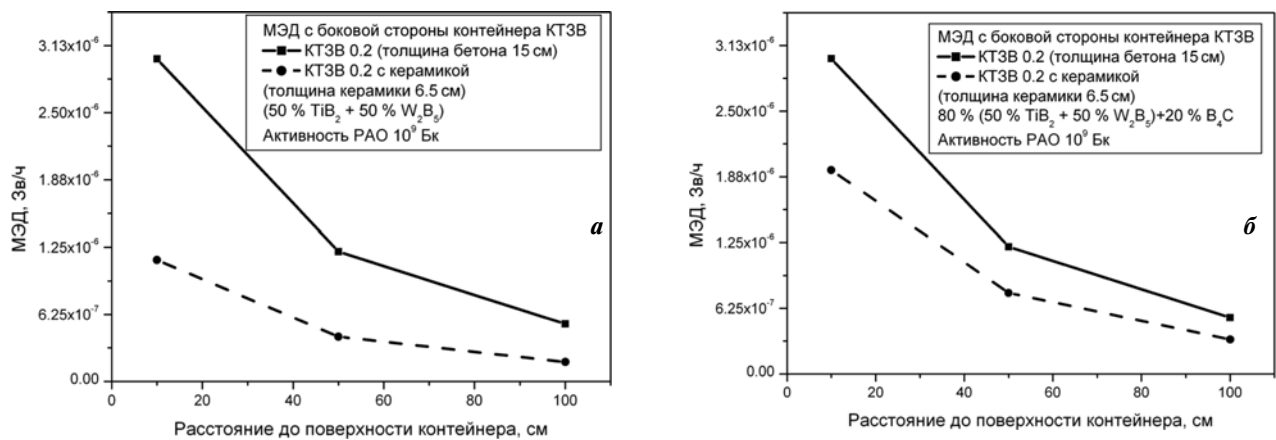


Рис. 5. Сравнение МЭД при замене композита бетон + железо гетерофазной керамикой массой равной композиту бетон + железо: а — керамика (50 %  $TiB_2$  + 50 %  $W_2B_5$ ); б — керамика 80 % (50 %  $TiB_2$  + 50 %  $W_2B_5$ ) + 20 %  $B_4C$

Рассчитанные значения МЭД для стандартного наполнителя композит бетон + железо в сравнении керамическим наполнителем представлены на рис. 4.

В случае гомофазной керамики значения МЭД по сравнению с обычным наполнителем меньше в 7 раз, а в случае гетерофазной керамики МЭД отличается более чем в 200 раз. В связи с этим проведены расчеты МЭД при уменьшении объема наполнителя. В качестве критерия взята масса контейнера, эквивалентная массе обычного наполнителя контейнера КТЗВ-0,2 (80 % бетон + 20 % железо).

При толщине стенок защитного контейнера 15 см масса композита бетон + железо превышает 1,5 т, плотность равна  $3,44 \text{ г/см}^3$ . Максимальная плотность гетерофазной керамики состава 100 % (50%  $TiB_2$  + 50%  $W_2B_5$ ) равна  $10,27 \text{ г/см}^3$ . Следовательно, для данной керамики при сохранении массы наполнителя возможно уменьшение толщины стенок с 15 см до 6,5 см. Результаты расчетов МЭД с уменьшенной толщиной керамической стенки по сравнению с обычным КТЗВ-0,2 приведены на рис. 5.

Результаты показывают, что даже при уменьшении толщины стенки значение МЭД примерно в 3 раза меньше, чем при использовании композита бетон + железо. Это может быть связано с тем, что массовые коэффициенты поглощения для вольфрама, входящего в состав гетерофазной керамики, больше чем у железа и больше чем у натрия,

калия и кальция, которые входят в состав бетона. Если использовать в качестве наполнителя 80 % (50 %  $TiB_2$  + 50 %  $W_2B_5$ ) + 20 %  $B_4C$  с плотностью  $8,72 \text{ г/см}^3$ , то при сохранении толщины стенки в 6,5 см мы получаем массу наполнителя из керамики на 200 кг легче, чем смесь бетона и железа в КТЗВ-0,2. При этом значение МЭД на боковой поверхности контейнера примерно на 60 % меньше, чем для стандартного КТЗВ-0,2 (рис. 5, б).

## Выводы

Проведено моделирование для определения радиационных нагрузок от РАО, находящихся в контейнере марки КТЗВ-0,2 с различными защитными материалами. В качестве альтернативного бетону материала были выбраны композитные керамики высокой плотности. Рассчитаны мощности экспозиционной дозы в контрольных точках. Выполнено сравнение значений МЭД для стандартного наполнителя защитного контейнера, состоящего из смеси стали и бетона со значениями МЭД для керамических наполнителей.

Показано, что наиболее эффективным материалом для контейнеров РАО является гетерофазная керамика X % (50%  $TiB_2$  + 50%  $W_2B_5$ ) + Y %  $B_4C$  при весовых соотношениях от 100 % (50 %  $TiB_2$  + 50 %  $W_2B_5$ ) до 80 % (50%  $TiB_2$  +

+ 50%  $W_2B_5$ ) + 20 %  $B_4C$ . При дальнейшем уменьшении содержания (50 %  $TiB_2$  + 50 %  $W_2B_5$ ) сохраняется положительный баланс значений МЭД по сравнению с обычным композитом бетон + железо. При толщине стенки в 6,5 см значения МЭД меньше вплоть до состава керамики 60 % (50 %  $TiB_2$  + 50 %  $W_2B_5$ ) + 40 %  $B_4C$ , при котором МЭД на 10 % больше, чем при использовании композита бетон + железо толщиной 15 см.

Таким образом, при использовании керамики при сохранении значений МЭД можно существенно уменьшить габариты и массу контейнера. При сохранении массы контейнера возможно уменьшение габаритов и снаряжение контейнера РАО с повышенной активностью при сохранении значений МЭД.

В зависимости от поставленной задачи и выборе критериев (максимальная МЭД, масса контейнера, максимальная активность РАО, габаритные размеры) возможна оптимизация характеристик контейнера методами математического моделирования. В частности, как показано в работе [5], можно уменьшить МЭД при помощи нахождения оптимального соотношения  $R/Z$ , где  $R$  — радиус цилиндра с РАО а  $Z$  — его высота. Ожидается, что при соответствующей оптимизации данного параметра можно дополнительно уменьшить МЭД до 30 %.

#### Список литературы

1. Батий В. Г., Егоров В. В. и др. Оценка максимально допустимой активности упаковок с высокоактивными отходами // Проблемы безопасности атомных электростанций и Чернобыля. — 2008. — Вып. 9. — С. 31–36.
2. Москвин В. М., Иванов Ф. М., Алексеев С. Н., Гузев Е. А. Коррозия бетона и железобетона, методы из защиты. — М.: Стройиздат, 1980. — 536 с.
3. Саенко С. Ю. Технологические подходы для обеспечения безопасности при обращении с радиоактивными отходами // Энергетика, экономика, технологии, экология. — 2007. — № 2(21). — С. 27–35.
4. Breismeister J. F., ed. MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code. LA-13709-M. Los Alamos National Laboratory: Los Alamos, NM. — 2000.
5. Писменецкий С. А., Рудычев В. Г., Рудычев Е. В. Анализ внешнего гамма-излучения цилиндрической емкости с РАО // Вісник Харк. ун-ту. Серія: Ядра, частинки, поля. — 2008. — № 808. — С. 53–60.

Надійшла до редакції 21.07.2010.