

Instant aktivitás-kikerülés a mélygeológiai tárolóban elhelyezett üzemanyagból

Slonszki Emese

MTA Energiatudományi Kutatóközpont

1525 Budapest, Pf. 49, tel: 392-2222/3445

A mélygeológiai tárolót úgy alakítják ki, hogy az ott elhelyezendő kiegészítő üzemanyag és a bioszféra között több mérnöki és természetes gát is legyen. A földfelszín alatt végbemenő folyamatok eredményeként a mérnöki gátak épségére csak bizonyos ideig lehet számítani. A mérnöki gátak feltételezett sérülése után számolni kell azzal, hogy a fűtőelemek belsejéből radioaktív izotópok kerülnek ki.

A kikerülő aktivitás nagyságát és elemi összetételét számos tényező befolyásolja. A fűtőelemekben található aktivitásnak csak egy kisebb része kerülhet ki a gátak sérülésekor, ez az ún. instant (vagyis azonnali) kikerülés. Az instant kikerülés több mechanizmushoz is köthető.

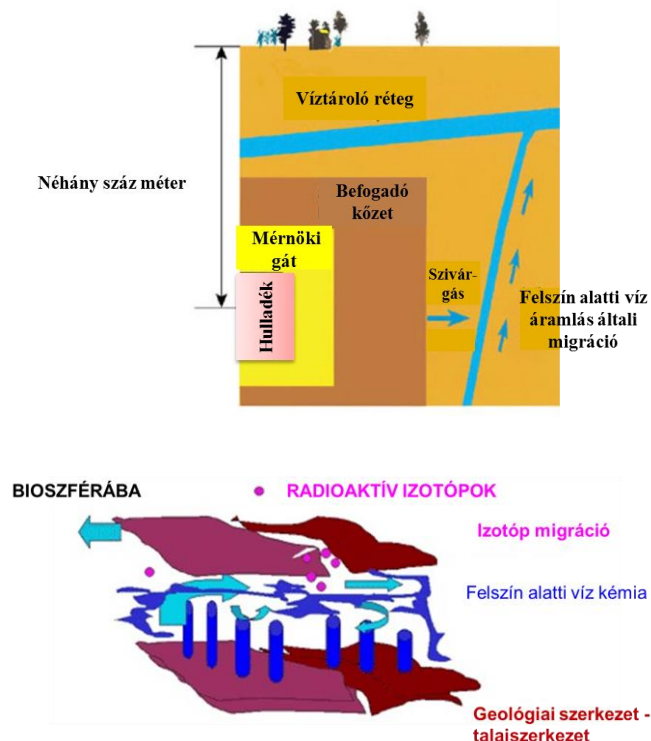
Az EU FIRST-Nuclides projekt keretében arra kerestünk választ, hogy mekkora az instant kikerüléssel kijutó izotópok mennyisége a leltári mennyiséghez képest. A projektben résztvevő laboratóriumokban végzett melegkamrás mérésekből kapott aktivitás arányok meglepően jól egyeztek a paksi atomerőműben, VVER-440 fűtőelemekkel végzett mérések kikerülési arányaival. Ennek alapján a projekt eredményei jó támpontot jelenthetnek a hazai tároló kialakításának tervezéséhez is.

Bevezetés

Egy mélygeológiai tároló tervezésénél számos tényezőt kell figyelembe venni. Vizsgálni kell a tároló kialakítására alkalmasnak tűnő kőzet ellenállóságát geológiai, hidrológiai és geokémiai egyaránt. A kiegészítő üzemanyag mélygeológiai tárolóban történő végleges elhelyezéséhez a tárolókat úgy kell megtervezni és működtetni, hogy azokban az üzemanyag és a bioszféra között több mérnöki és természetes gát legyen. Mérnöki gátat jelentenek azok az eszközök, amelyek késleltetik a hulladék felszín alatti vízzel történő érintkezését, vagyis az olyan konténerek, melyeket a kiegészítő üzemanyag befogadására terveznek, valamint azok tömedékelése és térkitöltése (pl. bentonittal való beborítás). A többszörös védelmi gátban a befogadó kőzet tölti be a természetes gát szerepét.

A földfelszín alatt végbemenő folyamatok eredményeként a mérnöki gátak épségére azonban csak bizonyos ideig lehet számítani [1]. A gátak (amibe bele tartozik a konténerek és a fűtőelemek burkolata is) feltételezett sérülése után számolni kell azzal, hogy a fűtőelem burkolata megsérül, aminek következtében a kiegészítő fűtőelem érintkezhet a felszín alatti vízzel. A felszín alatti víz általi transzport az a mechanizmus, mellyel a tárolóban elhelyezett kiegészítő fűtőelemekből a radioaktív izotópok a bioszférába vándorolhatnak.

A radioaktív izotópoknak a felszín alatti víz áramlásával bekövetkező mozgását akadályozza a radioaktív izotópok geológiai közegben történő szorpciója [2]. A szorpció folyamatokat a felszín alatti víz és a kőzetrétegek kémiai összetétele befolyásolja, míg a felszín alatti víz vízkémia a kőzetrétegeknek és a felszín alatti víz eredetének függvénye.



1. ábra: A radioaktív izotópok bioszférába való kikerülése [1] [2]

Instant kikerülés

A fűtőelemből kikerülő aktivitás mértéke

A fűtőelemből kikerülő aktivitás nagyságát és elemi összetételét számos tényező befolyásolja. A transzport folyamat jellemzésére meg kell becsülni a kiégett fűtőelemek beoldódásának, valamint a különböző radioaktív izotópok kikerülésének a sebességét.

A kiégett fűtőelemek beoldódási sebessége függ a kiégett fűtőelem és a felszín alatti víz összetételétől ugyanúgy, mint azon redoxi körülményektől, melyeken a beoldódás történik [3]. A pH tartomány szintén hatással van az oldhatóságra. Egyrészt bizonyos radioaktív izotópok oldhatósága adott pH-n függ az oldatban jelen levő kémiai formájuktól, másrészt irodalmi adatok mutatják a beoldódódás erős pH függését [4].

A véglegesen elhelyezésre kerülő kiégett fűtőelemekből kikerülő aktivitásnak három fontos, egymástól időben elkülöníthető forrása van:

- a fűtőelem réskaktivitása, ami a burkolat sérülése után néhány nap, néhány hét alatt kikerül a fűtőelemből,
- az üzemanyag szemcsék felületén összegyűlt hasadási termékek beoldódása a felszín alatti vízbe,
- az üzemanyag mátrixban (szemcsék belsejében) található hasadási termékek, melyek kikerülése az UO_2 oldódásával együtt megy végbe, mely folyamat kb. 30-300 évvel a burkolat indermetikusává válása után válik dominánssá.

A fűtőelemekben található aktivitásnak azonban csak egy kisebb része kerülhet ki a gátak sérülésekor, ez az ún. instant kikerülés. Az instant kikerülés (angolul instant release

fraction - IRF) több mechanizmushoz is köthető, és az első két folyamat tartozik bele.

Az Európai Unió 7. kutatási keretprogramján belül a FIRST-Nuclides projektben azt vizsgáltuk, hogy a leltári mennyiséghez képest mekkora az instant kikerüléssel kijutó izotópok mennyisége. Ennek becsléséhez az instant kikerüléshez köthető mechanizmusok alaposabb megismerése szükséges.

A radioaktív izotópok várható eloszlása PWR és BWR fűtőelem-kazettákban

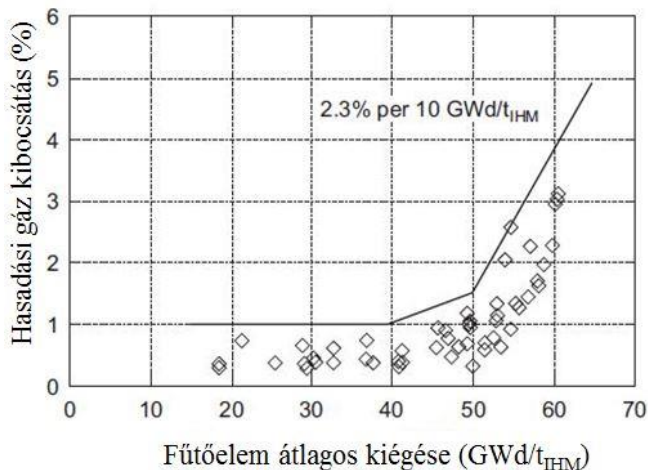
A kiégett kazetták számos anyagot tartalmaznak (így pl. urán-dioxid, Zircaloy), továbbá különböző acél vagy nikkel ötvözeteket használnak a fűtőelem-kazetták szerkezeti anyagaként. A kiégett fűtőelem nagymértékben UO_2 , kevés (néhány százalék) más aktinida és hasadási termék (1. táblázat). A hasadási termékek lehetnek gázneműek (hasadási gáz: xenon, kripton), illékonyak (cézium, jód, bróm, tellúr, rubídium, szelén) és nem illékonyak (fémek, az UO_2 mátrixban oldódó és nem oldódó oxidok, ^{14}C). Az IRF értékek meghatározásánál figyelembe kell venni az aktivációs és a hasadási termékek eloszlását ezen anyagokban. Az eloszlásról az 1. táblázat ad felvilágosítást, míg a legfontosabb radioaktív izotópokra vonatkozó IRF értékek a továbbiakban lesznek meghatározva. A reaktorban végzett besugárzás hatására keletkező radioaktív izotópok egy része a keletkezése helyén marad, míg másik része különböző mechanizmusok hatására migrálni kezd. Attól függően, hogy az IRF becsléséhez használt módszer jól értelmezhető-e és a felhasznált adatbázis megfelelő minőségű-e, beszélhetünk „best estimate” (BE) és „pessimistic estimate” (PE) IRF értékekről.

1. táblázat A radioaktív izotópok várható eloszlása PWR és BWR fűtőelem-kazettákban [5] [6]

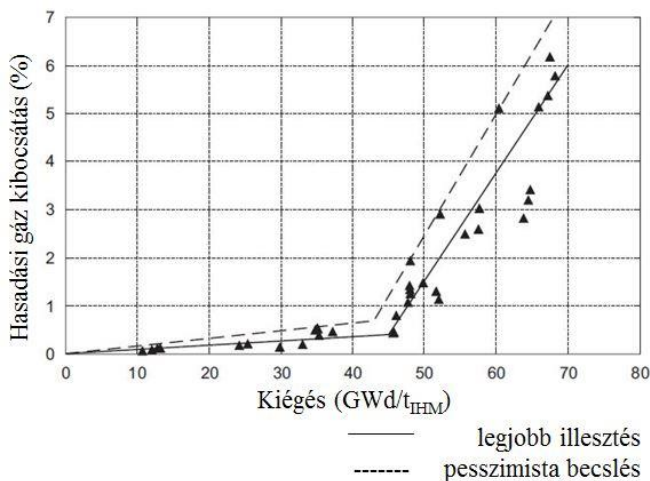
Összetevők	Főbb radioaktív izotópok
Fűtőelem-kazetta szerkezeti anyagagai	
Cirkónium	^{14}C (szerves)
Zircaloy, Inconel, acél	^{14}C (szerves), ^{36}Cl , ^{59}Ni , ^{63}Ni
UO_2 tableta	
Rés	Hasadási gázok, illékonyak (^{129}I , ^{137}Cs , ^{135}Cs , ^{36}Cl , ^{79}Se , ^{126}Sn), nem illékonyak (^{14}C)
Peremréteg pórusok	Hasadási gázok, illékonyak (^{129}I , ^{137}Cs , ^{135}Cs , ^{36}Cl , ^{79}Se , ^{126}Sn) Sr
Peremréteg szemcsék	Aktinidák, hasadási termékek
Szemcsehatárok	Hasadási gázok, illékonyak (^{129}I , ^{137}Cs , ^{135}Cs , ^{36}Cl , ^{79}Se , ^{126}Sn), fémek (^{99}Tc , ^{107}Pd)
Szemcsék	Aktinidák, maradék hasadási termékek, aktivációs termékek
MOX tableta	
Rés	Ugyanaz, mint az UO_2 -nál
Szemcsehatárok és pórusok a PuO_2 szemcsékben	Ugyanaz, mint az UO_2 -nál
Szemcsék	Ugyanaz, mint az UO_2 -nál

Hasadási gáz kibocsátás PWR és BWR UO₂ fűtőelemekből

A hasadási gázok kikerülése (angolul fission gas release – FGR) az UO₂ tablettából szorosan összefügg a lineáris hőteljesítménnyel, ami pedig a tabletták hőmérsékletétől függ. A fűtőelem-kazetta méretezésének és a sugárzási körülményeknek az optimalizálása hozzájárul a lineáris hőteljesítmény alacsonyan tartásához és így az FGR minimalizálható. Ennek eredményeként az FGR tipikusan kisebb, mint 1% 40 GWd/t_{IHM} PWR fűtőelemekre vonatkozóan, ahogy ezt a 2. ábra mutatja. A kiégés növekedésével nő a hasadási gázok kikerülése, amit jól tükröznek a 70 GWd/t_{IHM} kiégésig terjedő francia PWR fűtőelemek eredményei (3. ábra).

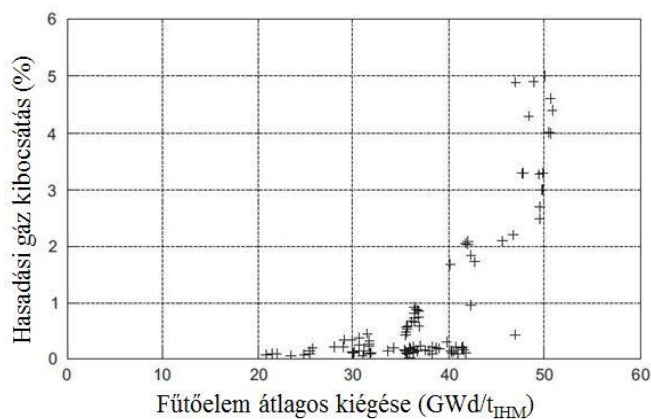


2. ábra: Hasadási gáz kibocsátás PWR UO₂ fűtőelemekből Vesterlund és társai eredményei alapján [5] [6] [7]



3. ábra: Hasadási gáz kibocsátás PWR UO₂ fűtőelemekből francia PWR eredmények (CEA adatbázis) alapján [5] [6]

A BWR UO₂ fűtőelemeknél – amelyek a PWR UO₂ fűtőelemeknél enyhén nagyobb teljesítményen működnek – nagy kiégéseknél erőteljesebb hasadási gáz kibocsátás növekedés figyelhető meg 45 GWd/t_{IHM} kiégés felett, ahogy ezt a 4. ábra mutatja. Az eredmények alapján az átlagos FGR legjobb becsléssel 5% lenne BWR fűtőelemre. Ugyanakkor más (nem publikált) adatok valamivel nagyobb, 10%-ig terjedő átlagos gáz kibocsátást jeleznek 50 GWd/t_{IHM} kiégésnél.

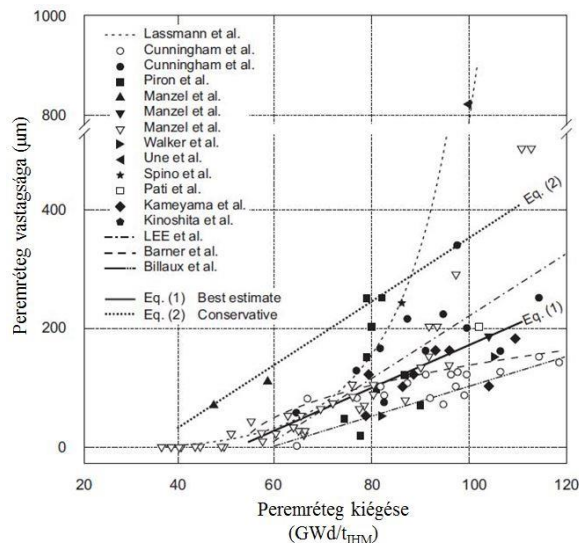


4. ábra: Hasadási gáz kibocsátás BWR UO₂ fűtőelemekből Schrire és társai eredményei alapján [5] [8]

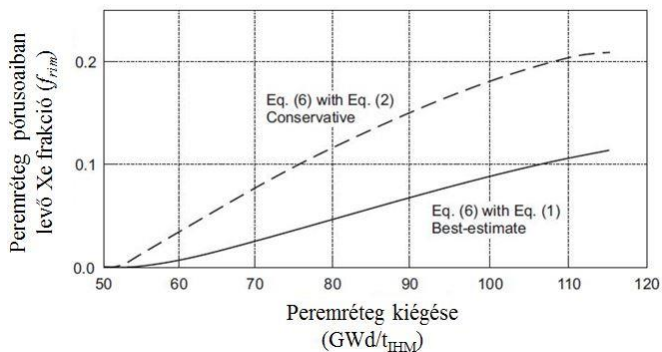
Hasadási gáz viselkedés nagy kiégésű UO₂ tablettában és a peremréteg

A tabletták peremrétegének szerkezete nagy (kb. 40 GWd/t_{IHM} fölötti) kiégéseknél átalakul, mert a felszaporodott plutónium a lokális teljesítménysűrűség növekedését okozza. A peremet alkotó szemcsék mérete lecsökken (~ 0,5 μm), az üzemyanyag porozitása a hasadási gázbuborékok miatt megnő (10-15% nagy zárt porozitás mikrométeres túlnyomós hasadási gázbuborékokkal töltve) [5]. Ezt az átstrukturálódott részt nagy kiégésű szerkezetnek, vagy peremrétegnek (angolul rim) nevezik. A burkolattal való mechanikai, ill. kémiai kölcsönhatásban a tablettának ez a része vesz részt.

Koo és társai [9] a peremréteg jellemzőinek, úgymint a peremréteg vastagságának és hasadási gáz tartalmának kiégés függését tanulmányozták. A kapott eredmények azt mutatják, hogy a lokális teljesítménysűrűség növekedése miatt hirtelen nő a lokális kiégés is. Bár a külső néhány μm elérheti a tabletták átlagos kiégésének akár kétszeresét is, az átlagos lokális kiégés a teljes peremrétegen belül a tabletták átlagos kiégésénél 1,33-szor nagyobb. Az 5. ábra 1. és 2. egyenlete mutatja a BE és a PE illesztéseket. Mivel a PE illesztés azt sugallja, hogy 30 GWd/t_{IHM} kiégésnél is van peremréteg, aminek azonban ellent mondanak a mikroszerkezeti vizsgálatok, ezt az egyenletet módosították és a továbbiakban már a módosított egyenletet alkalmazták.



5. ábra: A peremréteg vastagsága a kiégés függvényében [5][6][9]



6. ábra: A peremréteg pórusaiban levő Xe frakció a kiégés függvényében [5] [9]

Koo és társai a BE és a PE egyenleteket kombinálták egy, a Xe eloszlásra vonatkozó kifejezéssel (ez a 6. ábrán 6. egyenletként van feltüntetve), azzal a céllal, hogy meghatározzák azt a Xe frakciót a tablettában, ami a

2. táblázat Hasadási gázok a pórusokban és a peremrétegben [5] [6]

Tabletta átlagos kiégés (GWd/t _{IHM})	Peremréteg kiégés (GWd/t _{IHM})	A pórusokban jelen levő FG BE (%)	A pórusokban jelen levő FG mPE (%)	A peremrétegben (pórus+rés) jelen levő FG BE (%)	A peremrétegben (pórus+rés) jelen levő FG mPE (%)
37	49	0	0	0	0
41	55	0	0,5	0,7	1,25
48	64	2	3	2,7	4,3
60	80	4	8	6,3	9,8
75	100	8	14	10,8	16,5

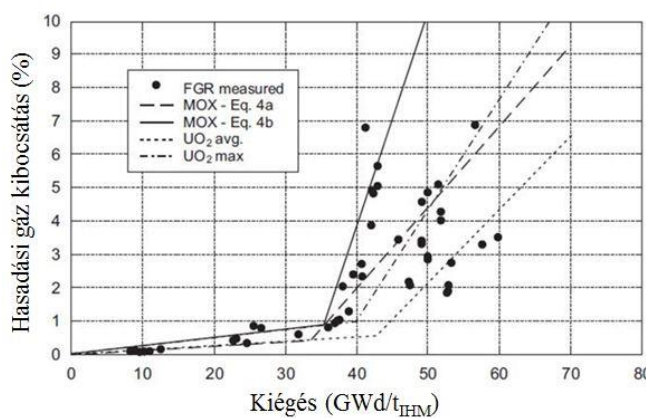
A peremréteg nagyfokú átstrukturálódása ellenére a hasadási gázok az új pórus szerkezetben maradnak, ami magyarázza a kismértékű hasadási gáz kikerülést nagy kiégésű PWR fűtőelemeknél. Mindazonáltal, a peremrétegben levő hasadási gáz úgy tekinthető, hogy kikerült a tablettá mátrixból, még, ha ezáltal nem is szabadultak fel üres helyek a fűtőelemekben, azok a hasadási termékek, amelyek nem képeznek szilárd oldatot az UO₂-ban, várhatóan kikerülnek a szemcsékből az átstrukturálódás alatt. Mindezek eredményeként tehát a hasadási gázok a tablettá szemcsehatárok leltárához tartozva kikerülhetnek mélygeológiai tárolás során, amennyiben a felszín alatti víz áthatol a szemcsék határfelületein. Megfontolandó azonban, hogy a kikerülési modellben a pórusokban jelen levő hasadási gázokat az IRF részeként kell-e figyelembe venni kis szemcseátmérőjük miatt, vagy úgy kell tekinteni, hogy a mátrix oldódásával kerültek ki.

MOX üzemanyag hasadási gáz kibocsátása

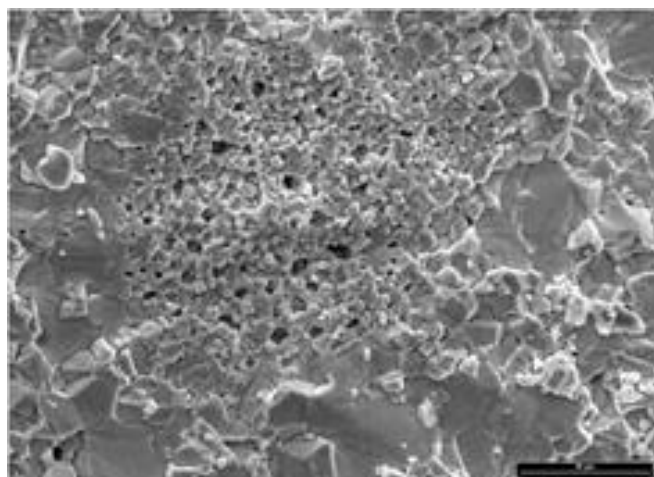
MOX üzemanyag (angolul Mixed OXide fuel, azaz kevert oxid üzemanyag) tekintetében lényegesen kevesebb feldolgozható adat áll rendelkezésre, mint az urán-dioxidnál. A CEA utóvizsgálati eredményei alapján [5] [6] azonban elmondható, hogy a hasadási gáz kibocsátás PWR MOX fűtőelemeknél gyorsan nő 40 GWd/t_{IHM} fölött, 50 GWd/t_{IHM}

peremréteg pórusaiban maradt, feltételezve, hogy az nem került ki a résbe az átstrukturálódás során [5] [6] [9]. Ezt mutatja a 6. ábra, melyen a BE Xe frakció, ami a peremréteg pórusaiban csapdába került 48 GWd/t_{IHM} átlagos kiégésnél, azaz 64 GWd/t_{IHM} peremréteg kiégésnél ~ 2%, és 8%-ig nőhet a kiégés függvényében (75 GWd/t_{IHM} átlagos és 100 GWd/t_{IHM} peremréteg kiégés esetén). A 2. táblázat egyaránt tartalmazza a pórusokban jelenlevő hasadási gáz mennyiségre a BE és a módosított PE egyenlettel, különböző kiégéseknél kapott eredményeket, valamint a teljes hasadási gáz leltárból a peremrétegben található százalékos kikerülés értékeket (pórus+rés). Összeadva a szabad helyeket és a zárt pórusokat adott kiégésnél a teljes hasadási gáz kibocsátásra kb. a 2-4. ábrákon látható mért értékek adódnak. Nagy peremréteg kiégésnél a legtöbb hasadási gáz a pórusokba különül el az átstrukturálódást követően, ami kb. 85%-ot jelent 80 GWd/t_{IHM} peremréteg kiégésnél. Az eredmények tisztán mutatják, hogy a legtöbb hasadási gáz, ami a peremrétegben keletkezett, a pórusokban van jelen (kb. 70-80%-a).

kiégésnél az FGR eléri az 5%-ot, míg 70 GWd/t_{IHM}-nál a 10%-ot (7. ábra). Fokozott FGR figyelhető meg az UO₂ üzemanyaghoz képest nagy kiégésnél, ami a nagy reaktivitásból és a nagy teljesítmény/hőmérséklet arányból, valamint mikroszerkezeti tényezőkből (8. ábra) ered.



7. ábra: Hasadási gáz kibocsátás PWR MOX és UO₂ üzemanyagból besugárzás után [5] [6]



8. ábra: Átstrukturálódott MOX üzemanyag [5] [6]

MOX tablettában 10 μm átmérőjű Pu-gazdag agglomerátumokat találtak egy, a tableta többi részénél sokkal nagyobb kiégésű részben, ami egy, a peremréteggel analóg szerkezetet eredményezett abban az esetben, amikor ezek az agglomerátumok a tableta külső részének közepén helyezkednek el (8. ábra). A nagyméretű, Pu-gazdag agglomerátumok a teljes felszín közel 11%-át teszik ki, az átlagos kiégés pedig 2,5-szer nagyobb, mint a tableta átlagos kiégése. Így a Pu-gazdag agglomerátumban jelenlévő hasadási termékek a teljes leltár kb. negyedét adják. A legtöbb gáz az agglomerátumok pórusaiban keletkezett. A nagy agglomerátumok felületi eloszlása alapján kapott értékek megegyeznek a szemcseközi gáz frakcióban alapvetően jelenlévővel, Pu-gazdag átstrukturálódott agglomerátumokban.

A hasadási gáz mennyiségét MOX tablettában a részben levő, a szemcsehatárokon és a nagyméretű, Pu-gazdag agglomerátum pórusaiban levő gázok összessége adja (3. táblázat). A pesszimista becslés szerint a teljes aktivitás tartalmazza a tableta külső részén, a tableta sugarától kifelé elhelyezkedő összes Pu agglomerátumot, azok méretétől függetlenül (pórusok+szemcsék). A táblázatban levő anyagok 2-3-szor nagyobbak azoknál, melyeket Johnson és McGinnes 2002-ben publikált [10], ám ők nem vették figyelembe a Pu-agglomerációkból kikerülő hasadási termékeket, csak a résből és a szemcsehatárokon keresztül kikerülőt.

Az egyértelmű, hogy, ha víznek van kitéve egy ilyen porózus régió, akkor valószínűleg gyorsan kimosódnak a pórusokban jelen levő hasadási termékek. Ám az a feltételezés, hogy az agglomerátumban levő hasadási termék leltár az IRF részét képezi nagyon konzervatív, mivel azok nem hozzáférhetőek a víz számára, amikor a fűtőelem megreped, ugyanis tömör, kis porozitású UO_2 szemcsék veszik körül őket. Mindazonáltal míg az adatok ismeretében állíthatjuk, hogy az UO_2 tablettában a peremréteg pórusok és a szemcsehatárok nem fogékonyak a kimosódásra, addig a MOX tablettára kevés adat áll rendelkezésünkre. Amíg azonban az anyagok migrációs viselkedését jobban megértjük, használhatónak tűnik a MOX tableta IRF értékének meghatározásához a BE és a PE módszer.

BWR MOX üzemanyagról jelenleg igen kevés adat érhető el. Haas és Lippens 1997-es adatai alapján [5] [11] 45-50 $\text{GWd}/t_{\text{HIM}}$ kiégésnél mintegy 25% a hasadási gáz kibocsátás.

3. táblázat Hasadási gáz eloszlás MOX tablettában különböző kiégéseknél [5] [6]

Kiégés ($\text{GWd}/t_{\text{HIM}}$), PWR		40	45	55	60
rés + szemcsehatár (%)	legjobb becslés	2	3,2	5,6	6,8
	pesszimista becslés	3,8	7,0	13,4	16,6
Pu-agglomerátumok (%)	legjobb becslés	25	30	30	35
	pesszimista becslés	50	50	50	50
% legjobb becslés		27	33	36	42
% pesszimista becslés		54	57	63	67
BWR			25		

Radioaktív izotópok kioldódása kiégett fűtőelemekből, IRF becslése

Bár a feldolgozott kiértékelések azt mutatják, hogy a résből és a szemcsehatáron keresztül kikerült radioaktív izotópok mennyisége csekély, mégis meg kell becsülni az átlagos értéküket, mivel a résből és a szemcsehatáron keresztül kikerült radioaktív izotópok mennyisége korrelál a hasadási gáz kibocsátással az egyes fűtőelemeknél, ami pedig megbízhatóan becsülhető kb. 65 $\text{GWd}/t_{\text{HIM}}$ kiégésig PWR fűtőelemeknél és 50 $\text{GWd}/t_{\text{HIM}}$ kiégésig BWR fűtőelemeknél [5] [6].

A radioaktív izotópok kikerülését a sérült fűtőelemekből két folyamat szabályozza. Az egyik az UO_2 szemcsék lassú beoldódása, a másik pedig néhány elem, mint a Cs, I és Cl gyors kikerülése. A kiégett üzemanyag hosszú távú tárolásának biztonsági elemzésénél a gyors kikerülés, vagyis az IRF magában foglalja a tableta/burkolat közötti résből való kikerülést, ami a vizes közeggel való érintkezés első heteitől az első néhány hónapjáig tart, valamint a későbbi, szemcsehatáron elkülönült anyagok kikerülését. Az ugyan még nem tisztázott, hogy milyen mértékű szemcsehatáron összegyűlt hasadási gáz kerül elsődlegesen kibocsátására, ám egyes izotópok mennyisége elkülönítve már meg lett határozva.

Az IRF meghatározása különösen fontos a biztonsági elemzésekben, mivel az elsődlegesen kikerült radioaktív izotópok egy része (pl. ^{129}I , ^{36}Cl) egyaránt hosszú felezési idejű és geokémiai mozgékony.

Bár jelenleg a legtöbb PWR és BWR reaktorban a besugározott üzemanyag UO_2 tableta Zircaloy burkolatban, újabban a MOX üzemanyag használata is egyre gyakoribbá vált. Az üzemelési körülmények jelentős hatással vannak a tableta mikroszerkezetére és néhány radioaktív izotóp elkülönülésére az UO_2/MOX szemcsékből. Különösen a hasadási gázok és az illékony hasadási termékek (mint a Cs és I) esetében tapasztalható jelentős reaktoron belüli kikerülés a tableta mátrixából. A hasadási gáz kikerülés különösen fontos fűtőelem viselkedési mutató, ezért alapos kutatásokat végeztek a kikerülést szabályozó paraméterek és üzemelési körülmények, mint a diffúziós együtthatók és szemcseméret

növekedés, valamint a lineáris hőteljesítmény és a kiégés szerepéről. 40 GWd/ t_{HIM} kiégés felett képződő peremrétegnél változik a tabletták mikroszerkezete, ami szintén befolyásolhatja a kikerülést vizes kimosatási körülmények között. A reaktoron belüli hasadási gáz kibocsátás és néhány hasadási termék gyors kikerülése között fennálló kapcsolatot rövid idejű kimosatásos kísérletekkel vizsgálták [5] [6]. Az eredmények szerint a Cs és a I kikerülése a hasadási gáz kibocsátás növekedésével nő. Ezek az összefüggések különösen jelentősek, mivel az izotópok nagyszámú fűtőelemből való kibocsátásának mérése bonyolult és költséges feladat, és segítségükkel empirikus kapcsolat nyújthat alapot azon kiégett fűtőelemekből való potenciális kikerülés becsléséhez, amelyek mélygeológiai tárolókban kerülnek elhelyezésre. Bár az összefüggések empirikusak, mégis van némi mechanisztikus alapjuk, mivel, mint a hasadási gázok esetében, ezeknek az elemeknek a diffúziós együtthatója az UO_2 tablettában, reaktoron belüli üzemelési hőmérsékleten viszonylag nagy, sok más elemhez képest. Például Lassmann és társai 2002-ben azt írták [12], hogy a Cs/Xe diffúziós együtthatóinak aránya UO_2 tablettában 0,33, ami konzisztens a Cs kis frakciójának kikerülésével kimosatásos kísérletekben a megfelelő hasadási gáz kibocsátáshoz képest.

Sok reaktornál jelentkezik az egyre növekvő kiégés iránti igény, ami mintegy megkövetelte a geológiai tároláshoz szükséges, hasadási termékek gyors kikerülését tartalmazó adatbázis bővítését nagy kiégésű, 50 GWd/ t_{HIM} fölötti, fűtőelemekkel végzett kísérleti eredményekkel. Emellett szintén fontos tényező a fűtőelem lineáris hőteljesítménye, ami nagymértékben meghatározza a hasadási gáz kikerülését. Különösen a nagy lineáris hőteljesítmény közepes kiégésnél vezethet nagyon nagy hasadási gáz kibocsátáshoz, ezért ezt a tényezőt figyelembe kellene venni a hasadási termékek kikerülésének értékelésénél.

A Johnson és társai által 2004-ben és 2005-ben publikált eredmények szerint [5] [6] viszonylag alacsony IRF érték tartozik az alacsony, vagy közepes kiégésű fűtőelemekhez, míg potenciálisan nagy a nagy kiégésűekhez, melyeknél nagyobb az FGR és jelentős a fűtőelem átstrukturálódása is (4. táblázat). Meg kell jegyezni, hogy a 4. táblázat reprezentatív jellegű és a benne szereplő IRF értékek pesszimista módszerrel lettek meghatározva, azt feltételezve, hogy a víz az összes pórusba gyorsan behatol, továbbá kombinált, vagyis tartalmazza a résből és a szemcsehatáron keresztüli kikerülést, valamint a rim rétegben (rés+pórus) levő összes hasadási terméket. A ^{14}C és ^{36}Cl izotópok becslése különösen pesszimista, mivel az elérhető, korlátozott mértékű adataik alapján kevésbé világos a kikerülési mechanizmusuk (a ^{14}C IRF értéke független a fűtőelem lineáris hőteljesítményétől [5], a ^{36}Cl IRF értéke pedig élesen nő a hasadási gáz kibocsátással).

Johnson és társai 2012-ben publikált tudományos eredményeikkel [13] a nagy kiégésű fűtőelemekből való hasadási termékek kikerülési mechanizmusának alaposabb megismerését segítik. Nagy kiégésű fűtőelemekből (58-75 GWd/ t_{HIM} kiégés, BWR, PWR-ek és MOX üzemanyag minták) való ^{137}Cs , ^{129}I és ^{79}Se gyors, vizes kikerülését vizsgálták oxidáló körülmények között. Méréseik a fűtőelem mátrixból való beoldódásra terjedtek ki, így nem használták a baleseti elemzéseknél alkalmazott IRF meghatározást (gyors kikerülés a résből és később a szemcsehatáron keresztül).

4. táblázat Legjobb és (pesszimista) IRF becslések PWR UO_2 tablettára $t=0$ időpontban [5] [6]

Kiégés (GWd/ t_{HIM})	37	41	48	60	75
Radioaktív izotóp	IRF (a teljes leltár %-ában)				
hasadási gáz	2 (2)	2 (2)	4 (6)	10 (16)	18 (26)
^{14}C	10	10	10	10	10
^{36}Cl	5	5	10	16	26
^{79}Se	1 (1)	1 (1)	3 (4)	7 (11)	11 (17)
^{90}Sr	1 (1)	1 (1)	3 (4)	7 (11)	11 (17)
^{99}Tc	1 (1)	1 (1)	3 (4)	7 (11)	11 (17)
^{107}Pd	1 (1)	1 (1)	3 (4)	7 (11)	11 (17)
^{126}Sn	1 (1)	1 (1)	3 (4)	7 (11)	11 (17)
^{129}I	3 (3)	3 (3)	4 (6)	10 (16)	18 (26)
^{135}Cs	2 (2)	2 (2)	4 (6)	10 (16)	18 (26)
^{137}Cs	2 (2)	2 (2)	4 (6)	10 (16)	18 (26)

Mérési eredményeik feltárták, hogy a minta előkészítési módszer jelentős mértékben befolyásolja a kibocsátott hasadási gáz értékeket. Az a módszer, mellyel a tablettát és a burkolatot elválasztják egymástól, jelentős alulbecslést okozhat. Így ahhoz, hogy értékelni tudják a kapott eredményeket, a korábbiakat újraszámolták. Azt kapták, hogy 4-8% a hasadási gáz kibocsátás a peremrétegben 60 GWd/ t_{HIM} kiégésnél. Az általuk nagykiégésű fűtőelemekre kapott hasadási gázokhoz viszonyított kikerülési arányok nagyjából összhangban vannak a korábban Johnson és társai [5] [6] által összefoglalt eredményekkel, mely szerint a hasadási gázoknál tipikusan kisebb más frakciók, pl. a ^{137}Cs és a ^{129}I kikerülése, a ^{137}Cs hasadási gázhoz viszonyított kikerülési aránya pedig az 1:3 tartományban van. A ^{129}I esetében az általuk kapott hasadási gázhoz viszonyított kikerülési arány a korábban publikált 1:1 alatt marad [5] [6]. A ^{129}I kikerülések, bár nagyobbak a korábbiaknál, szinte minden esetben a hasadási gáz kibocsátás alatt maradnak. Alapvetően az feltételezhető, hogy a reaktoron belüli kimosatás során a kikerülő cézium mennyiségének meghatározásában a diffúzió dominál. Az eredményekben jelentkező eltérések ugyanakkor arra utalnak, hogy más tényezők is befolyásolják a ^{137}Cs izotóp vízben való kikerülését.

Az adatok nem támasztják alá azt a feltevést, hogy a szemcsehatáron elkülönült radioaktív izotópok könnyen kimosódnak. Ezért további módszerek kidolgozása szükséges ahhoz, hogy megkülönböztethető legyen a résből és szemcsehatárról történt kikerülés. Ugyanakkor a hasadási gáz kikerüléssel összefüggő ^{137}Cs és ^{129}I izotópok meghatározása rendkívül hasznos a kiégett fűtőelemek biztonsági értékelése szempontjából, különösen, amikor az kombinálva van a teljes reaktor zóna végső hasadási gáz kibocsátás értékeinek meghatározásával.

A FIRST-Nuclides projekt

A FIRST-Nuclides projekt [14] keretében végrehajtott oldódásos kísérletekben különböző, nagy kiegészítő fűtőelem minták vizsgálata lett elvégezve az IRF meghatározása céljából. A jellemzően egy éves időtartamú mérésekben voltak burkolattal ellátott, burkolat nélküli és UO_2 törmelékkel álló minták is. A kísérletek többségében UO_2 üzemanyagot használtak, de volt néhány MOX és TRISO (TRistructural ISOtropic fűtőelem, gázhűtésű reaktorok üzemanyaga) minta is. A mérésekből meg lett határozva a vízzel érintkező fűtőelemekből kikerülő radionuklidok mennyisége, különös tekintettel a még kevésbé ismert Se és ^{14}C esetében, továbbá a kísérleti adatok alapján korrelációk lettek felállítva a hasadási gázok kibocsátása és a Cs és I izotópok korai kikerülése (IRF) között.

Eredmények, következtetések

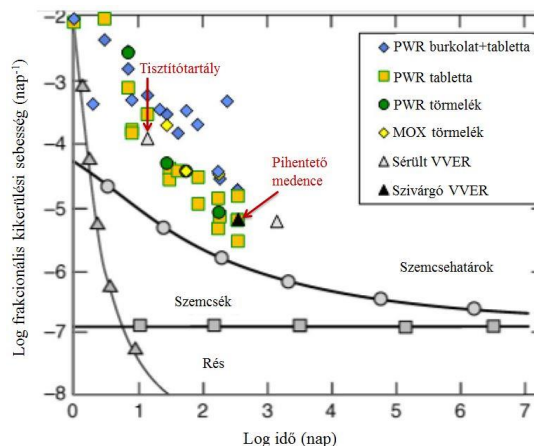
Összefoglalóan megállapíthatjuk, hogy a FIRST-Nuclides projekt keretében elvégzett munka eredményeként a meglévő adatbázis további nagy kiegészítő minták értékelésével bővíthet.

Az elvégzett oldódásos mérések jelentős különbségeket tártak fel az egyes elemek izotópjainak beoldódása között. Megfigyelték, hogy a Cs, Rb, Sr, Mo, Tc gyorsabban oldódik az uránnál, ami a szemcsehatárokon történő felhalmozódásukkal magyarázható. Ezzel szemben az aktinoidák és lantanoidák az urán-dioxid mátrixszal együtt oldódnak be. A Ru, Rh, Zr fémek zárványokat képez a kiegészítő tablettákban és lassabban oldódik a mátrixnál.

A gadolínium tartalmú tablettákból az UO_2 oldódása sokkal lassabban megy végbe vízben (a talajvizet szimuláló oldatban), mint a gadolíniumot nem tartalmazó tablettákból.

Az oldódást rengeteg egyéb tényező is befolyásolja, pl. a felszín alatti víz összetétele, karbonát- és vastartalma, a vízben oldott gázok mennyisége és összetevői, a radiolízis során keletkező gázok, az oxigénpotenciál, az elektrokémiai körülmények. Az U, Sr és Tc oldódása redukáló atmoszférában (H_2) több nagyságrenddel lassabb, mint oxidáló atmoszférában.

Összevetve az erőművi tapasztalatokat a kísérleti eredményekkel, ahogy azt a 9. ábra is mutatja, a paksi VVER fűtőelemekkel végzett mérésekből számított kikerülési arányok meglepően jó egyezést mutatnak a melegkamrás kísérleti eredményekkel, annak ellenére, hogy a kiegészítők alacsonyabbak voltak és a hűtőközeget magas bórsavkoncentráció jellemezte.



9. ábra: A FIRST-Nuclides projekt oldódásos kísérleti eredményei

Mindezek alapján elmondható, hogy a projekt eredményei jó támpontot jelenthetnek a hazai tároló kialakításának tervezéshez is.

Irodalomjegyzék

- [1] <http://www.jaea.go.jp/jaeri/english/ff/news46/rd.html>
- [2] http://www.uee.kyoto-u.ac.jp/english/laboratory/radio_enviro/radio_enviro.htm
- [3] S. Röllin, S. K. Spahiu, U.-B. Eklund: Determination of dissolution rates of spent fuel in carbonate solution under different redox conditions with a flow-through experiment, *J. Nucl. Mat.* 297(2001) 231-243
- [4] Dobos D.: Elektrokémiai táblázat, Műszaki Könyvkiadó Budapest (1979)
- [5] L. Johnson, C. Poinssot, C. Ferry, P. Lovera: Estimates of the Instant Release Fraction for UO_2 and MOX Fuel at $t=0$, NAGRA Technical report 04-08, November 2004
- [6] L. Johnson, C. Poinssot, C. Ferry, P. Lovera: Spent fuel radionuclide source term model for assessing spent fuel performance in geological disposal. Part I: Assessment of the instant release fraction, *Journal of Nuclear Materials* 346 (2005) 56-65
- [7] G. Vesterlund, L.V. Corsetti: Recent ABB fuel design and performance experience, *Proc. of the 1994 International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, West Palm Beach, Florida, April 17-21, p.62.
- [8] D. Schrire, I. Matsson, B. Grapengiesser: Fission gas release in ABB SVEA 10x10 BWR fuel. *Proc. Int. Top. Mtg. LWR Fuel Performance*. 104-117, American Nuclear Society, La Grange Park. Ill. (1997)
- [9] Y.-H. Koo, B.-H. Lee, J.-S. Cheon, D.-S. Sohn: Pore pressure and swelling in the rim region of LWR high burnup UO_2 fuel, *J. Nucl. Materials* 295 (2001) 213-230.
- [10] L.H. Johnson, D.F. McGinnes: Partitioning of radionuclides in Swiss power reactor fuels. *Nagra Technical Report NTB 02-07* (2002)
- [11] D. Haas, M. Lippens: MOX fuel fabrication and in-reactor performance. *Proceedings Global '97*, Oct. 5-19, 1997, Yokohama, pp. 489-494.
- [12] K.A. Lassman, A. Schubert, J. van de Laar, C.T. Walker, On the diffusion coefficient of cesium in UO_2 fuel, fission gas behavior of water reactor fuels, in: *Seminar Proc.* 26-29, September 2000, NEA (2002) 321-334.
- [13] L. Johnson, I. Günther-Leopold, J. Kobler Waldis, H.P. Linder, J. Low, D. Cui, E. Ekeroth, K. Spahiu, L.Z. Evins: Rapid aqueous release of fission products from high burn-up LWR fuel: Experimental results and correlations with fission gas release, *Journal of Nuclear Materials* 420 (2012) 54-62
- [14] Slonszki Emese, Hózer Zoltán, Szabó Péter: Aktivitász-kikerülés a fűtőelemekből mélygeológiai tárolóban. *A FIRST-Nuclides projekt: Nukleon*, VII/2, 158 (2014. május)
- [15] http://www.firstnuclides.eu/ZonaPublica/3rd_Newsletter_final.pdf