

Technická zpráva číslo 203/2017

---

# BIOLOGICKÉ STÍNĚNÍ REAKTORU

---

Autoři: Karel Svoboda  
a kolektiv

ÚJV Řež, a. s.  
Praha, Říjen 2017



SÚRAO

**Název projektu: Výzkumná podpora pro bezpečnostní hodnocení hlubinného úložiště**

**Název dílčího projektu: Charakterizace RAO nepřijatelného do přípovrchového úložiště z vyřazování jaderné elektrárny – biologické stínění reaktoru**

**Název zprávy: Biologické stínění reaktoru**

**Závěrečná zpráva**

*Evidenční číslo objednatele: SÚRAO TZ 203/2017*

*Evidenční číslo poskytovatele: PB-2017-ZZ-S4289-035-BiologStineni*

**ŘEŠITELÉ:**

**ÚJV Řež, a. s.**

**Autoři: Karel Svoboda**

Autorský kolektiv: David Šír, Patrick Burian, Vlastimil Miler, Josef Matěcha, Radek Pošvař, Radek Trtílek





SÚRAO

## Obsah

<b>1</b>	<b>Úvod</b> .....	<b>11</b>
<b>2</b>	<b>Popis bloku biologického stínění</b> .....	<b>11</b>
2.1	Historie a původ bloku .....	11
2.2	Historie ozařování .....	12
2.3	Popis bloku .....	13
2.4	Radiační mapa na povrchu bloku .....	18
<b>3</b>	<b>Vzorkování</b> .....	<b>19</b>
3.1	Příprava a odběr vzorků .....	19
3.2	Odběr vzorků .....	19
<b>4</b>	<b>Zpracování a analýzy vzorků</b> .....	<b>21</b>
4.1	Zpracování vzorků .....	21
4.2	Gama spektrometrické měření .....	21
4.3	Radiochemické stanovení těžko stanovitelných radionuklidů .....	23
4.3.1	Stanovení $^{14}\text{C}$ .....	23
4.3.2	Stanovení $^{36}\text{Cl}$ .....	25
4.3.3	Stanovení $^{41}\text{Ca}$ .....	26
4.4	Souhrn výsledků .....	29
<b>5</b>	<b>Vyhodnocení</b> .....	<b>30</b>
5.1	Sledované radionuklidy .....	30
5.1.1	$^{14}\text{C}$ .....	31
5.1.2	$^{36}\text{Cl}$ .....	31
5.1.3	$^{41}\text{Ca}$ .....	31
5.1.4	$^{60}\text{Co}$ .....	31
5.1.5	$^{152}\text{Eu}$ a $^{154}\text{Eu}$ .....	32
5.2	Výpočtová ověření .....	32
5.3	Srovnání experimentálních a vypočtených hodnot .....	36
5.4	Zhodnocení výsledků .....	38
5.5	Srovnání experimentálních hodnot s predikcemi pro JE Dukovany .....	39
<b>6</b>	<b>Závěr</b> .....	<b>40</b>
<b>7</b>	<b>Reference:</b> .....	<b>41</b>

## Seznam obrázků:

<b>Obr. 1:</b> Diagram provozu 5. bloku JE Greifswald (1 – 57: poruchy; a – k: testovací poklesy výkonu; A: přerušení zkušebního provozu).....	13
<b>Obr. 2:</b> Betonový segment (číslo 1), jako součást šachty reaktoru (horizontální řez).....	14
<b>Obr. 3:</b> Betonový segment biologického stínění z šachty reaktoru 5. bloku JE Greifswald ...	15
<b>Obr. 4:</b> Vertikální řez segmentem betonového stínění.....	16
<b>Obr. 5:</b> Vertikální pozice betonového biologického stínění v šachtě reaktoru (označeno červeně). .....	17
<b>Obr. 6:</b> Vertikální pozice betonového biologického stínění v šachtě reaktoru. ....	18
<b>Obr. 7:</b> Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu. ....	19
<b>Obr. 8:</b> Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu a vyznačení odběrových míst.	20
<b>Obr. 9:</b> Fotografie dokumentující způsob a průběh odběru vzorků z betonového segmentu.	21
<b>Obr. 10:</b> Profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. ....	23
<b>Obr. 11:</b> Profil aktivity $^{14}\text{C}$ v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. ....	25
<b>Obr. 12:</b> Profil aktivity $^{36}\text{Cl}$ v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. ....	26
<b>Obr. 13:</b> Gama spektrum vzorku s $^{41}\text{Ca}$ - po 24hod měření není patrný žádný pík na energii 3,3 keV (označeno kurzorem).....	27
<b>Obr. 14:</b> Výsledek měření na LSC vzorku $^{41}\text{Ca}$ připraveného původním postupem LP CA-41. ....	28
<b>Obr. 15:</b> Výsledek měření na LSC vzorku $^{41}\text{Ca}$ připraveného novým postupem dle práce Xiaolin (2005). ....	28
<b>Obr. 16:</b> Profil aktivity $^{41}\text{Ca}$ v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. ....	29
<b>Obr. 17:</b> Profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. Pro přehlednost grafu gama radionuklidu reprezentuje pouze $^{154}\text{Eu}$ , jehož aktivity jsou vyneseny na ose vpravo označené oranžovou barvou. Levá osa zobrazuje hodnoty pro ostatní radionuklidy. ....	30
<b>Obr. 18:</b> Podélný řez zjednodušeným modelem reaktoru JE Greifswald (homogenizovaná aktivní zóna - modrá, vnitřními vestavby - žlutá, nádoba – fialová a biologické stínění – zelená). ....	32
<b>Obr. 19:</b> Příčný řez zjednodušeným modelem reaktoru JE Greifswald – detail betonového biologického stínění a jeho rozdělení na vrstvy. ....	33
<b>Obr. 20:</b> Ukázka vypočtených neutronových spekter v betonu ve vrstvách 151, 251, 351, 451 a 551 mm. ....	33

## Seznam tabulek:

<b>Tab. 1:</b> Výsledky gama spektrometrické analýzy odebraných vzorků (v pořadí od místa nejbližšího k reaktoru k místu nejvzdálenějšímu).....	22
<b>Tab. 2:</b> Výsledky analýz $^{14}\text{C}$ v betonu biologického stínění JE Greifswald.....	24
<b>Tab. 3:</b> Výsledky analýz $^{36}\text{Cl}$ v betonu biologického stínění JE Greifswald.....	26
<b>Tab. 4:</b> Výsledky analýz $^{41}\text{Ca}$ v betonu biologického stínění JE Greifswald.....	28
<b>Tab. 5:</b> Složení serpentinu použité při výpočtu spektra neutronů.....	34
<b>Tab. 6:</b> Složení serpentinu použité při výpočtu produktů aktivace neutrony (Gesh et al (2017); Carrol (2001); National Ready Mixed Concrete Association (2017)).....	35
<b>Tab. 7:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 659/17 (50 mm).....	36
<b>Tab. 8:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 660/17 (150 mm).....	37
<b>Tab. 9:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 661/17 (250 mm).....	37
<b>Tab. 10:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 662/17 (350 mm).....	37
<b>Tab. 11:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 663/17 (450 mm).....	38
<b>Tab. 12:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 664/17 (550 mm).....	38
<b>Tab. 13:</b> Přehled aktivačních produktů a jejich aktivit v případě serpentínového betonu použitého na JE Greifswald (experimentálně zjištěná data – A <sub>Greifswald</sub> ) a na JE Dukovany (teoretické hodnoty - A <sub>JEDU</sub> ).....	39

### Seznam použitých zkratk:

CAL-ZL	Centrální analytická laboratoř – zkušební laboratoř č. 1093.4
DGR	Deep geological disposal (uložení v hlubinném úložišti)
HPGe	Vysoce čisté germanium (High purity germanium)
HÚ	Hlubinné úložiště
ICP-MS	hmotová spektrometrie s indukčně vázaným plazmatem
JE	Jaderná elektrárna
LP	Laboratorní postup laboratoře
LSC	Liquid scintillation counting (kapalinová scintilační detekce/spektrometrie)
MCNP	výpočtový software na bázi pravděpodobnostního počtu „Monte Carlo“
PDE	Příkon dávkového ekvivalentu
PE	Polyetylén
PP	Pracovní postup
RAO	Radioaktivní odpad
RAW	Radioactive waste (radioaktivní odpad)
SOP	Standardní operační postup laboratoře
SÚRAO	Správa úložišť radioaktivních odpadů
UOS	Ukládací obalový soubor
VJP	Vyhořelé jaderné palivo



## Abstrakt

Beton, který slouží jako konstrukce pro umístění reaktorové nádoby v reaktorové budově (tzv. stavební šachta reaktoru), zároveň plní funkci biologického stínění reaktoru. Tento beton je vystaven dlouhodobému intenzivnímu ozařování jak zářením gama, tak proudem neutronů. Z aktivačních výpočtů, provedených pro účely návrhů koncepce vyřazování jaderných elektráren vyplývá, že měrná aktivita radionuklidů je: pro C-14 řádově  $10^5$  Bq/kg, pro Cl-36 cca  $10^2$  Bq/kg a pro Ca-41 je to řádově  $10^6$  Bq/kg. Celková předpokládaná hmotnost betonu k uložení do hlubinného úložiště činí cca 277 tun z vyřazování stávajících bloků a obdobná hmotnost betonu je pak předpokládána z vyřazování eventuálních nových zdrojů. To činí obsah těchto radionuklidů významnou součástí zdrojového členu radioaktivních odpadů jiných, než je vyhořelé palivo.

Cílem tohoto dílčího projektu je ověřit údaje pro výpočet zdrojového členu pro bezpečnostní rozbor hlubinného úložiště pro biologické stínění reaktoru jako zdroje RAO nepřijatelného do přípovrchových úložišť, se zvláštním zřetelem k obsahu radionuklidů C-14, Cl-36 a Ca-41. K tomuto účelu bude využita unikátní možnost destruktivní radiochemické analýzy reálných vzorků ozářeného betonového biologického stínění z vyřazované elektrárny typu VVER-440 v Greifswaldu, která byla stejného typu jako je jaderná elektrárna Dukovany. Na základě exaktně stanovené měrné aktivity betonu podél radiálního profilu v místě maxima příkonu dávkového ekvivalentu a poměru četnosti impulsů v síti po celé vnitřní válcové ploše segmentu bude výpočtem odhadnut celkový obsah radionuklidů v segmentu.

## Klíčová slova

hlubinné úložiště, radiochemická analýza, biologické stínění, C-14, Cl-36, Ca-41

## Abstract

The concrete, enabling to locate the reactor vessel inside the reactor building, fulfill also a function of a biological reactor shielding. The concrete is exposed to long-term intense gamma rays and neutrons radiation. Using the activation calculations, performed for the purpose of NPP decommissioning appears that specific activity of the radionuclide is: for the C-14 of the order of  $10^5$  Bq/kg, for Cl-36 of about  $10^2$  Bq/kg and for Ca-41 of about  $10^6$  Bq/kg. Estimated total weight of concrete for DGR disposal is about 277 metric tons from decommissioning of existing NPPs and similar mass concrete is expected from the potential decommissioning of new resources. Therefore, such an inventory plays an important part of the radionuclide source term of radioactive waste other than spent fuel.

The objective of the project is to verify input data for the source term calculation used for DGR safety assessment for biological shielding of the reactor as a source of RAW unacceptable in near-surface repositories, with respect to the content of radionuclides C-14, Cl-36 and Ca-41. Therefore, there is a unique possibility to provide destructive radiochemical analyses of real samples of the irradiated biological concrete shielding, originating from decommissioning of NPP Greifswald (VVER-440 type). The NPP was the same type as a Dukovany NPP. The total content of radionuclides in the biological shielding will be estimated by calculation on the basis of specific activity determination along the radial profile of maximum dose equivalent rate over the entire internal cylindrical surface of the concrete biological shielding segment.

## Keywords

Deep geological repository, radiochemical analysis, biological shielding, C-14, Cl-36, Ca-41

## 1 Úvod

Tato zpráva byla zpracována v rámci projektu SÚRAO „Výzkumná podpora bezpečnostního hodnocení hlubinného úložiště“, který je součástí přípravy hlubinného úložiště radioaktivních odpadů (dále jen HÚ). Cílem projektu je získat vybraná data, modely, argumenty a další informace potřebné pro zhodnocení potenciálních lokalit pro umístění HÚ z hlediska dlouhodobé bezpečnosti. Na základě veřejného zadávacího řízení byla v červenci 2014 uzavřena čtyřletá smlouva s ÚJV Řež, a. s. a jeho subdodavateli: Českou geologickou službou; ČVUT v Praze; Technickou univerzitou v Liberci; Ústavem Geoniky AV ČR, v. v. i.; a společnostmi SG Geotechnika a.s.; Progeo, s. r. o.; Chemcomex Praha, a. s. a Centrum výzkumu Řež s. r. o. o poskytování výzkumné podpory hodnocení dlouhodobé bezpečnosti v následujících oblastech:

- i. Chování VJP a forem RAO, nepřijatelných do přípovrchových úložišť, v prostředí hlubinného úložiště;
- ii. Chování ukládacích obalových souborů (UOS) VJP a RAO v prostředí hlubinného úložiště;
- iii. Chování tlumících, výplňových a dalších konstrukčních materiálů v prostředí hlubinného úložiště;
- iv. Řešení úložných vrtů a jejich vliv na vlastnosti obklopujícího horninového prostředí;
- v. Chování horninového prostředí;
- vi. Transport radionuklidů z úložiště;
- vii. Další charakteristiky lokalit potenciálně ovlivňující bezpečnost úložiště.

Cílem tohoto dílčího projektu *Charakterizace RAO nepřijatelného do přípovrchového úložiště z vyřazování jaderné elektrárny – biologické stínění reaktoru* je ověřit údaje pro výpočet zdrojového členu pro bezpečnostní rozbor hlubinného úložiště pro biologické stínění reaktoru jako zdroje RAO nepřijatelného do přípovrchových úložišť, se zvláštním zřetelem k obsahu radionuklidů  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{41}\text{Ca}$ . K tomuto účelu bude využita unikátní možnost destruktivní radiochemické analýzy reálných vzorků ozářeného betonu, pocházející z vyřazované jaderné elektrárny, která byla stejného typu jako je jaderná elektrárna Dukovany.

Cílem této zprávy je podat přehledný a věcný popis provedených prací a získaných výsledků po odběru vzorků z biologického stínění z JE Greifswald, jejich analýzu a vyhodnocení v rámci řešitelského týmu.

## 2 Popis bloku biologického stínění

### 2.1 Historie a původ bloku

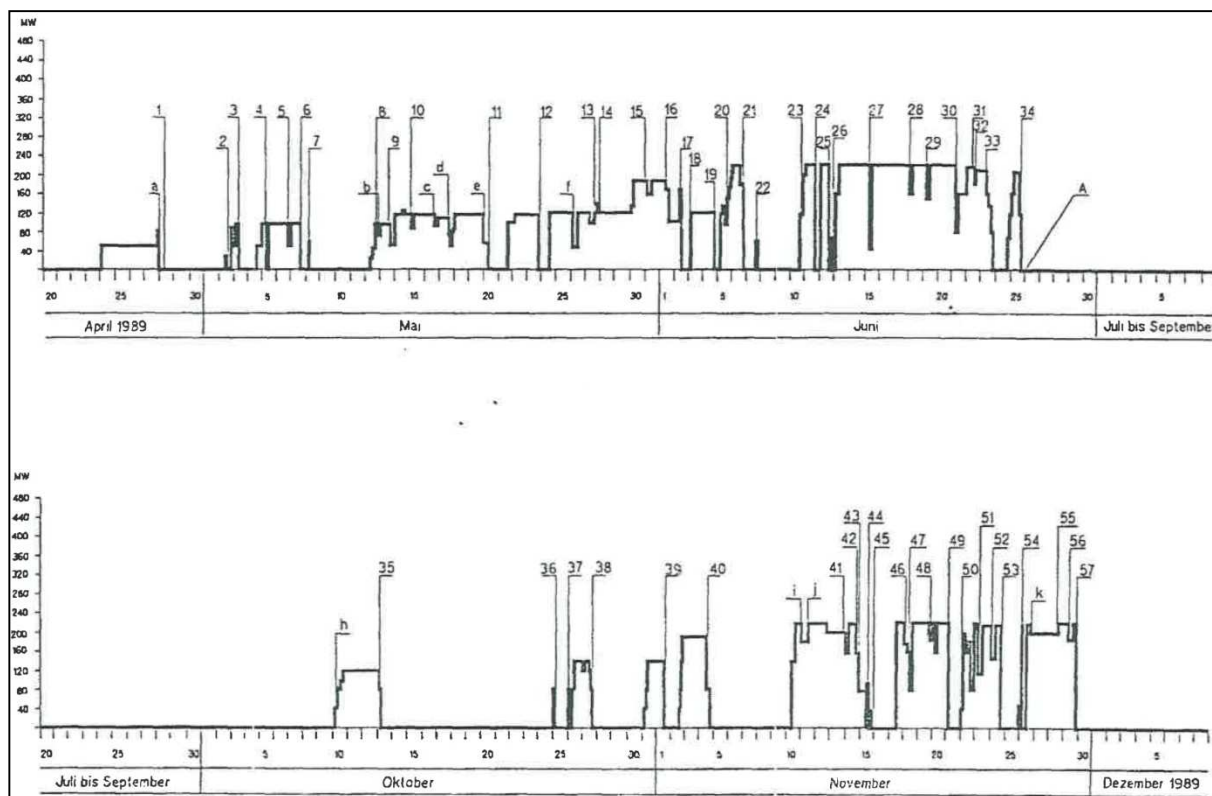
Analyzovaný betonový segment pochází z pátého bloku jaderné elektrárny Greifswald (někdy také zvané JE Lubmin nebo Nord) v Německu. Segment zakoupil v roce 2012 ÚJV Řež a.s. pro účely výzkumu stárnutí konstrukčních betonů v jaderné elektrárně vlivem dlouhodobého působení vysokých teplot a záření gama a neutronů. Segment je skladován v

ÚJV. Jeho fyzická dostupnost a relativně malý objem materiálu potřebný k radiochemické analýze umožňují odvrát vzorky materiálu a provést destruktivní radiochemickou analýzu ke stanovení měrné aktivity vybraných radionuklidů ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{41}\text{Ca}$ ). Výsledky získané z analýzy poslouží zároveň k ověření výpočtových modelů.

Jaderná elektrárna Greifswald byla největší jadernou elektrárnou v bývalé Německé demokratické republice. Výstavba elektrárny byla zahájena v roce 1967 a v první fázi byly vybudovány 4 sovětské jaderné reaktory typu VVER-440/230, které byly do komerčního provozu uvedeny v letech 1974 až 1979. V druhé etapě byla plánována výstavba dalších 4 sovětských reaktorů typu VVER-440/213. Jedná se o stejné typy jaderných reaktorů, které jsou provozovány v jaderné elektrárně Dukovany. Do komerčního provozu byl však uveden pouze první z nich – pátý blok, z kterého je i analyzovaný segment betonu. Tento blok dosáhl prvního kritického stavu 26.3. 1989 a o necelý měsíc později (24.4. 1989) byl blok připojen do sítě a probíhal jeho zkušební provoz. Nicméně již 29. listopadu byl reaktor trvale odstaven. Primární příčinou bylo poškození paliva z důvodů nedostatečného odvodu tepla z aktivní zóny reaktoru.

## 2.2 Historie ozařování

Historie ozařování během zkušebního provozu byla poskytnuta dodavatelem bloku biologického stínění a vyplývá z grafu na Obr. 1. V rámci tohoto zkušebního provozu byly prováděny různé testy, přičemž se předpokládalo, že reaktor bude postupně provozován na výkonových úrovních 20%, 35% a 55% nominálního výkonu. Jak vyplývá z grafu, v průběhu zkušebního provozu se objevila řada poruch, což vedlo k prodlužování jednotlivých etap, přičemž poslední zmíněná etapa zkušebního provozu nebyla již dokončena.



**Obr. 1:** Diagram provozu 5. bloku JE Greifswald (1 – 57: poruchy; a – k: testovací poklesy výkonu; A: přerušeni zkušebního provozu)

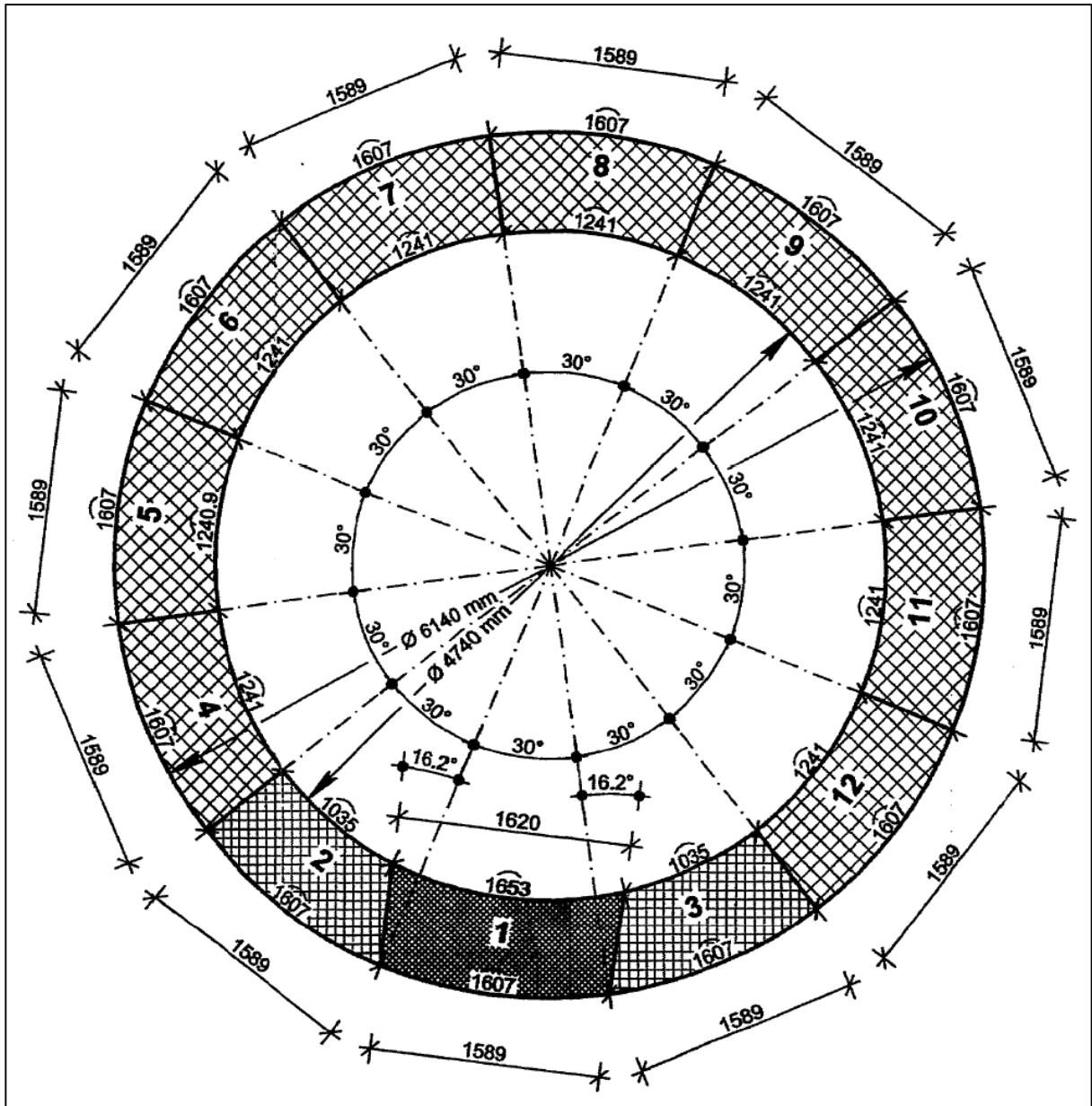
## 2.3 Popis bloku

Betonový segment je 1/12 obvodové válcové výseče šachty reaktoru (viz Obr. 2). Oba válcové povrchy segmentu (vnitřní, přilehlá k reaktoru, i vnější) pokrývá ocelová oblicovka (viz Obr. 3). Beton představuje serpentinitový beton o hustotě 2,3 g/cm<sup>3</sup>. Beton byl vyroben ze dvou druhů (dle hrubosti) serpentinitového písku, drobného serpentinitového štěrku, portlandského cementu a vody. Bližší prvkové složení betonu nebylo bohužel dodavateli segmentu poskytnuto.

Segment má následující rozměry:

- Výška rovnoběžná s osou reaktoru (viz Obr. 4, Obr. 6): 2 780 mm
- Šířky představující kruhový obvod šachty reaktoru (viz Obr. 2): 1 653 mm (vnitřní) a 1 598 mm (vnější)
- Hloubka představující tloušťku stínicí vrstvy betonu radiálně od osy reaktoru (viz Obr. 2 a Obr. 4): 700 mm

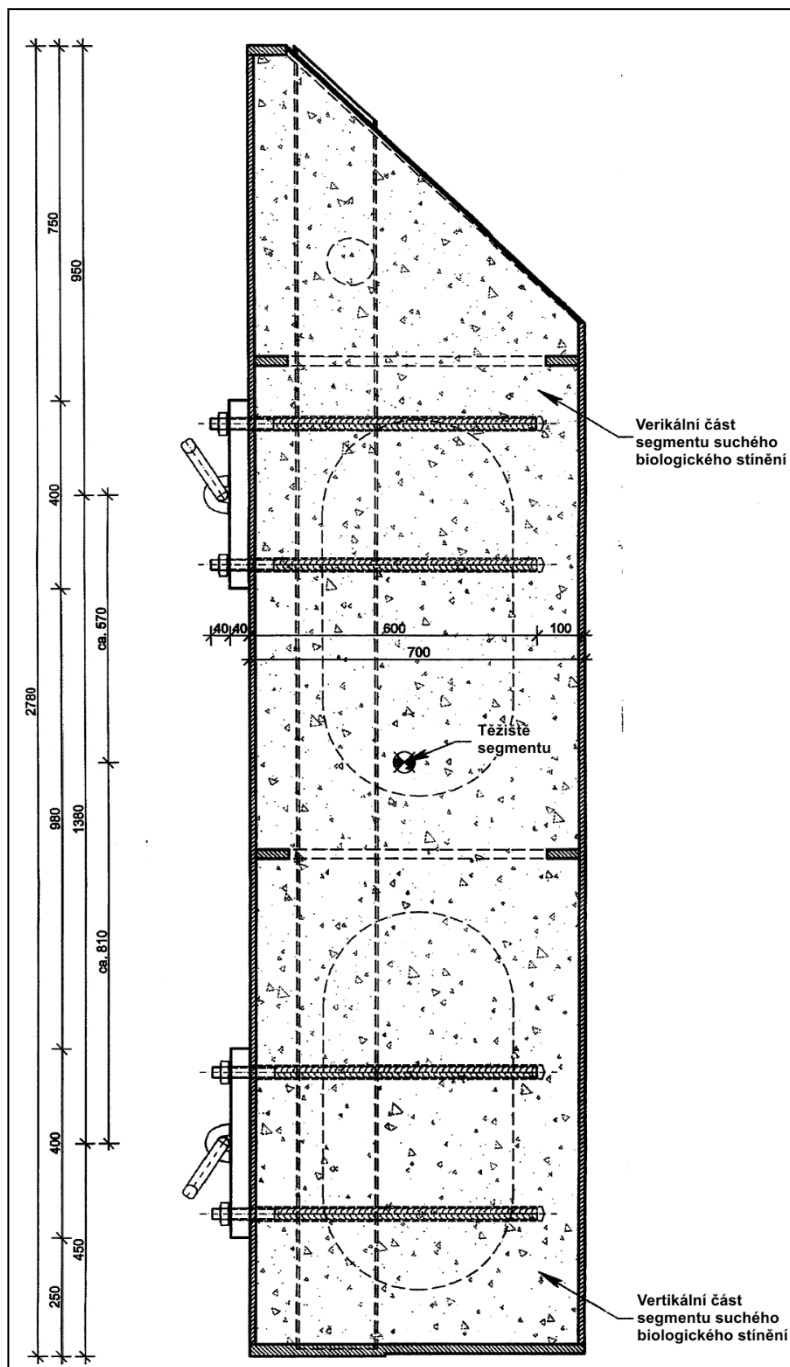
Hmotnost segmentu je 7 200 kg.



**Obr. 2:** Betonový segment (číslo 1), jako součást šachty reaktoru (horizontální řez).

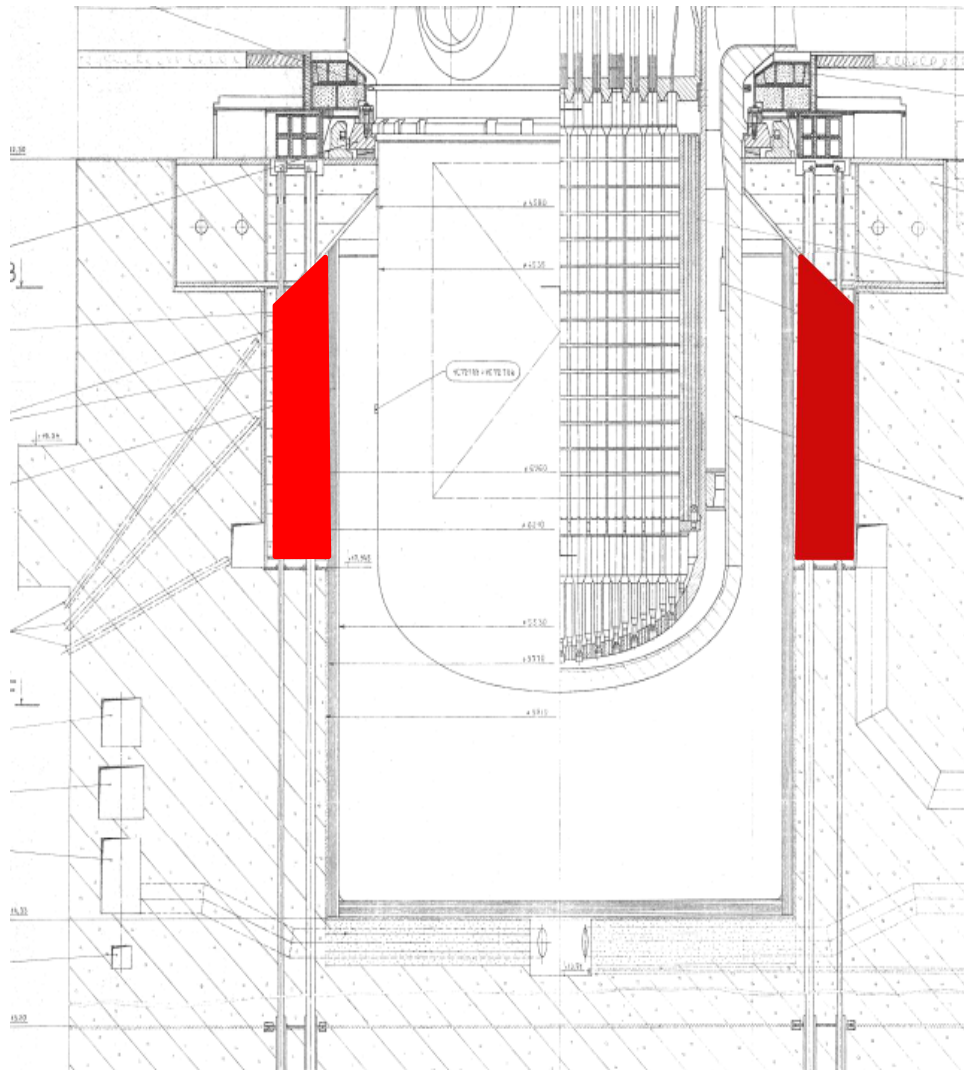


**Obr. 3:** Betonový segment biologického stínění z šachty reaktoru 5. bloku JE Greifswald

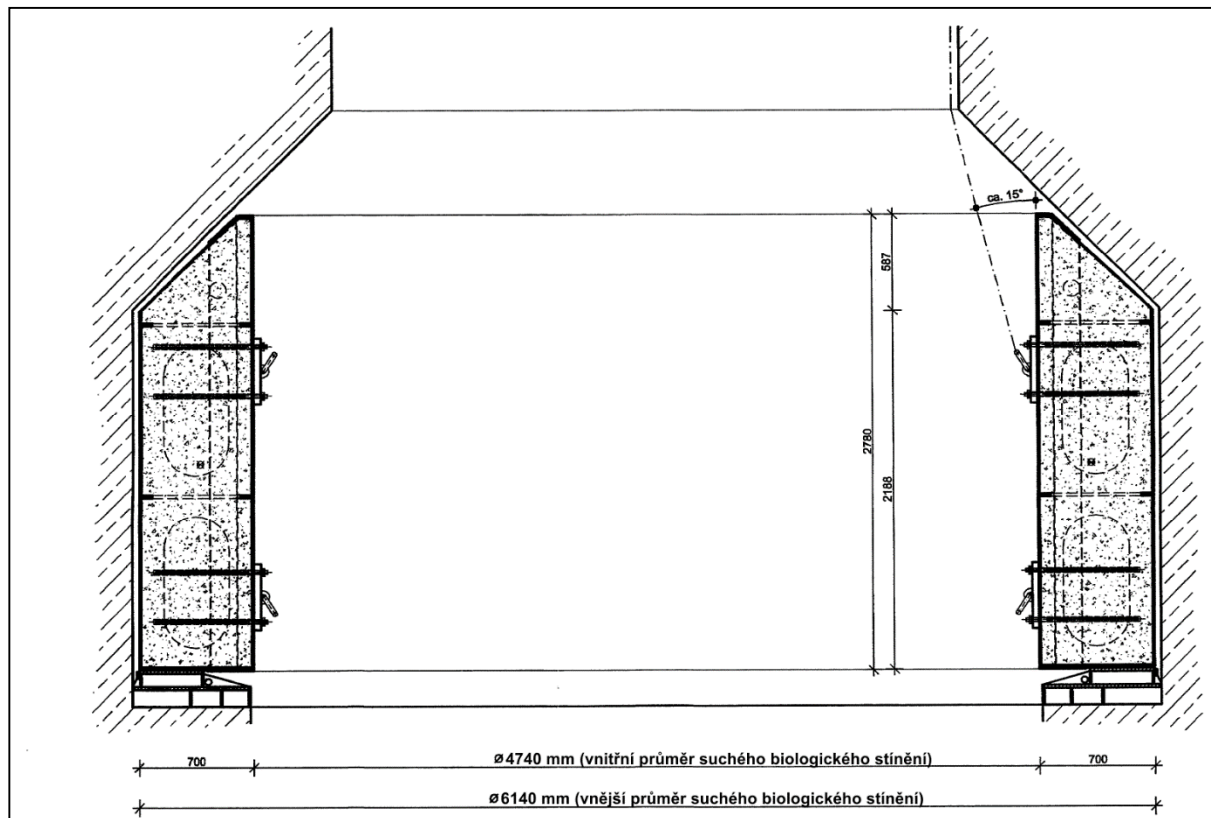


Obr. 4: Vertikální řez segmentem betonového stínění.





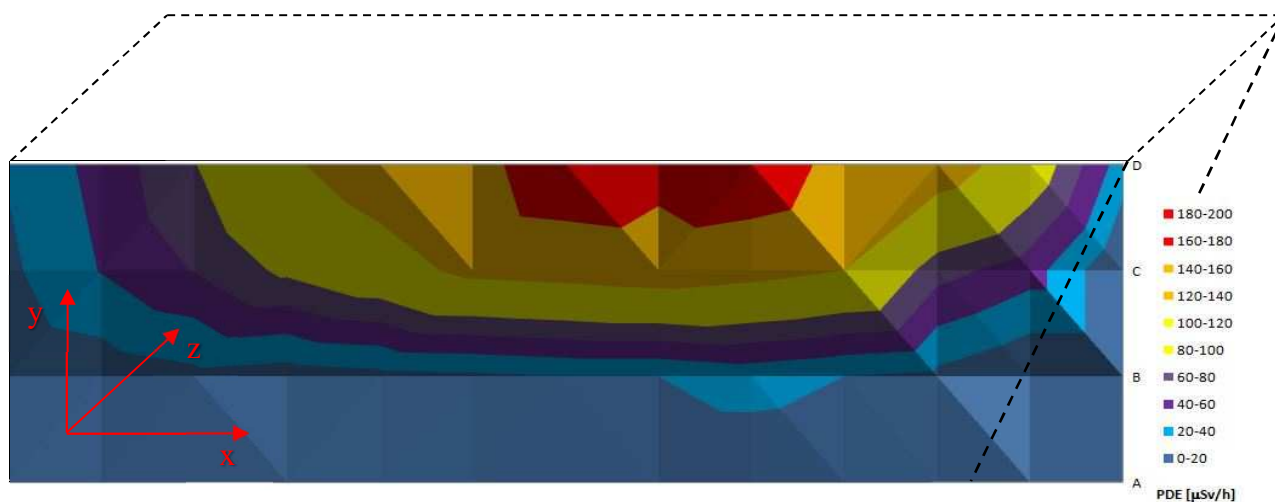
**Obr. 5:** Vertikální pozice betonového biologického stínění v šachtě reaktoru (označeno červeně).



**Obr. 6:** Vertikální pozice betonového biologického stínění v šachtě reaktoru.

## 2.4 Radiační mapa na povrchu bloku

Byla provedena charakterizace bloku betonu na povrchu na boční straně válcové plochy v síti 5 x 8 bodů (cca 0,3 x 0,3 m) a to přímým měřením příkonu dávkového ekvivalentu, resp. četnosti impulsů. K měření byl použit přenosný dozimetrický přístroj FH40 s externí sondou FHZ. Segment není vertikálně (rozměr rovnoběžný se svislou osou reaktorové nádoby), ani radiálně ozářen rovnoměrně. To lze dokumentovat (viz Obr. 7) průběhem příkonu dávkového ekvivalentu (PDE) na povrchu betonu podél jeho výškové osy a v radiálním směru (tloušťka betonu). PDE se pohybuje v rozpětí od 10 do 175  $\mu\text{Sv}/\text{hod}$ . V části segmentu s nejvyšší hodnotou PDE lze očekávat, že byly nejvyšší fluence neutronů uniklých z aktivní zóny.



Obr. 7: Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu.

## 3 Vzorkování

### 3.1 Příprava a odběr vzorků

Odběr vzorků byl náročný z hlediska zajištění radiační ochrany. Příprava a odběr vzorků na místě skladování betonového segmentu zahrnovaly:

1. Zpracování a schválení pracovního postupu pro práci se zvýšeným radiačním rizikem (pracovní postup č. PP 2405 269).
2. Nákup a příprava potřebných technických prostředků (ochranné pomůcky včetně oděvů Tyvek, ochranné fólie, filtrační masky (filtry), vrtačka s odsáváním, apod.).
3. Provedení zkoušky odvrtání "nasucho" v neaktivních podmínkách.
4. Zřízení a vybavení dočasného pracoviště (obj. 211/5).
5. Vytvoření radiační mapy betonového segmentu (příkon dávkového ekvivalentu na povrchu) pomocí přístroje FH40 s externí sondou FHZ.
6. Odvrtání samotných vzorků k analýze.
7. Zabalení vzorků a transport vzorků do laboratoře.
8. Úklid a dekontaminace pracoviště, odvoz a zpracování vniklých RAO (použité ochranné pomůcky, fólie, další nářadí).
9. Radiační monitoring pracoviště a jeho uvolnění pro další činnost.

### 3.2 Odběr vzorků

Na odběr vzorků byly kladeny speciální nároky s ohledem na fyzikálně-chemické vlastnosti prvků, které měli být analyzovány. Pro odvrtání vzorku nebylo možné použít chladicí médium, které by mohlo přijít do kontaktu s odebíraným vzorkem. Chladicí médium by mohlo vyloužit některý ze sledovaných analytů a ovlivnit tak výsledek analýzy. Teplota vrtného tělesa nesměla dosáhnout vyšších teplot, protože by mohlo dojít k reakci sloučenin uhlíku (s vodou, kyslíkem, apod.) a úniku  $^{14}\text{C}$  ve formě  $\text{CO}/\text{CO}_2$  nebo i jiných těkavých sloučenin, což by mohlo ovlivnit výsledky analýzy. Pro odběr vzorku tedy bylo nutné zajistit co nejnižší

teplotu vrtáku při vrtání bez použití chladicího media. Proto bylo rozhodnuto použít pomaloběžný způsob vrtání s kontrolou teploty.

Vzorky byly odvrtny korunkovým vrtákem za použití minimálních otáček vrtáku bez dodatečného chlazení. Teplota karbidových břitů byla kontrolována pomocí infračerveného bezkontaktního teploměru a to v průběhu každého vzorkování 2x v hloubce 75mm a 150 mm. Teplota břitů při vrtání nepřekročila 38°C.

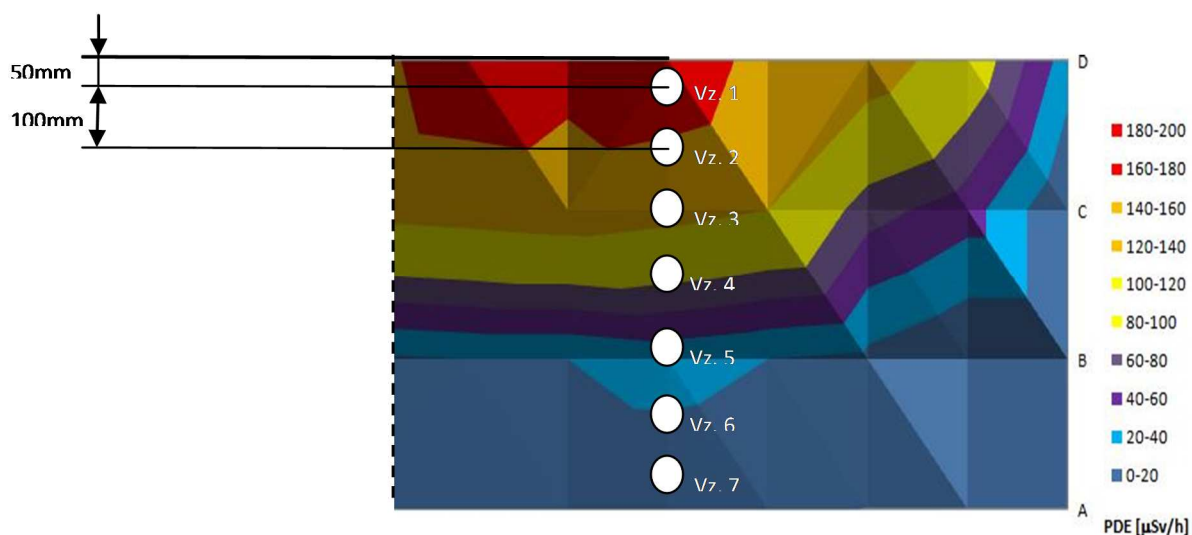
Kolmost vrtacího nástroje byla kontrolována pomocí vodováhy (horizontální vzdálenost vzorkovaného materiálu od kolmé osy aktivní zóny je stejná v celém průřezu vzorku). Materiál z hloubky 0 – 10mm od povrchu a sběrný kanálek se odsál aktivním vysavačem bez dotyku, včetně otření kanálku dekontaminačním roztokem na průmyslové utěrce Tork. Stejně tak vrtací nástroj byl očištěn dekontaminačním roztokem a osušen. Ke každému odběru byl použit nový vrták z důvodu zamezení křížové kontaminace vzorků.

Vzorek byl přenesen nerezovou laboratorní lžičkou do 100 ml PE vzorkovnice, uzavřen a opatřen datem odběru, popisem a pořadovým číslem vzorku.

Vzorky odebrány (7ks) v místě nejvyššího PDE v bočním průřezu a očíslovány vzestupně tak, jak vzrůstá jejich vzdálenost od vnitřního pláště stínění ke vnějšímu povrchu. Rozestupy mezi vzorkovacími body jsou shodné a to 100 mm. Osa prvního vzorku je 50 mm od vnitřního kovového pláště včetně. Sedmý vzorek je 50 mm od vnějšího kovového pláště včetně. Odběr materiálu byl proveden z hloubky 10 mm až 150 mm. Odebráno bylo cca 50g vzorku z každé pozice.

Fotografie dokumentující způsob odběru vzorků z betonového segmentu (viz. Obr. 9).

Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu a vyznačení odběrových míst je znázorněn na následujícím obrázku (Obr. 8)



**Obr. 8:** Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu a vyznačení odběrových míst.



**Obr. 9:** Fotografie dokumentující způsob a průběh odběru vzorků z betonového segmentu.

## 4 Zpracování a analýzy vzorků

### 4.1 Zpracování vzorků

Vzorky byly odvrtny klasickým vrtákem, takže výsledkem byly homogenní jemně zrnité vzorky. Z toho důvodu nebylo nutné provádět jakoukoliv speciální předúpravu nebo zpracování vzorků jiné, než související s požadovanou analýzou.

### 4.2 Gama spektrometrické měření

Na odebraných vzorcích byla provedena kompletní gama spektrometrická analýza (stanovení měrné aktivity radionuklidů emitujících záření gama). Gama spektrometrie byla provedena vysokorozlišovací polovodičovou spektrometrií záření gama na pracovišti laboratoře CAL podle akreditovaného standardního operačního postupu R-01 – Stanovení aktivity izotopů - zářičů gama - metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením. Měřeno bylo veškeré množství vzorku získaného odběrem pro dosažení maximální citlivosti. Pro měření byl použit HPGe det. s rel. účinností 90% GX9021.

Gama spektrometrické měření vzorků potvrdilo přítomnost pouze několika umělých radionuklidů:  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  a  $^{154}\text{Eu}$  nad mez detekce měřící aparatury. Naměřené hodnoty aktivit jednotlivých gama radionuklidů byly přepočteny ke dni ukončeného ozařování: 29.11.1989. Výsledky jsou shrnuté v Tab. 1.

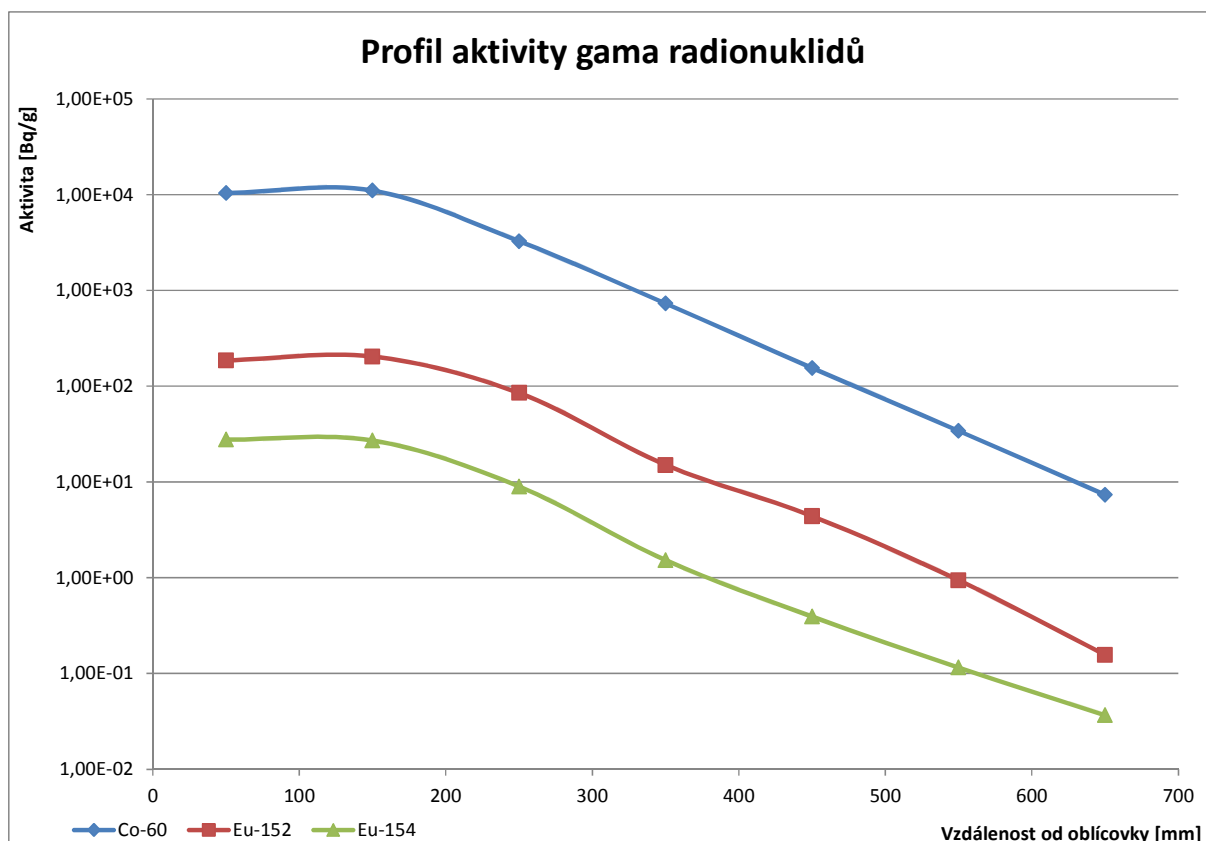
**Tab. 1:** Výsledky gama spektrometrické analýzy odebraných vzorků (v pořadí od místa nejbližšího k reaktoru k místu nejvzdálenějšímu).

Vzdálenost od obličovky [mm]	50			150			250		
	659/17 [Bq/g vzorku]			660/17 [Bq/g vzorku]			661/17 [Bq/g vzorku]		
Co-60	1,04E+04	±	1,13E+02	1,10E+04	±	1,08E+02	3,27E+03	±	3,19E+02
Eu-152	1,86E+02	±	1,82E+01	2,04E+02	±	1,78E+01	8,49E+01	±	7,17E+00
Eu-154	2,77E+01	±	3,66E+00	2,71E+01	±	3,11E+00	8,96E+00	±	9,14E-01

Vzdálenost od obličovky [mm]	350			450		
	662/17 [Bq/g vzorku]			663/17 [Bq/g vzorku]		
Co-60	7,30E+02	±	7,51E+01	1,55E+02	±	1,55E+01
Eu-152	1,51E+01	±	6,92E-01	4,40E+00	±	3,83E-01
Eu-154	1,53E+00	±	1,64E-01	3,93E-01	±	6,21E-02

Vzdálenost od obličovky [mm]	550			650		
	664/17 [Bq/g vzorku]			665/17 [Bq/g vzorku]		
Co-60	3,41E+01	±	4,20E+00	7,33E+00	±	6,78E-01
Eu-152	9,41E-01	±	1,06E-01	1,57E-01	±	1,55E-02
Eu-154	1,15E-01	±	1,83E-02	< 3,66E-02		

Výsledky byly vyneseny do grafu, který znázorňuje profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu (viz. Obr. 10).



**Obr. 10:** Profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu.

### 4.3 Radiochemické stanovení těžko stanovitelných radionuklidů

Radiochemické stanovení obsahu (měrné aktivity) radionuklidů  $^{14}\text{C}$ ,  $^{41}\text{Ca}$  a  $^{36}\text{Cl}$  bylo provedeno metodami podle schválených standardních operačních postupů akreditované zkušební laboratoře CAL na přístrojích LSC Quantulus ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ) a na detektoru nízkoenergetického gama záření SLP10190 ( $^{41}\text{Ca}$ ). Jedná se o akreditované postupy R-18 – Stanovení aktivity  $^{36}\text{Cl}$  metodou kapalinové scintilační spektrometrie a R-05 – Stanovení aktivity  $^{14}\text{C}$  kapalinovou scintilační spektrometrií a neakreditovaný postup LP CA-41 – Stanovení  $^{41}\text{Ca}$  ve vzorcích z provozu jaderných elektráren a okolí metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením.

Měření byla provedena 1x, tam kde to bylo nezbytné bylo měření opakováno. Součástí měření bylo i zajištění QA použitím tzv. blanků (požadové vzorky bez analytu k prokázání čistoty během analýzy) a kontrolních měření tzv. opakováním vybraných vzorků pro ověření spolehlivosti analýz.

Všechny výsledky jsou přepočteny ke dni ukončení ozařování - 29.11.1989.

#### 4.3.1 Stanovení $^{14}\text{C}$

Stanovení  $^{14}\text{C}$  je standardně prováděno třemi možnými způsoby, dle R-05 „Stanovení aktivity kapalinovou spektrometrií  $^{14}\text{C}$ “. Jedním z nich je rozklad vzorku lučavkou královskou

(HNO<sub>3</sub> a HCl v poměru 1:3) a vznikající plyny jsou jímány v hydroxidu vápenatém nebo barnatém. Tento postup může být někdy nedostatečný, pokud je chemické složení odolné vůči směsi těchto kyselin.

Dalším postupem je spalování vzorku až do teploty 900°C, kdy všechny uhlíkaté sloučeniny zoxidují na CO<sub>2</sub>. Plyn je zachytáván stejným způsobem jako v předchozím případě.

Posledním postupem je alkalický rozklad s hydroxidem draselným za teploty 600°C. Vzniklá tavenina je rozpuštěna a z roztoku kyselinou uvolněn CO<sub>2</sub>, který je zachycen jako v předchozích případech.

Pro účely tohoto projektu byly použity všechny tři postupy. Ale protože výsledky spalování a alkalickým rozkladem byly srovnatelné, byly vlastně využity pouze dva postupy (kyselý rozklad, alkalické tavení) pro všech sedm vzorků. Popis analýz a prezentace výsledků jsou uvedeny dále v textu.

Zhruba 1 g vzorku betonu bylo rozloženo ve směsi koncentrovaných kyselin HNO<sub>3</sub> a HCl v poměru 1:3 (tzv. lučavka královská) za současného jímání unikajících plynů do hydroxidu barnatého. Vznikající CO<sub>2</sub> reaguje v roztoku hydroxidu se solemi Ba<sup>2+</sup> za vzniku sraženiny BaCO<sub>3</sub>. Vzniklá sraženina uhličitanu byla přefiltrována, propláchnuta a smíchána se scintilačním roztokem v měřicí vialce. Směs se měřila na LSC.

Zhruba 1 g vzorku betonu byl s hydroxidem draselným vložen do Ni kelímku a taven při 600°C. Tavenina byla rozpuštěna ve vodě a přidavkem lučavky královské byl vytěsněn CO<sub>2</sub> do hydroxidu draselného. Vzniklá sraženina uhličitanu byla přefiltrována, propláchnuta a smíchána se scintilačním roztokem v měřicí vialce. Směs se měřila na LSC.

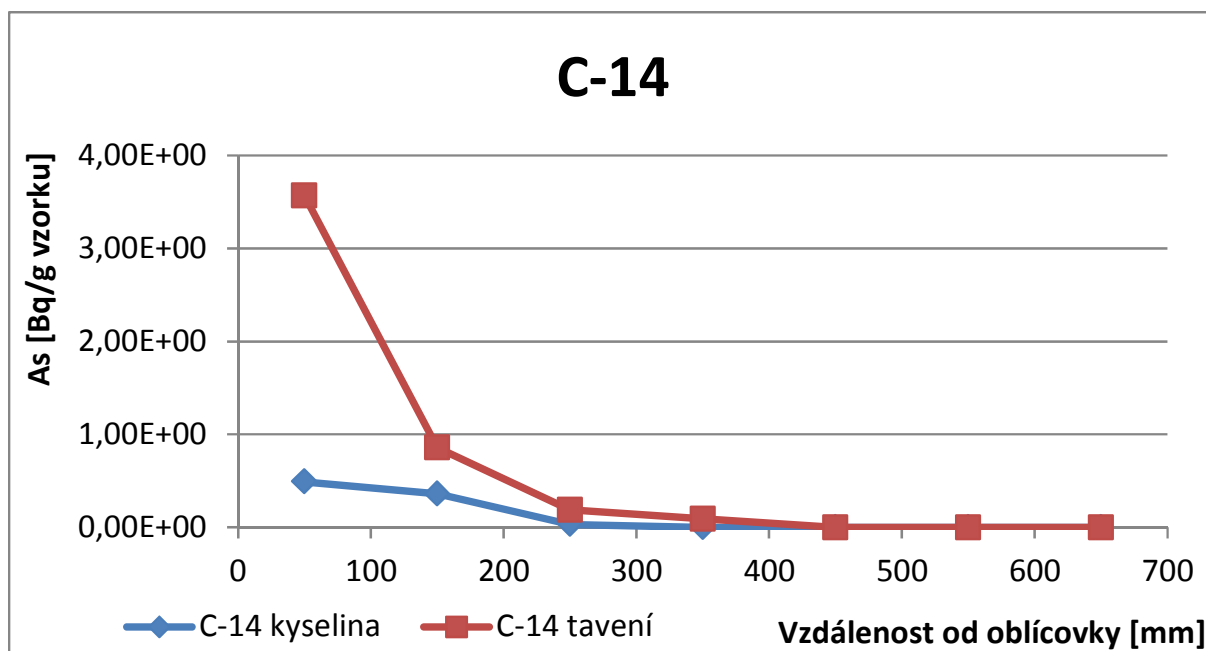
Zhruba 1 g vzorku bylo vloženo do spalovací korundové trubky a spalováno v kyslíkové atmosféře postupně od 250-900°C. Plyny vznikající při spalování byly přečištěny od konkurenčních plynů a CO<sub>2</sub> pak jímán do hydroxidu draselného. Vzniklá sraženina uhličitanu byla přefiltrována, propláchnuta a smíchána se scintilačním roztokem v měřicí vialce. Směs se měřila na LSC. Zde byl analyzován jeden vzorek pro porovnání s tavením, a protože výsledky analýzy se s tavením shodovaly, další spalování nebylo provedeno.

Výsledky analýz jsou uvedeny v Tab. 2 a Obr. 11.

**Tab. 2:** Výsledky analýz <sup>14</sup>C v betonu biologického stínění JE Greifswald

Vzdálenost od obložky [mm]	č. vzorku	Aktivita C-14 [Bq/g betonu]								
		kyselý rozklad			spalování			alkalické tavení		
50	<b>659/17</b>	4,92E-01	±	3,95E-02	3,79E+00	±	1,30E-01	3,58E+00	±	1,20E-01
150	<b>660/17</b>	3,62E-01	±	3,02E-02	-			8,61E-01	±	6,42E-02
250	<b>661/17</b>	3,48E-02	±	8,15E-03	-			1,91E-01	±	4,82E-02
350	<b>662/17</b>	<0,027			-			9,34E-02	±	4,72E-02
450	<b>663/17</b>	<0,026			-			<0,071		
550	<b>664/17</b>	<0,030			-			<0,066		
650	<b>665/17</b>	<0,029			-			<0,060		





Obř. 11: Profil aktivity  $^{14}\text{C}$  v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu.

#### 4.3.2 Stanovení $^{36}\text{Cl}$

Zhruba 1g vzorku byl rozložen alkalickým tavením s KOH při teplotě asi 600°C. Vzniklá tavenina byla převedena do roztoku a poté upraveny vlastnosti roztoku tak, aby mohla být provedena separace na vhodném extrakčním činidlo na pevné fázi (na pevném sorbentu je vázané stříbro). Ke vzniklému roztoku bylo přidáno známého množství přírodního chloridu draselného jako stopovače bez obsahu  $^{36}\text{Cl}$ . U vzniklého roztoku byl stanoven obsah chlóru na ICP-MS pro stanovení účinnosti separace. Vzorek po separaci a přečištění chlóru, obsahující také  $^{36}\text{Cl}$ , byl rozdělen na dvě části. V jedné byl stanoven obsah celkového chlóru na ICP-MS, druhá část byla smíchána se scintilačním roztokem v měřící vialce a provedeno měření na LSC přístroji Quantulus.

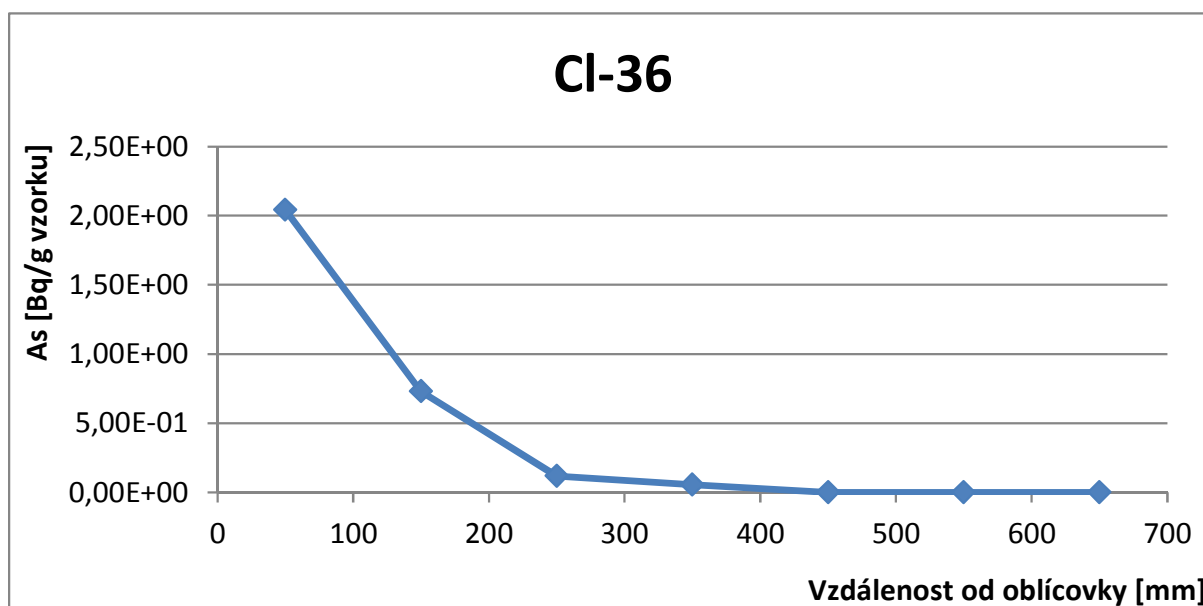
Zjištěné koncentrace chlóru ICP-MS v roztocích před a po separaci byly použity pro výpočet účinnosti separace a následné korekce aktivity  $^{36}\text{Cl}$ .

Současně v analyzované sérii vzorků byla provedena analýza tzv. fortifikovaného blanku (do pozadového roztoku se přidá známý obsah  $^{36}\text{Cl}$ ) a pozadového vzorku, jako kontrolní vzorky pro zajištění kontroly kvality.

Výsledky analýzy vzorků jsou uvedeny v následující tabulce a grafu.

**Tab. 3:** Výsledky analýz  $^{36}\text{Cl}$  v betonu biologického stínění JE Greifswald

Vzdálenost od obličovky [mm]	č. vzorku	Aktivita Cl-36 [Bq/g betonu]		
50	659/17	2,04E+00	±	2,40E-01
150	660/17	7,30E-01	±	1,30E-01
250	661/17	1,18E-01	±	2,70E-02
350	662/17	5,60E-02	±	1,70E-02
450	663/17	<0,0163		
550	664/17	<0,018		
650	665/17	<0,017		


**Obr. 12:** Profil aktivity  $^{36}\text{Cl}$  v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu.

#### 4.3.3 Stanovení $^{41}\text{Ca}$

1 g vzorku betonu byl loužen HCl k rozpuštění vápníku obsahujícího i  $^{41}\text{Ca}$ . K vylouženému roztoku HCl měl být přidán neaktivní vápník s přírodním zastoupením izotopů, který jednak slouží jako neradioaktivní nosič, jednak pro stanovení výtěžnosti separačního procesu stanovením na ICP-MS. Vzhledem k tomu, že v betonu bylo vápníku dostatečné množství, přídavek byl nahrazen stanovením množství vápníku před a po separaci. Z výsledného roztoku byl vápník izolován několika stupňovým separačním postupem zahrnujícím

- izolaci vápníku srážením kyselinou šťavelovou a kyselinou vinnou.
- oddělení makro množství železa a prvků, které vytvářejí chlorokomplexy.

Radioaktivita  $^{41}\text{Ca}$  byla stanovena měřením nízkoenergetického  $K\alpha$  záření planárním detektorem (energie 3,3 keV). Vše dle postupu LP CA-41 – Stanovení  $^{41}\text{Ca}$  ve vzorcích z provozu jaderných elektráren a okolí metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením.

Bohužel, v naměřeném spektru (viz. Obr. 13) není patrný žádný pík odpovídající  $^{41}\text{Ca}$  ani po 24 hodinách měření. To neodpovídalo teoretickému obsahu  $^{41}\text{Ca}$ . Stanovením na ICP-MS

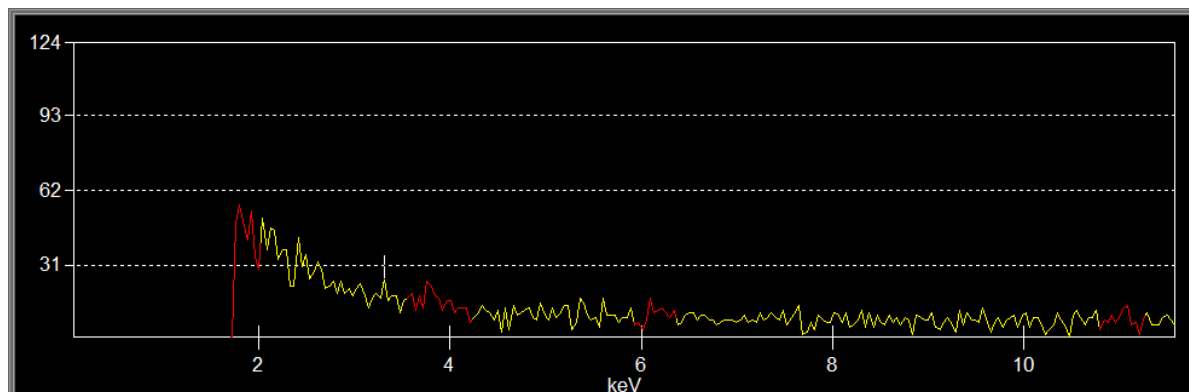
byla ověřena účinnost izolace  $^{41}\text{Ca}$  >60%, proto problém nemohl být v separaci, ale musel být v měření nebo teoreticky očekávané aktivitě v betonu.

Jedním z důvodů, proč nebyl  $^{41}\text{Ca}$  detekován, mohl být vysoký obsah vápníku přítomný v betonu. Separací vápníku se neoddělí  $^{41}\text{Ca}$  od přírodního a tak při přípravě vzorku na měření na X-ray spektrometrii přírodní vápník tvoří množství solí, které způsobují silnou samoabsorbci měřeného záření (3,3 keV) emitovaného  $^{41}\text{Ca}$  během jeho přeměny. Aby bylo možné ověřit, jestli se  $^{41}\text{Ca}$  ve vzorku nachází, byl použit ještě jeden způsob detekce – LSC. Jeho výhodou je vysoká účinnost, ale velká nevýhoda spočívá ve značné citlivosti na znečišťující příměsi, které u gama spektrometrie nevadí.

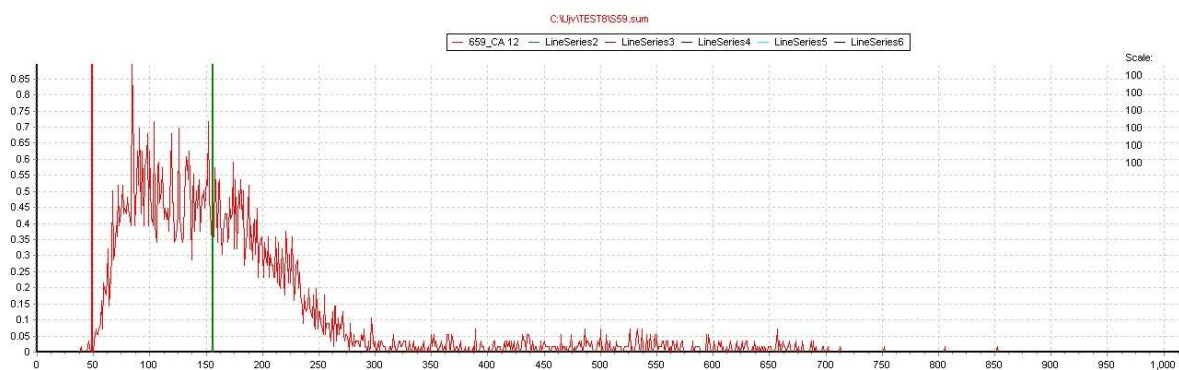
Proto byl vzorek měřený na X-ray spektrometrii rozpuštěn a smíchán se scintilačním roztokem a změřen na LSC (Obr. 14). Porovnáním naměřeného spektra s teoretickým spektrem (viz. zelené spektrum na Obr. 15) je patrné, že ve vzorku patrně  $^{41}\text{Ca}$  je přítomen, ale značně znečištěn nějakou interferenční příměsí. Takové spektrum nebylo možné využít pro vyhodnocení  $^{41}\text{Ca}$ .

To bylo důvodem k nalezení vhodnějšího způsobu izolace a čištění vápníku. Nejprve byla snaha modifikovat stávající postup, ale jen s malým zlepšením, které k výsledku nevedlo. Nakonec byl nalezen vhodný postup v článku Radiochemical determination of  $^{41}\text{Ca}$  in nuclear reactor concrete Xiaolin (2005), který přesně vyhovoval našemu požadavku, včetně měření na LSC. Aplikací tohoto postupu bylo dosaženo dokonalé izolace vápníku bez znečišťujících příměsí potvrzeného na LSC (viz. hnědá čára na Obr. 15).

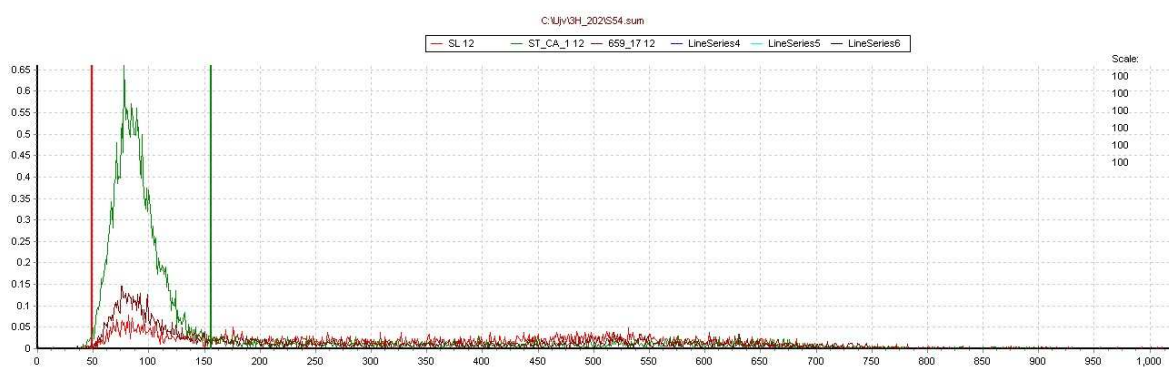
Výsledky analýzy pouze vzorků jsou uvedeny v Tab. 4 a Obr. 16.



**Obr. 13:** Gama spektrum vzorku s  $^{41}\text{Ca}$  - po 24hod měření není patrný žádný pík na energii 3,3 keV (označeno kurzorem).



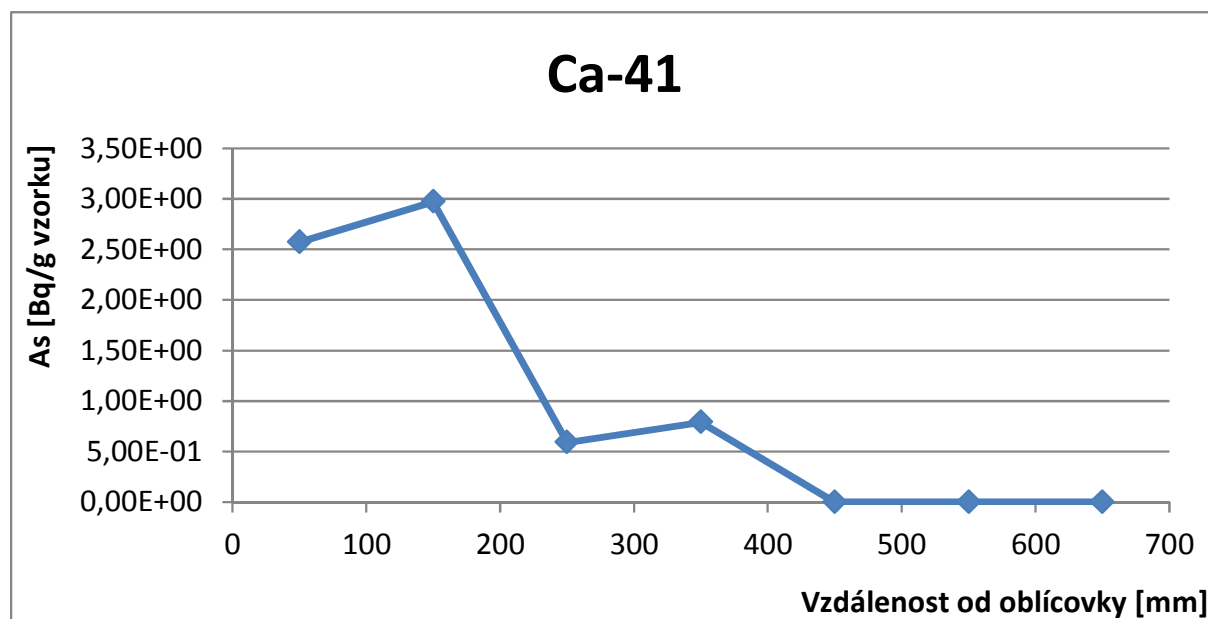
**Obr. 14:** Výsledek měření na LSC vzorku  $^{41}\text{Ca}$  připraveného původním postupem LP CA-41.



**Obr. 15:** Výsledek měření na LSC vzorku  $^{41}\text{Ca}$  připraveného novým postupem dle práce Xiaolin (2005).

**Tab. 4:** Výsledky analýz  $^{41}\text{Ca}$  v betonu biologického stínění JE Greifswald

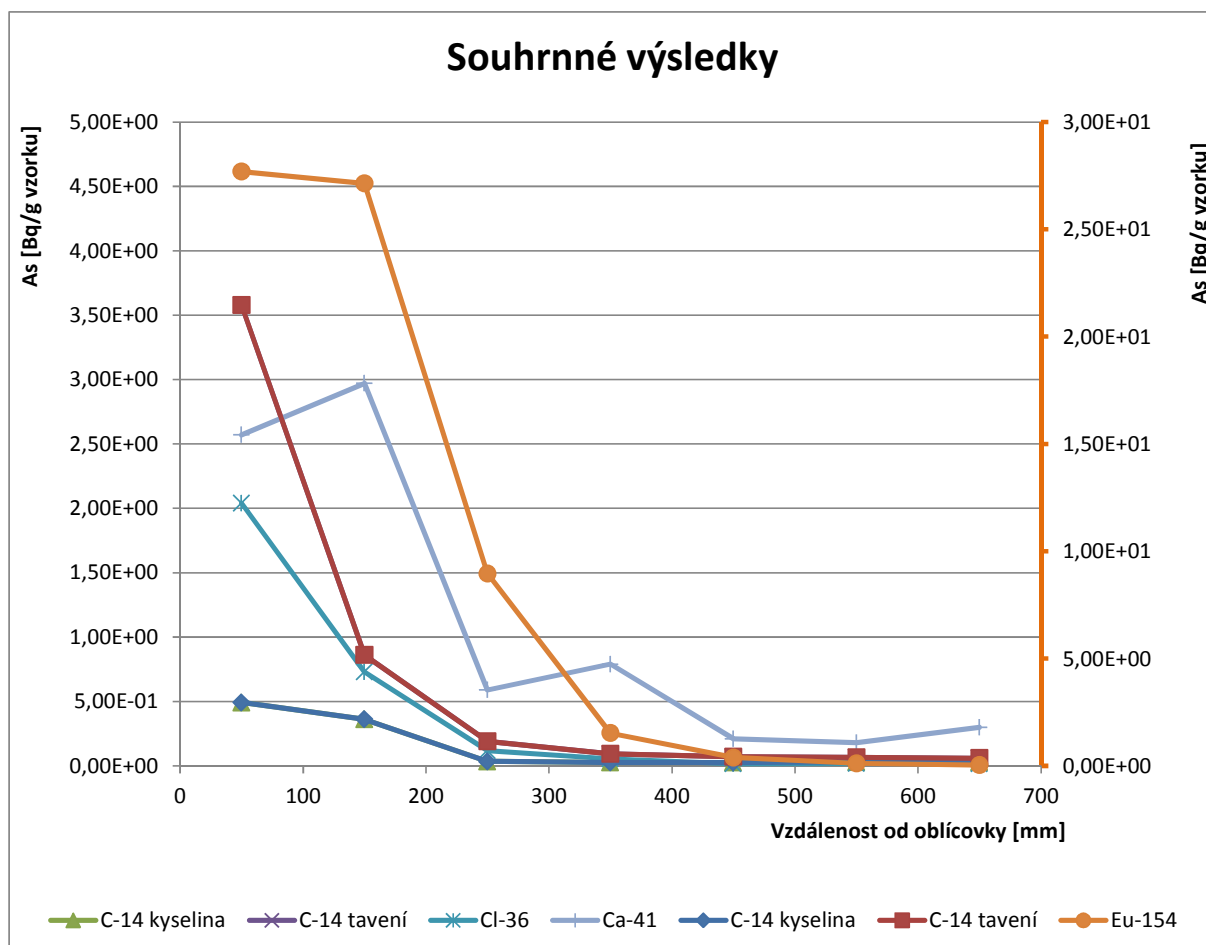
Vzdálenost od obličovky [mm]	č. vzorku	Aktivita Ca-41 [Bq/g betonu]		
50	<b>659/17</b>	2,57E+00	±	3,60E-01
150	<b>660/17</b>	2,97E+00	±	4,00E-01
250	<b>661/17</b>	5,90E-01	±	1,70E-01
350	<b>662/17</b>	7,90E-01	±	1,60E-01
450	<b>663/17</b>	< 2,10E-01		
550	<b>664/17</b>	< 1,80E-01		
650	<b>665/17</b>	< 3,00E-01		



Obr. 16: Profil aktivity <sup>41</sup>Ca v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu.

#### 4.4 Souhrn výsledků

Všechny výsledky jsou souhrnně uvedeny v následujícím grafu.



**Obr. 17:** Profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. Pro přehlednost grafu gama radionuklidy reprezentuje pouze  $^{154}\text{Eu}$ , jehož aktivity jsou vyneseny na ose vpravo označené oranžovou barvou. Levá osa zobrazuje hodnoty pro ostatní radionuklidy.

## 5 Vyhodnocení

### 5.1 Sledované radionuklidy

Cílem analýz provedených v rámci tohoto dílčího projektu bylo charakterizovat reálný vzorek biologického betonového stínění, který byl vystaven známému poli neutronového záření. Jednalo se o betonový segment, který pochází z pátého bloku jaderné elektrárny Greifswald v Německu. Výsledky analýz byly srovnány s předběžnými výsledky výpočtových ověření.

Analýzy byly zaměřené především na stanovení obsahu radionuklidů  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{41}\text{C}$ . Nicméně na základě prvotní gama spektrometrické analýzy odebraných vzorků byla zjištěna přítomnost radionuklidů  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  a  $^{154}\text{Eu}$ . Tyto radionuklidy mají původ v příměsích, které jsou obvykle obsaženy v přírodních materiálech (serpentinové štěrky a písky) z nichž je vyráběn beton sloužící jako biologické stínění v okolí tlakové nádoby jaderného reaktoru.

Níže je uvedena charakteristika sledovaných/zjištěných radionuklidů z pohledu jejich základních vlastností a geneze.

### 5.1.1 $^{14}\text{C}$

V jaderných reaktorech se izotop uhlíku  $^{14}\text{C}$  může tvořit pěti různými na sobě nezávislými reakcemi neutronů s izotopy prvků, které jsou běžnou součástí paliva, moderátoru, konstrukčních materiálů aktivní zóny a chladicí vody primárního okruhu. Mezi tyto izotopy patří  $^{13}\text{C}$ ,  $^{14}\text{N}$ ,  $^{15}\text{N}$ ,  $^{16}\text{O}$  a  $^{17}\text{O}$ . V případě izotopů  $^{15}\text{N}$  a  $^{16}\text{O}$  se jedná o prahové reakce s rychlými neutrony, jejichž účinný průřez se pohybuje řádově  $10^{-7}$ , resp.  $10^{-8}$  barnů a jejich výtěžek bude zanedbatelný. Významnějšími reakcemi jsou:

- $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  (účinný průřez 1,82 barnů pro tepelné neutrony)
- $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$  (účinný průřez 0,24 barnů pro tepelné neutrony)
- $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$  (účinný průřez  $10^{-3}$  barnů pro tepelné neutrony)

Vzhledem k minimálnímu zastoupení izotopu  $^{17}\text{O}$  v přírodě, lze i tuto reakci jako zdroj  $^{14}\text{C}$  zanedbat. Hlavním zdrojem  $^{14}\text{C}$  v betonu budou tedy reakce neutronů na izotopech  $^{14}\text{N}$  a  $^{13}\text{C}$ . Nicméně s ohledem na malé účinné průřezy pro dané reakce, resp. nízké zastoupení dusíku, lze očekávat i nízkou produkci  $^{14}\text{C}$ .

Poločas přeměny uhlíku  $^{14}\text{C}$  je 5730 let, poté se rozpadá na stabilní dusík  $^{14}\text{N}$ , přičemž dochází k emisi beta záření. Izotop uhlíku  $^{14}\text{C}$  je čistým emitorem beta záření o energii 156,48 keV, což činí stanovení jeho obsahu v materiálech značně problematickým.

### 5.1.2 $^{36}\text{Cl}$

Izotop  $^{36}\text{Cl}$  se nachází i v přírodě, nicméně pouze ve stopovém množství. V konstrukčních materiálech jaderného reaktoru vzniká  $^{36}\text{Cl}$  na základě zachytu tepelných neutronů jádrem  $^{35}\text{Cl}$ . Reakce probíhá s účinným průřezem pro tepelné neutrony 43,7 barnů. Izotop  $^{36}\text{Cl}$  se v betonu objevuje v malém množství v rámci výrobního postupu.

Poločas přeměny  $^{36}\text{Cl}$  je  $3 \cdot 10^5$  let. K přeměně dochází především beta rozpadem (98,1%) při němž vzniká  $^{36}\text{Ar}$  a v malé míře elektronovým zachytem (1,9%), který vede na  $^{36}\text{S}$ .

### 5.1.3 $^{41}\text{Ca}$

$^{41}\text{Ca}$  se nachází v přírodě pouze ve stopovém množství. Uměle vzniká v konstrukčních materiálech při zachytu tepelných neutronů jádrem  $^{40}\text{Ca}$ . Účinný průřez pro zachyt tepelných neutronů na jádrech  $^{40}\text{Ca}$  je 0,4 barnů.

Poločas přeměny  $^{41}\text{Ca}$  je  $1,03 \cdot 10^5$  let. Proces přeměny je založen na elektronovém zachytu, přičemž vzniká  $^{41}\text{K}$ . Při přeměně dochází k emisi charakteristického rentgenového záření. Díky své velké reaktivitě se vápník vyskytuje pouze ve sloučeninách, což činí stanovení obsahu izotopu  $^{41}\text{Ca}$  (s ohledem na způsob jeho přeměny) velmi problematickým.

### 5.1.4 $^{60}\text{Co}$

$^{60}\text{Co}$  je umělý radionuklid s poločasem přeměny 5,27 let, přičemž se rozpadá na  $^{60}\text{Ni}$ .  $^{60}\text{Co}$  vzniká především zachytem tepelných neutronů na jádrech  $^{59}\text{Co}$ , nicméně k jeho vzniku může dojít i reakcí neutronů se železem, resp. niklem. Účinný průřez pro zachyt tepelných

neutronů jádru  $^{59}\text{Co}$  je 37,2 barnů. Izotop  $^{59}\text{Co}$  se objevuje ve stopovém množství v betonu jako běžný kontaminant serpentinových štěrků a písků.

$^{60}\text{Co}$  se rozpadá na  $^{60}\text{Ni}$ , při přeměně jsou emitována gama kvanta, přičemž ty nejintenzivnější mají energii 1173,2 keV a 1332,5 keV. Je tedy dobře měřitelný na polovodičových spektrometrických systémech.

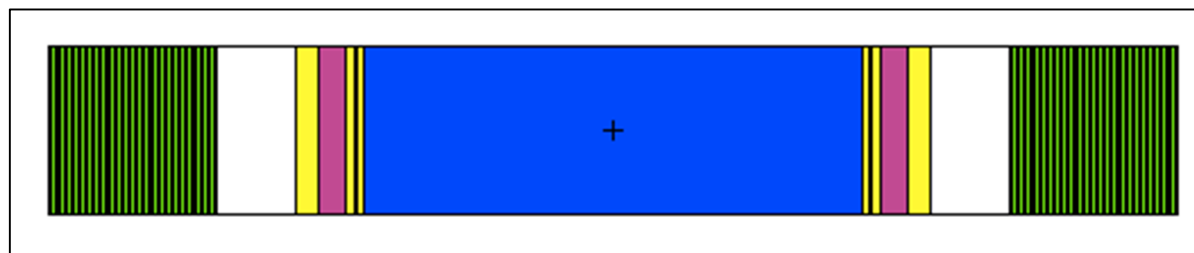
### 5.1.5 $^{152}\text{Eu}$ a $^{154}\text{Eu}$

V přírodě se europium vyskytuje pouze ve formě sloučenin, nicméně je obsaženo v řadě minerálů, a to je i důvod, proč se ve stopovém množství nachází v betonových směsích. Přírodní europium se skládá z izotopu  $^{151}\text{Eu}$  (47,8 %) a  $^{153}\text{Eu}$  (52,2 %). Tyto izotopy se při ozáření neutrony mění na  $^{152}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 13,54$  let), resp.  $^{154}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 8,59$  let). Účinný průřez pro záchyt tepelných neutronů na jádrech  $^{151}\text{Eu}$  je 5 900 barnů a pro záchyt tepelných neutronů na jádrech  $^{153}\text{Eu}$  je 312 barnů. Při přeměně izotopů  $^{152}\text{Eu}$  a  $^{154}\text{Eu}$  dochází k emisi záření gama o dostatečných energiích a intenzitách, takže jsou dobře měřitelné na polovodičových spektrometrických systémech.

## 5.2 Výpočtová ověření

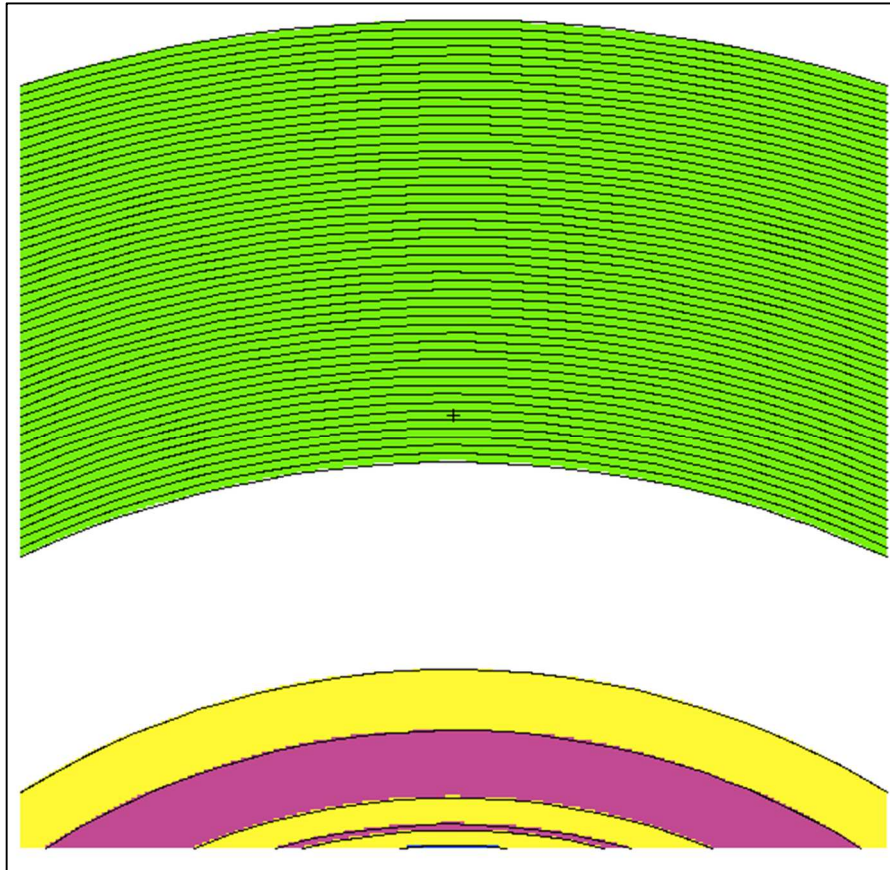
Model reaktoru byl vytvořen v programu MCNP5. Jednalo se o 2D model sestavený podle dostupné dokumentace poskytnuté dodavatelem bloku biologického stínění. Aktivní zóna byla homogenizována do objemového zdroje ve tvaru válce o poloměru 1502 mm. Bylo uvažováno čerstvé palivo  $\text{UO}_2$  bez obsahu Gd, s obsahem  $\text{H}_3\text{BO}_3$  ve vodě, ocelovým reflektorem. Byly zachovány hmotnostní zlomky všech materiálů. Neutronové spektrum vysílané homogenizovanou zónou bylo charakterizováno Wattovou distribucí s parametry  $a=0,988$ ,  $b=2,249$ . Neutronové spektrum v betonu bylo vypočteno ve formátu 238 energetických grup pomocí karty TALLY FMESH. Statistická nejistota vypočteného spektra nepřekročila v jednotlivých grupách hodnotu 10%.

Na Obr. 18 a Obr. 19 je podélný a příčný řez MCNP modelem reaktoru. Z obrázku je patrné rozdělení betonového biologického stínění do jednotlivých vrstev, které byly vytvořeny za účelem stanovení spektra neutronů v těchto vrstvách. Spektrum je normováno na 1 neutron vyslaný objemovým zdrojem. Tvary vypočtených spekter jsou vyobrazeny v grafech na Obr. 20

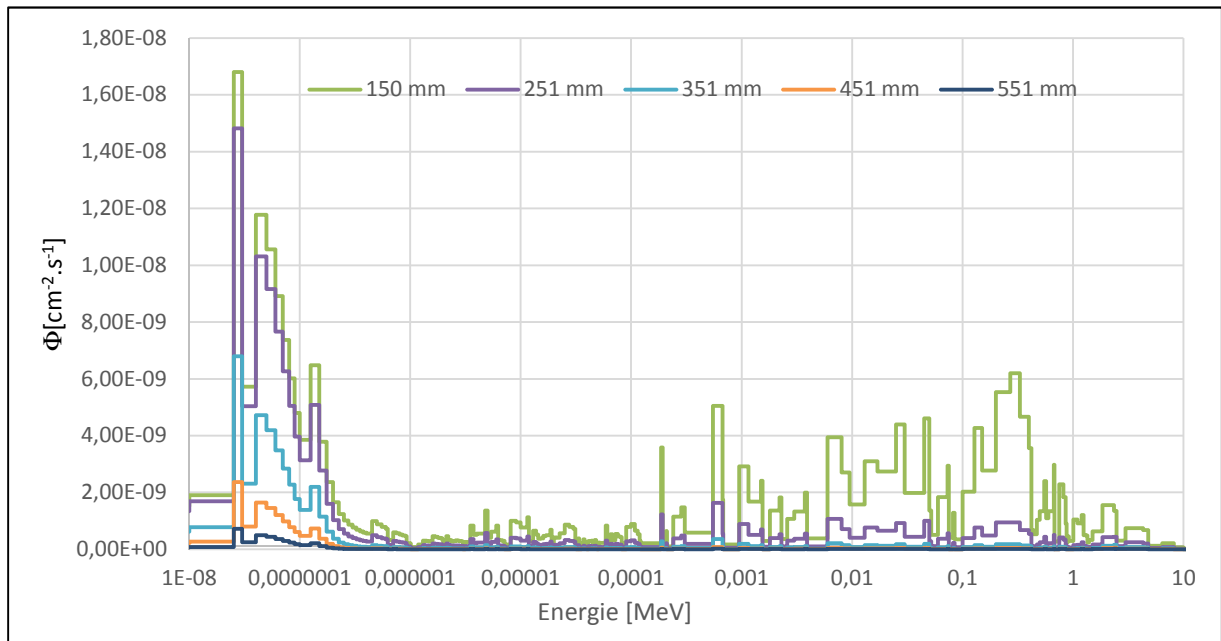


**Obr. 18:** Podélný řez zjednodušeným modelem reaktoru JE Greifswald (homogenizovaná aktivní zóna - modrá, vnitřními vestavby - žlutá, nádoba – fialová a biologické stínění –zelená).





**Obr. 19:** Příčný řez zjednodušeným modelem reaktoru JE Greifswald – detail betonového biologického stínění a jeho rozdělení na vrstvy.



**Obr. 20:** Ukázka vypočtených neutronových spekter v betonu ve vrstvách 151, 251, 351, 451 a 551 mm.

Klíčovým problémem u provedených výpočtů bylo stanovení přesného složení serpentinitového betonu. Složení betonu se může lišit především množstvím kontaminantů (Cl, Cd a Eu), které jsou pro tento typ betonu typické a také obsahem vodíku. Složení je určeno přírodními materiály, z nichž byl beton vyroben a také postupy použitými při jeho výrobě. Složení betonu má vliv nejen na radionuklidy vznikající následkem reakce s neutrony, ale i změnu spektra neutronů. Oba problémy jsou navíc vzájemně závislé.

Z dat poskytnutých dodavatelem bloku biologického stínění bylo možné stanovit pouze jeho hustotu, která byla  $2,280 \text{ g/cm}^3$ . Detailní prvkové složení betonu (viz Tab. 5) bylo pro účely výpočtu spektra neutronů převzato z benchmarkových experimentů prováděných na reaktoru LR-0, jejichž cílem bylo studovat vliv betonu použitým v JE Temelín na spektrum neutronů.

Pro výpočet produktů aktivace bylo použito jiné složení betonu, které vycházelo z kompendia Gesh et al (2017), s hustotou upravenou tak, aby odpovídala hustotě  $2,280 \text{ g/cm}^3$ . Jedná se o standardizované složení serpentinitových betonů doporučený pro účely výpočtů. Do tohoto složení byly uměle přidány kontaminanty kobaltu a europia podle dokumentu Carrol (2001) a chloru podle dokumentu National Ready Mixed Concrete Association (2017). Složení betonu, které bylo určeno pro výpočty produktů reakcí s neutrony je uvedeno v Tab. 6. Nicméně je nutné konstatovat, že toto složení nemusí odpovídat přesnému složení serpentinitového betonu, který se nachází ve zkoumaném segmentu z JE Greifswald.

Produkty reakce s neutrony v různých vrstvách betonu byly vypočteny pomocí kódu ORIGEN. V rámci zjednodušení výpočtu byla uvažována stejná hustota toku neutronů na vnitřním povrchu stínění po celou dobu ozařování. Jednalo se o hodnotu  $7,26 \cdot 10^{12} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , která byla převzata z dokumentace poskytnuté dodavatelem segmentu betonového stínění. Dále bylo zjednodušeně uvažováno, že beton byl vystaven tomuto neutronovému toku po dobu 219 dnů, hodnota byla odhadnuta na základě provozních údajů poskytnutých dodavatelem betonového bloku. Rekonstrukce přesného časového průběhu výkonu, a tím i hustoty toku neutronů, nebyla v tomto případě provedena z důvodů přílišné časové náročnosti výpočtu. Čas od ukončení aktivace do měření činí 10 135 dnů.

**Tab. 5:** Složení serpentinitu použité při výpočtu spektra neutronů

Izotop	Hmotnostní zastoupení (%)	Izotop	Hmotnostní zastoupení (%)
H-1	0,9298	Cr-53	0,0425
Cnat	0,9004	Cr-54	0,0099
O-16	46,4827	Mn-55	0,0025
Na-23	0,1558	Fe-54	0,0657
Mg-24	7,5116	Fe-56	0,2189
Mg-25	0,9906	Fe-57	3,5639
Mg-26	1,1342	Fe-58	0,0838
Al-27	1,8237	Fe-59	0,0113

Si-28	14,1755	Fe-60	0,0632
Si-29	0,7450	Fe-61	0,0252
P-31	0,5072	Fe-62	0,0011
S-32	0,0261	Fe-64	0,0036
K-39	1,0123		
K-40	0,4399		
K-41	0,0001		
Ca-40	0,0334		
Ca-42	18,3552		
Ca-43	0,1286		
Ca-44	0,0275		
Ca-46	0,4344		
Ca-48	0,0009		

**Tab. 6:** Složení serpentinu použité při výpočtu produktů aktivace neutrony (Gesh et al (2017); Carrol (2001); National Ready Mixed Concrete Association (2017))

<b>Izotop</b>	<b>Atomová hustota (10<sup>-24</sup>/cm<sup>3</sup>)</b>	<b>Izotop</b>	<b>Atomová hustota (10<sup>-24</sup>/cm<sup>3</sup>)</b>
H-1	2.1869E-02	Cr-50	1.0537E-06
Cnat	1.0491E-04	Cr-52	2.0319E-05
O-16	4.4324E-02	Cr-53	2.3040E-06
Na-23	2.4659E-04	Cr-54	5.7352E-07
Mg-24	6.0790E-03	Fe-54	4.4823E-05
Mg-25	7.6959E-04	Fe-56	7.0362E-04
Mg-26	8.4732E-04	Fe-57	1.6249E-05
Al-27	9.8032E-04	Fe-58	2.1626E-06
Si-28	9.5136E-03	Co-59	7.3373E-08
Si-29	4.8308E-04	Eu-151	1.5715E-09

 <b>SÚRAO</b>	<b>Biologické stínění reaktoru</b>	Evidenční označení:
		<b>SÚRAO TZ 203/2017</b>

Si-30	3.1845E-04	Eu-153	1.7155E-09
K-39	1.3519E-04	Cl-35	6.7321E-06
K-40	1.6961E-08	Cl-37	2.1516E-06
K-41	9.7570E-06		
Ca-40	2.2851E-03		
Ca-42	1.5251E-05		
Ca-43	3.1822E-06		
Ca-44	4.9171E-05		
Ca-46	9.4283E-08		
Ca-48	4.4078E-06		

### 5.3 Srovnání experimentálních a vypočtených hodnot

Na základě výše uvedených údajů byly provedeny první zjednodušené výpočtové analýzy. Ty posloužily pro ověření experimentálně získaných výsledků radiochemických analýz. Samotný postup měření a jeho výsledky jsou shrnuty v kapitole 4.

Srovnání vypočtených a experimentálních hodnot je uvedeno pro jednotlivé pozice v Tab. 7 až Tab. 12.

**Tab. 7:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 659/17 (50 mm)

Radionuklid	$A_{\text{exp.}}$ (Bq/g)	$A_{\text{teor.}}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$282,57 \pm 3,06$	97,77	0,35
$^{152}\text{Eu}$	$45,73 \pm 4,46$	1363,97	29,83
$^{154}\text{Eu}$	$3,03 \pm 0,40$	60,63	20,01
$^{36}\text{Cl}$	$2,04 \pm 0,24$	6,62	3,25
$^{41}\text{Ca}$	$2,20 \pm 0,47$	62,39	28,36
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$0,490 \pm 0,039$	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	3,78		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$3,57 \pm 0,12$		

**Tab. 8:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 660/17 (150 mm)

Radionuklid	$A_{\text{exp.}}$ (Bq/g)	$A_{\text{teor.}}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$299,62 \pm 2,94$	18,33	0,06
$^{152}\text{Eu}$	$50,01 \pm 4,38$	231,6	4,63
$^{154}\text{Eu}$	$2,97 \pm 0,34$	16,55	5,57
$^{36}\text{Cl}$	$0,73 \pm 0,13$	1,16	1,59
$^{41}\text{Ca}$	$2,60 \pm 0,51$	11,08	4,26
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$0,361 \pm 0,030$	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$0,858 \pm 0,064$		

**Tab. 9:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 661/17 (250 mm)

Radionuklid	$A_{\text{exp.}}$ (Bq/g)	$A_{\text{teor.}}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$88,73 \pm 8,66$	3,66	0,04
$^{152}\text{Eu}$	$20,85 \pm 1,76$	41,69	2,00
$^{154}\text{Eu}$	$0,98 \pm 0,10$	4,17	4,26
$^{36}\text{Cl}$	$0,118 \pm 0,027$	0,219	1,86
$^{41}\text{Ca}$	$0,44 \pm 0,27$	2,13	4,84
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$0,035 \pm 0,008$	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$0,190 \pm 0,048$		

**Tab. 10:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 662/17 (350 mm)

Radionuklid	$A_{\text{exp.}}$ (Bq/g)	$A_{\text{teor.}}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$19,81 \pm 2,04$	0,81	0,04
$^{152}\text{Eu}$	$3,70 \pm 0,17$	9,21	2,49
$^{154}\text{Eu}$	$0,167 \pm 0,018$	0,89	5,33
$^{36}\text{Cl}$	$0,056 \pm 0,017$	0,048	0,86
$^{41}\text{Ca}$	$0,54 \pm 0,22$	0,48	0,88
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$< 0,027$	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$0,093 \pm 0,047$		

**Tab. 11:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 663/17 (450 mm)

Radionuklid	$A_{exp.}$ (Bq/g)	$A_{teor.}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$4,21 \pm 0,42$	0,04	0,01
$^{152}\text{Eu}$	$1,08 \pm 0,094$	0,58	0,54
$^{154}\text{Eu}$	$0,0430 \pm 0,0,0068$	0,03	0,70
$^{36}\text{Cl}$	0,0163	0,003	0,18
$^{41}\text{Ca}$	< 0,39	0,13	-
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	0,026	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	0,071		

**Tab. 12:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 664/17 (550 mm)

Radionuklid	$A_{exp.}$ (Bq/g)	$A_{teor.}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$0,926 \pm 0,114$	0,0047	0,01
$^{152}\text{Eu}$	$0,231 \pm 0,026$	0,0643	0,28
$^{154}\text{Eu}$	$0,0126 \pm 0,0020$	0,0032	0,25
$^{36}\text{Cl}$	< 0,018	0,0003	-
$^{41}\text{Ca}$	< 0,35	0,04	-
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	< 0,030	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	< 0,066		

## 5.4 Zhodnocení výsledků

Z výsledků uvedených v předchozí kapitole (5.3) vyplývá neshoda mezi měřeními a vypočtenými hodnotami.

Oproti původním výpočtům (použita jedna úroveň hustoty toku, a tedy konstantní průběh ozařovací historie betonu) byla neshoda výrazně snížena (cca o dva řády) díky přesnějšímu popisu modelované ozařovací historie betonu. K tomuto účelu posloužila historie provozu bloku uvedená v provozním diagramu (viz Obr. 1 v kapitole 2.2). Historie ozařování betonu byla rekonstruována v maximální možné míře podle tohoto diagramu.

V současnosti je hlavním zdrojem rozdílu mezi vypočtenými a experimentálně určenými hodnotami neznámé složení betonu. Složení použité ve výpočtech vycházelo z doporučení nalezených v dokumentu Gesh et al (2017), složení příměsí (Cl a Eu) bylo odhadnuto na základě hodnot používaných v literatuře Carrol (2001) a National Ready Mixed Concrete Association (2017). Nicméně toto složení se může od skutečného značně lišit.

Z tohoto důvodu by bylo přínosné provést chemické nebo jiné (např. NAA) analýzy, které by pomohly upřesnit složení betonu a zpřesnit tak výpočtový model. Vhodné by bylo, co

nejpřesněji určit nejen primární množství příměsí, ale také prvků vedoucích k produkci vybraných kritických radionuklidů ( $^{14}\text{C}$  a  $^{41}\text{Ca}$ ), kterými jsou například dusík nebo vápník. Při výpočtech nebyla vůbec zaznamenána produkce uhlíku  $^{14}\text{C}$ , což lze vysvětlit tím, že dusík nebyl uveden v chemickém složení betonu a tudíž nebyl zadán do výpočetního modelu. Přitom reakce  $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  je o více jak tři řády pravděpodobnější než reakce  $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$ .

Z pohledu výpočtů je, kromě příměsí, důležité také znát množství vodíku, který má vliv na spektrum neutronů. Ocenit tento vliv lze na základě informací z dostupné literatury a provedení potřebné citlivostní analýzy, která však je časově náročná. Výpočet spektra v jednotlivých vrstvách betonu trvá přibližně 21 dnů. Nicméně i tato analýza by byla přínosná.

## 5.5 Srovnání experimentálních hodnot s predikcemi pro JE Dukovany

Získané experimentální hodnoty z radio-chemických analýz biologického betonového stínění reaktorové nádoby 5. bloku JE Greifswald mohou posloužit k ověření výpočtových predikcí, které byly zpracovány v rámci návrhu způsobu vyřazování z provozu JE Dukovany. Na 5. bloku JE Greifswald byl provozován stejný typ jaderného reaktoru (VVER-440/213), jako jsou provozovány v JE Dukovany.

Výsledky výpočtů aktivačních produktů v technologických částech reaktoru JE Dukovany jsou zpracovány v dokumentu EGP Invest (2012). Pro účely srovnání s výsledky z analýz biologického betonového stínění z JE Greifswald byly vybrány v dokumentu EGP Invest (2012) hodnoty aktivit radionuklidů, které jsou očekávány v případě zahájení okamžitého vyřazování JE Dukovany z provozu. Jedná se o vyřazování po dosažení projektové životnosti elektrárny, tj. 30 let. Vybrány byly pouze radionuklidy, které byly identifikovány i v analyzovaném biologickém betonovém stínění JE Greifswald. V případě JE Greifswald byly použity hodnoty z analýzy vzorku č. 659/17 (nejblíže reaktorové nádobě). Srovnání hodnot aktivit těchto radionuklidů je provedeno v Tab. 13.

**Tab. 13:** Přehled aktivačních produktů a jejich aktivit v případě serpentínového betonu použitého na JE Greifswald (experimentálně zjištěná data –  $A_{\text{Greifswald}}$ ) a na JE Dukovany (teoretické hodnoty –  $A_{\text{JEDU}}$ ).

Radionuklid	$A_{\text{Greifswald}}$ (Bq/g)	$A_{\text{JEDU}}$ (Bq/g)	$A_{\text{Greifswald}} / A_{\text{JEDU}}$
$^{60}\text{Co}$	$282,57 \pm 3,06$	102	2,77
$^{36}\text{Cl}$	$2,04 \pm 0,24$	0,101	20,20
$^{41}\text{Ca}$	$2,20 \pm 0,47$	4 240	$5,19 \cdot 10^{-4}$
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$0,490 \pm 0,039$	364	$1,35 \cdot 10^{-3}$
$^{14}\text{C}$ (spalování)	3,78		$1,04 \cdot 10^{-2}$
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$3,57 \pm 0,12$		$9,80 \cdot 10^{-3}$

Jak vyplývá z *Tab. 13*, nebyly v analýzách provedených pro JE Dukovany zjištěny radioizotopy  $^{152}\text{Eu}$  a  $^{154}\text{Eu}$ . Tyto vzácné zeminy, které se obvykle nacházejí jako příměs v serpentinových betonech, nebyly zřejmě ve výpočtech pro JE Dukovany uvažovány.

Abychom mohli provést korektní srovnání výše uvedených hodnot, bylo by nutné přepočítat (korigovat) aktivity radionuklidů zjištěné v případě JE Greifswald na historii ozařování betonu v JE Dukovany, nebo opačně. 5. Blok JE Greifswald byl v provozu několik desítek dnů s maximálně dosaženým výkonem 220 MW<sub>t</sub>. Oproti tomu analýzy provedené pro JE Dukovany odpovídají 30-letému provozu elektrárny na maximálním výkonu. Nicméně i bez těchto korekcí, lze vysledovat v uvedených datech překvapivě odlišnosti.

V první řadě je pozoruhodný rozdíl v aktivitě  $^{60}\text{Co}$ , která je v případě JE Greifswald vyšší (cca 3x) než v případě JE Dukovany. Tento radionuklid má nejkratší poločas přeměny ( $T_{1/2} = 5,27$  let) ze všech porovnávaných, a proto by se jeho aktivita měla v případě JE Dukovany blížit satureované aktivitě a zároveň by měla být vyšší i z důvodů vyššího ozařovacího výkonu. Taktéž aktivita  $^{36}\text{Cl}$  je v případě JE Dukovany výrazně nižší (cca 20x), než v případě JE Greifswald, přestože se u JE Dukovany jedná o delší dobu ozařování i vyšší výkon. Tyto skutečnosti by mohly indikovat překvapivě výrazně nižší množství příměsí  $^{59}\text{Co}$  a  $^{35}\text{Cl}$  v serpentinovém betonu, který byl použit v JE Dukovany. Naopak aktivita  $^{14}\text{C}$  je v případě JE Dukovany o dva až tři řády vyšší (viz *Tab. 13*), než v případě JE Greifswald. To může být způsobeno jak výrazně delší dobou ozařování, tak i vyšším výkonem v případě JE Dukovany. Nicméně s ohledem na reakce vedoucí ke vzniku  $^{14}\text{C}$  a jejich účinné průřezy, je hodnota aktivity tohoto radionuklidu v případě JE Dukovany překvapivě vysoká.

## 6 Závěr

Cílem tohoto dílčího projektu je ověřit údaje pro výpočet zdrojového členu pro bezpečnostní rozboru hlubinného úložiště pro biologické stínění reaktoru jako zdroje RAO nepřijatelného do přípovrchových úložišť, se zvláštním zřetelem k obsahu radionuklidů  $^{14}\text{C}$ ,  $^{41}\text{Ca}$  a  $^{36}\text{Cl}$ . K tomuto účelu byla využita unikátní možnost destruktivní radiochemické analýzy reálných vzorků ozářeného betonu, pocházející z vyřazovaného 5. bloku jaderné elektrárny Greifswald, která byla stejného typu jako je jaderná elektrárna Dukovany.

Byly odebrány vzorky v místech s odlišnou vzdáleností od reaktorové nádoby a provedeny radiochemické analýzy těchto vzorků. Byly změřeny tyto radionuklidy:  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152,154}\text{Eu}$ . Aktivity těchto radionuklidů byly porovnány s vypočtenými hodnotami přímo pro JE Greifswald, provedenými v rámci tohoto projektu, a s hodnotami pro JE Dukovany napočtenými v dokumentu EGP Invest (2012).

**Naměřené a modelově vypočtené hodnoty aktivit vybraných radionuklidů jsou ve vzájemném rozporu, který v případě některých radionuklidů dosahuje až násobků jednoho řádu. S ohledem na zpřesněný model ozařovací historie betonu, spočívá hlavní neurčitost v nepřesném popisu složení betonu. Aby mohla být experimentálně zjištěná data s dostatečnou přesností výpočtově ověřena, je nutné určit přesné složení zkoumaného betonu. Toho lze docílit pouze na základě dodatečných analýz (viz kapitola 5.4.).**



## 7 Reference:

*EGP Invest, spol. s r.o. - Návrh způsobu vyřazování z provozu JE Dukovany, 12/2012.*

*C.J., Gesh, et al. - Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling, Washington, D.C. : United States. Dept. of Energy.; Oak Ridge, Tenn.: distributed by the Office of Scientific and Technical Information, U.S. Dept. of Energy, 2011, online [http://www.pnnl.gov/main/publications/external/technical\\_reports/pnnl-15870rev1.pdf](http://www.pnnl.gov/main/publications/external/technical_reports/pnnl-15870rev1.pdf), [30-09-2017]*

*L.R., Carroll - Predicting Long-Lived, Neutron-Induced Activation of Concrete in a Cyclotron Vault, AIP Conference Proceedings 576, 301 (2001); doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1395309>.*

*National Ready Mixed Concrete Association. - Technology in Practice 13, Chloride Limits in Concrete, online: <http://www.nrmca.org/aboutconcrete/downloads/Tip13.pdf>, [30-09-2017]*

*H., Xiaolin - Radiochemical determination of  $^{41}\text{Ca}$  in nuclear reactor concrete, Radiochimica Acta 93(9):611-617, January 2005*

Citace vnitřních předpisů CAL-ZL:

- PP 2405 269 *Provedení nestandardní činnosti: Pro práci se zvýšeným radiačním rizikem při vzorkování biologického stínění reaktoru – betonový blok Greifswald“*
- SOP R-01 *Stanovení aktivity izotopů - zářičů gama - metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením*
- SOP R-18 *Stanovení aktivity  $^{36}\text{Cl}$  metodou kapalinové scintilační spektrometrie*
- SOP R-05 *Stanovení aktivity  $^{14}\text{C}$  kapalinovou scintilační spektrometrií*
- LP CA-41 *Stanovení  $^{41}\text{Ca}$  ve vzorcích z provozu jaderných elektráren a okolí metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením (neakreditovaný postup)*

# NAŠE BEZPEČNÁ BUDOUCNOST



**SÚRAO**

Správa úložišť radioaktivních odpadů

Dlážděná 6, 110 00 Praha 1

Tel.: 221 421 511, E-mail: [info@surao.cz](mailto:info@surao.cz)

[www.surao.cz](http://www.surao.cz)

Technická zpráva číslo 203/2017

---

# BIOLOGICKÉ STÍNĚNÍ REAKTORU

---

Autoři: Karel Svoboda  
a kolektiv

ÚJV Řež, a. s.  
Praha, Říjen 2017



SÚRAO

**Název projektu: Výzkumná podpora pro bezpečnostní hodnocení hlubinného úložiště**

**Název dílčího projektu: Charakterizace RAO nepřijatelného do přípovrchového úložiště z vyřazování jaderné elektrárny – biologické stínění reaktoru**

**Název zprávy: Biologické stínění reaktoru**

**Závěrečná zpráva**

*Evidenční číslo objednatele: SÚRAO TZ 203/2017*

*Evidenční číslo poskytovatele: PB-2017-ZZ-S4289-035-BiologStineni*

**ŘEŠITELÉ:**

**ÚJV Řež, a. s.**

**Autoři: Karel Svoboda**

Autorský kolektiv: David Šír, Patrick Burian, Vlastimil Miler, Josef Matěcha, Radek Pošvař, Radek Trtílek





SÚRAO

## Obsah

<b>1</b>	<b>Úvod</b> .....	<b>11</b>
<b>2</b>	<b>Popis bloku biologického stínění</b> .....	<b>11</b>
2.1	Historie a původ bloku .....	11
2.2	Historie ozařování .....	12
2.3	Popis bloku .....	13
2.4	Radiační mapa na povrchu bloku .....	18
<b>3</b>	<b>Vzorkování</b> .....	<b>19</b>
3.1	Příprava a odběr vzorků .....	19
3.2	Odběr vzorků .....	19
<b>4</b>	<b>Zpracování a analýzy vzorků</b> .....	<b>21</b>
4.1	Zpracování vzorků .....	21
4.2	Gama spektrometrické měření .....	21
4.3	Radiochemické stanovení těžko stanovitelných radionuklidů .....	23
4.3.1	Stanovení $^{14}\text{C}$ .....	23
4.3.2	Stanovení $^{36}\text{Cl}$ .....	25
4.3.3	Stanovení $^{41}\text{Ca}$ .....	26
4.4	Souhrn výsledků .....	29
<b>5</b>	<b>Vyhodnocení</b> .....	<b>30</b>
5.1	Sledované radionuklidy .....	30
5.1.1	$^{14}\text{C}$ .....	31
5.1.2	$^{36}\text{Cl}$ .....	31
5.1.3	$^{41}\text{Ca}$ .....	31
5.1.4	$^{60}\text{Co}$ .....	31
5.1.5	$^{152}\text{Eu}$ a $^{154}\text{Eu}$ .....	32
5.2	Výpočtová ověření .....	32
5.3	Srovnání experimentálních a vypočtených hodnot .....	36
5.4	Zhodnocení výsledků .....	38
5.5	Srovnání experimentálních hodnot s predikcemi pro JE Dukovany .....	39
<b>6</b>	<b>Závěr</b> .....	<b>40</b>
<b>7</b>	<b>Reference:</b> .....	<b>41</b>

## Seznam obrázků:

<b>Obr. 1:</b> Diagram provozu 5. bloku JE Greifswald (1 – 57: poruchy; a – k: testovací poklesy výkonu; A: přerušení zkušebního provozu).....	13
<b>Obr. 2:</b> Betonový segment (číslo 1), jako součást šachty reaktoru (horizontální řez).....	14
<b>Obr. 3:</b> Betonový segment biologického stínění z šachty reaktoru 5. bloku JE Greifswald ...	15
<b>Obr. 4:</b> Vertikální řez segmentem betonového stínění.....	16
<b>Obr. 5:</b> Vertikální pozice betonového biologického stínění v šachtě reaktoru (označeno červeně). .....	17
<b>Obr. 6:</b> Vertikální pozice betonového biologického stínění v šachtě reaktoru. ....	18
<b>Obr. 7:</b> Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu. ....	19
<b>Obr. 8:</b> Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu a vyznačení odběrových míst.	20
<b>Obr. 9:</b> Fotografie dokumentující způsob a průběh odběru vzorků z betonového segmentu.	21
<b>Obr. 10:</b> Profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. ....	23
<b>Obr. 11:</b> Profil aktivity $^{14}\text{C}$ v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. ....	25
<b>Obr. 12:</b> Profil aktivity $^{36}\text{Cl}$ v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. ....	26
<b>Obr. 13:</b> Gama spektrum vzorku s $^{41}\text{Ca}$ - po 24hod měření není patrný žádný pík na energii 3,3 keV (označeno kurzorem).....	27
<b>Obr. 14:</b> Výsledek měření na LSC vzorku $^{41}\text{Ca}$ připraveného původním postupem LP CA-41. ....	28
<b>Obr. 15:</b> Výsledek měření na LSC vzorku $^{41}\text{Ca}$ připraveného novým postupem dle práce Xiaolin (2005). ....	28
<b>Obr. 16:</b> Profil aktivity $^{41}\text{Ca}$ v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. ....	29
<b>Obr. 17:</b> Profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. Pro přehlednost grafu gama radionuklidu reprezentuje pouze $^{154}\text{Eu}$ , jehož aktivity jsou vyneseny na ose vpravo označené oranžovou barvou. Levá osa zobrazuje hodnoty pro ostatní radionuklidy. ....	30
<b>Obr. 18:</b> Podélný řez zjednodušeným modelem reaktoru JE Greifswald (homogenizovaná aktivní zóna - modrá, vnitřními vestavby - žlutá, nádoba – fialová a biologické stínění – zelená). ....	32
<b>Obr. 19:</b> Příčný řez zjednodušeným modelem reaktoru JE Greifswald – detail betonového biologického stínění a jeho rozdělení na vrstvy. ....	33
<b>Obr. 20:</b> Ukázka vypočtených neutronových spekter v betonu ve vrstvách 151, 251, 351, 451 a 551 mm. ....	33



## Seznam tabulek:

<b>Tab. 1:</b> Výsledky gama spektrometrické analýzy odebraných vzorků (v pořadí od místa nejbližšího k reaktoru k místu nejvzdálenějšímu).....	22
<b>Tab. 2:</b> Výsledky analýz $^{14}\text{C}$ v betonu biologického stínění JE Greifswald.....	24
<b>Tab. 3:</b> Výsledky analýz $^{36}\text{Cl}$ v betonu biologického stínění JE Greifswald.....	26
<b>Tab. 4:</b> Výsledky analýz $^{41}\text{Ca}$ v betonu biologického stínění JE Greifswald.....	28
<b>Tab. 5:</b> Složení serpentinu použité při výpočtu spektra neutronů.....	34
<b>Tab. 6:</b> Složení serpentinu použité při výpočtu produktů aktivace neutrony (Gesh et al (2017); Carrol (2001); National Ready Mixed Concrete Association (2017)).....	35
<b>Tab. 7:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 659/17 (50 mm).....	36
<b>Tab. 8:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 660/17 (150 mm).....	37
<b>Tab. 9:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 661/17 (250 mm).....	37
<b>Tab. 10:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 662/17 (350 mm).....	37
<b>Tab. 11:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 663/17 (450 mm).....	38
<b>Tab. 12:</b> Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 664/17 (550 mm).....	38
<b>Tab. 13:</b> Přehled aktivačních produktů a jejich aktivit v případě serpentínového betonu použitého na JE Greifswald (experimentálně zjištěná data – A <sub>Greifswald</sub> ) a na JE Dukovany (teoretické hodnoty - A <sub>JEDU</sub> ).....	39

### Seznam použitých zkratk:

CAL-ZL	Centrální analytická laboratoř – zkušební laboratoř č. 1093.4
DGR	Deep geological disposal (uložení v hlubinném úložišti)
HPGe	Vysoce čisté germanium (High purity germanium)
HÚ	Hlubinné úložiště
ICP-MS	hmotová spektrometrie s indukčně vázaným plazmatem
JE	Jaderná elektrárna
LP	Laboratorní postup laboratoře
LSC	Liquid scintillation counting (kapalinová scintilační detekce/spektrometrie)
MCNP	výpočtový software na bázi pravděpodobnostního počtu „Monte Carlo“
PDE	Příkon dávkového ekvivalentu
PE	Polyetylén
PP	Pracovní postup
RAO	Radioaktivní odpad
RAW	Radioactive waste (radioaktivní odpad)
SOP	Standardní operační postup laboratoře
SÚRAO	Správa úložišť radioaktivních odpadů
UOS	Ukládací obalový soubor
VJP	Vyhořelé jaderné palivo

## Abstrakt

Beton, který slouží jako konstrukce pro umístění reaktorové nádoby v reaktorové budově (tzv. stavební šachta reaktoru), zároveň plní funkci biologického stínění reaktoru. Tento beton je vystaven dlouhodobému intenzivnímu ozařování jak zářením gama, tak proudem neutronů. Z aktivačních výpočtů, provedených pro účely návrhů koncepce vyřazování jaderných elektráren vyplývá, že měrná aktivita radionuklidů je: pro C-14 řádově  $10^5$  Bq/kg, pro Cl-36 cca  $10^2$  Bq/kg a pro Ca-41 je to řádově  $10^6$  Bq/kg. Celková předpokládaná hmotnost betonu k uložení do hlubinného úložiště činí cca 277 tun z vyřazování stávajících bloků a obdobná hmotnost betonu je pak předpokládána z vyřazování eventuálních nových zdrojů. To činí obsah těchto radionuklidů významnou součástí zdrojového členu radioaktivních odpadů jiných, než je vyhořelé palivo.

Cílem tohoto dílčího projektu je ověřit údaje pro výpočet zdrojového členu pro bezpečnostní rozbor hlubinného úložiště pro biologické stínění reaktoru jako zdroje RAO nepřijatelného do přípovrchových úložišť, se zvláštním zřetelem k obsahu radionuklidů C-14, Cl-36 a Ca-41. K tomuto účelu bude využita unikátní možnost destruktivní radiochemické analýzy reálných vzorků ozářeného betonového biologického stínění z vyřazované elektrárny typu VVER-440 v Greifswaldu, která byla stejného typu jako je jaderná elektrárna Dukovany. Na základě exaktně stanovené měrné aktivity betonu podél radiálního profilu v místě maxima příkonu dávkového ekvivalentu a poměru četnosti impulsů v síti po celé vnitřní válcové ploše segmentu bude výpočtem odhadnut celkový obsah radionuklidů v segmentu.

## Klíčová slova

hlubinné úložiště, radiochemická analýza, biologické stínění, C-14, Cl-36, Ca-41

## Abstract

The concrete, enabling to locate the reactor vessel inside the reactor building, fulfill also a function of a biological reactor shielding. The concrete is exposed to long-term intense gamma rays and neutrons radiation. Using the activation calculations, performed for the purpose of NPP decommissioning appears that specific activity of the radionuclide is: for the C-14 of the order of  $10^5$  Bq/kg, for Cl-36 of about  $10^2$  Bq/kg and for Ca-41 of about  $10^6$  Bq/kg. Estimated total weight of concrete for DGR disposal is about 277 metric tons from decommissioning of existing NPPs and similar mass concrete is expected from the potential decommissioning of new resources. Therefore, such an inventory plays an important part of the radionuclide source term of radioactive waste other than spent fuel.

The objective of the project is to verify input data for the source term calculation used for DGR safety assessment for biological shielding of the reactor as a source of RAW unacceptable in near-surface repositories, with respect to the content of radionuclides C-14, Cl-36 and Ca-41. Therefore, there is a unique possibility to provide destructive radiochemical analyses of real samples of the irradiated biological concrete shielding, originating from decommissioning of NPP Greifswald (VVER-440 type). The NPP was the same type as a Dukovany NPP. The total content of radionuclides in the biological shielding will be estimated by calculation on the basis of specific activity determination along the radial profile of maximum dose equivalent rate over the entire internal cylindrical surface of the concrete biological shielding segment.

## Keywords

Deep geological repository, radiochemical analysis, biological shielding, C-14, Cl-36, Ca-41

## 1 Úvod

Tato zpráva byla zpracována v rámci projektu SÚRAO „Výzkumná podpora bezpečnostního hodnocení hlubinného úložiště“, který je součástí přípravy hlubinného úložiště radioaktivních odpadů (dále jen HÚ). Cílem projektu je získat vybraná data, modely, argumenty a další informace potřebné pro zhodnocení potenciálních lokalit pro umístění HÚ z hlediska dlouhodobé bezpečnosti. Na základě veřejného zadávacího řízení byla v červenci 2014 uzavřena čtyřletá smlouva s ÚJV Řež, a. s. a jeho subdodavatel: Českou geologickou službou; ČVUT v Praze; Technickou univerzitou v Liberci; Ústavem Geoniky AV ČR, v. v. i.; a společnostmi SG Geotechnika a.s.; Progeo, s. r. o.; Chemcomex Praha, a. s. a Centrum výzkumu Řež s. r. o. o poskytování výzkumné podpory hodnocení dlouhodobé bezpečnosti v následujících oblastech:

- i. Chování VJP a forem RAO, nepřijatelných do přípovrchových úložišť, v prostředí hlubinného úložiště;
- ii. Chování ukládacích obalových souborů (UOS) VJP a RAO v prostředí hlubinného úložiště;
- iii. Chování tlumících, výplňových a dalších konstrukčních materiálů v prostředí hlubinného úložiště;
- iv. Řešení úložných vrtů a jejich vliv na vlastnosti obklopujícího horninového prostředí;
- v. Chování horninového prostředí;
- vi. Transport radionuklidů z úložiště;
- vii. Další charakteristiky lokalit potenciálně ovlivňující bezpečnost úložiště.

Cílem tohoto dílčího projektu *Charakterizace RAO nepřijatelného do přípovrchového úložiště z vyřazování jaderné elektrárny – biologické stínění reaktoru* je ověřit údaje pro výpočet zdrojového členu pro bezpečnostní rozboru hlubinného úložiště pro biologické stínění reaktoru jako zdroje RAO nepřijatelného do přípovrchových úložišť, se zvláštním zřetelem k obsahu radionuklidů  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{41}\text{Ca}$ . K tomuto účelu bude využita unikátní možnost destruktivní radiochemické analýzy reálných vzorků ozářeného betonu, pocházející z vyřazované jaderné elektrárny, která byla stejného typu jako je jaderná elektrárna Dukovany.

Cílem této zprávy je podat přehledný a věcný popis provedených prací a získaných výsledků po odběru vzorků z biologického stínění z JE Greifswald, jejich analýzu a vyhodnocení v rámci řešitelského týmu.

## 2 Popis bloku biologického stínění

### 2.1 Historie a původ bloku

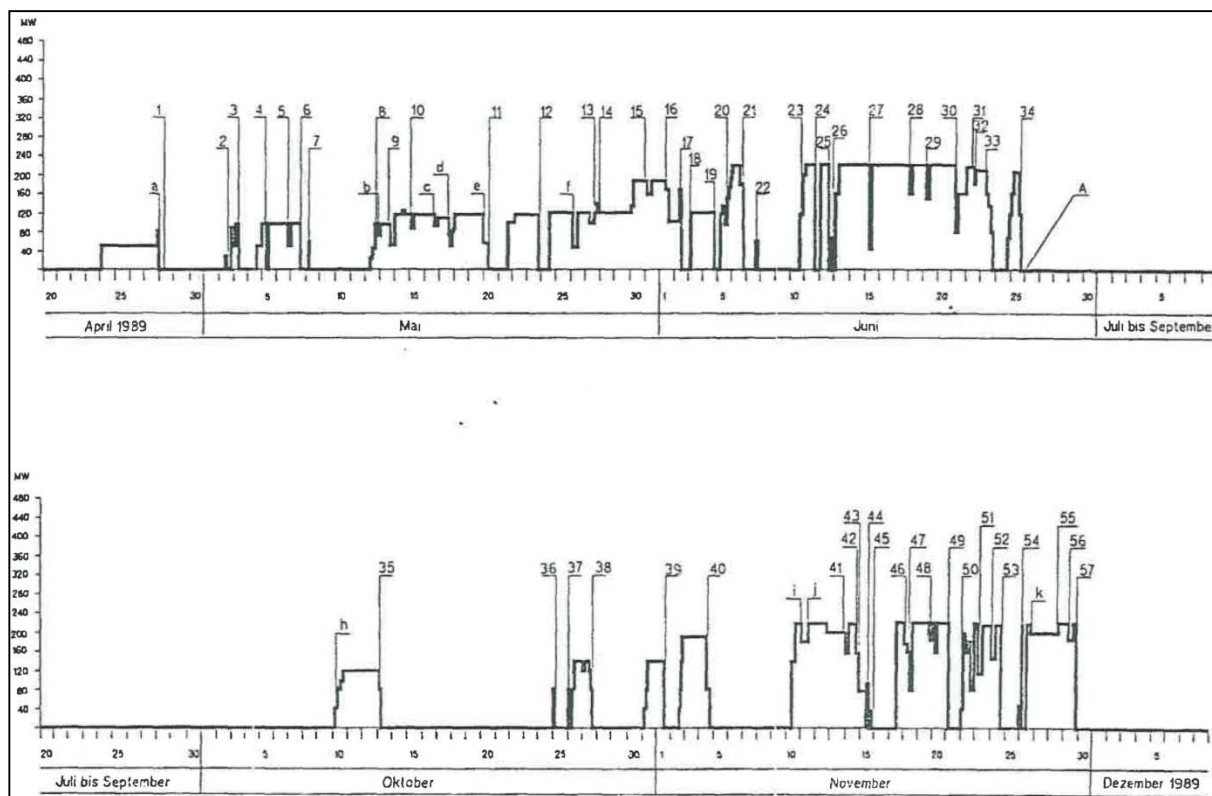
Analyzovaný betonový segment pochází z pátého bloku jaderné elektrárny Greifswald (někdy také zvané JE Lubmin nebo Nord) v Německu. Segment zakoupil v roce 2012 ÚJV Řež a.s. pro účely výzkumu stárnutí konstrukčních betonů v jaderné elektrárně vlivem dlouhodobého působení vysokých teplot a záření gama a neutronů. Segment je skladován v

ÚJV. Jeho fyzická dostupnost a relativně malý objem materiálu potřebný k radiochemické analýze umožňují odvrát vzorky materiálu a provést destruktivní radiochemickou analýzu ke stanovení měrné aktivity vybraných radionuklidů ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{41}\text{Ca}$ ). Výsledky získané z analýzy poslouží zároveň k ověření výpočtových modelů.

Jaderná elektrárna Greifswald byla největší jadernou elektrárnou v bývalé Německé demokratické republice. Výstavba elektrárny byla zahájena v roce 1967 a v první fázi byly vybudovány 4 sovětské jaderné reaktory typu VVER-440/230, které byly do komerčního provozu uvedeny v letech 1974 až 1979. V druhé etapě byla plánována výstavba dalších 4 sovětských reaktorů typu VVER-440/213. Jedná se o stejné typy jaderných reaktorů, které jsou provozovány v jaderné elektrárně Dukovany. Do komerčního provozu byl však uveden pouze první z nich – pátý blok, z kterého je i analyzovaný segment betonu. Tento blok dosáhl prvního kritického stavu 26.3. 1989 a o necelý měsíc později (24.4. 1989) byl blok připojen do sítě a probíhal jeho zkušební provoz. Nicméně již 29. listopadu byl reaktor trvale odstaven. Primární příčinou bylo poškození paliva z důvodů nedostatečného odvodu tepla z aktivní zóny reaktoru.

## 2.2 Historie ozařování

Historie ozařování během zkušebního provozu byla poskytnuta dodavatelem bloku biologického stínění a vyplývá z grafu na Obr. 1. V rámci tohoto zkušebního provozu byly prováděny různé testy, přičemž se předpokládalo, že reaktor bude postupně provozován na výkonových úrovních 20%, 35% a 55% nominálního výkonu. Jak vyplývá z grafu, v průběhu zkušebního provozu se objevila řada poruch, což vedlo k prodlužování jednotlivých etap, přičemž poslední zmíněná etapa zkušebního provozu nebyla již dokončena.



**Obr. 1:** Diagram provozu 5. bloku JE Greifswald (1 – 57: poruchy; a – k: testovací poklesy výkonu; A: přerušeni zkušebního provozu)

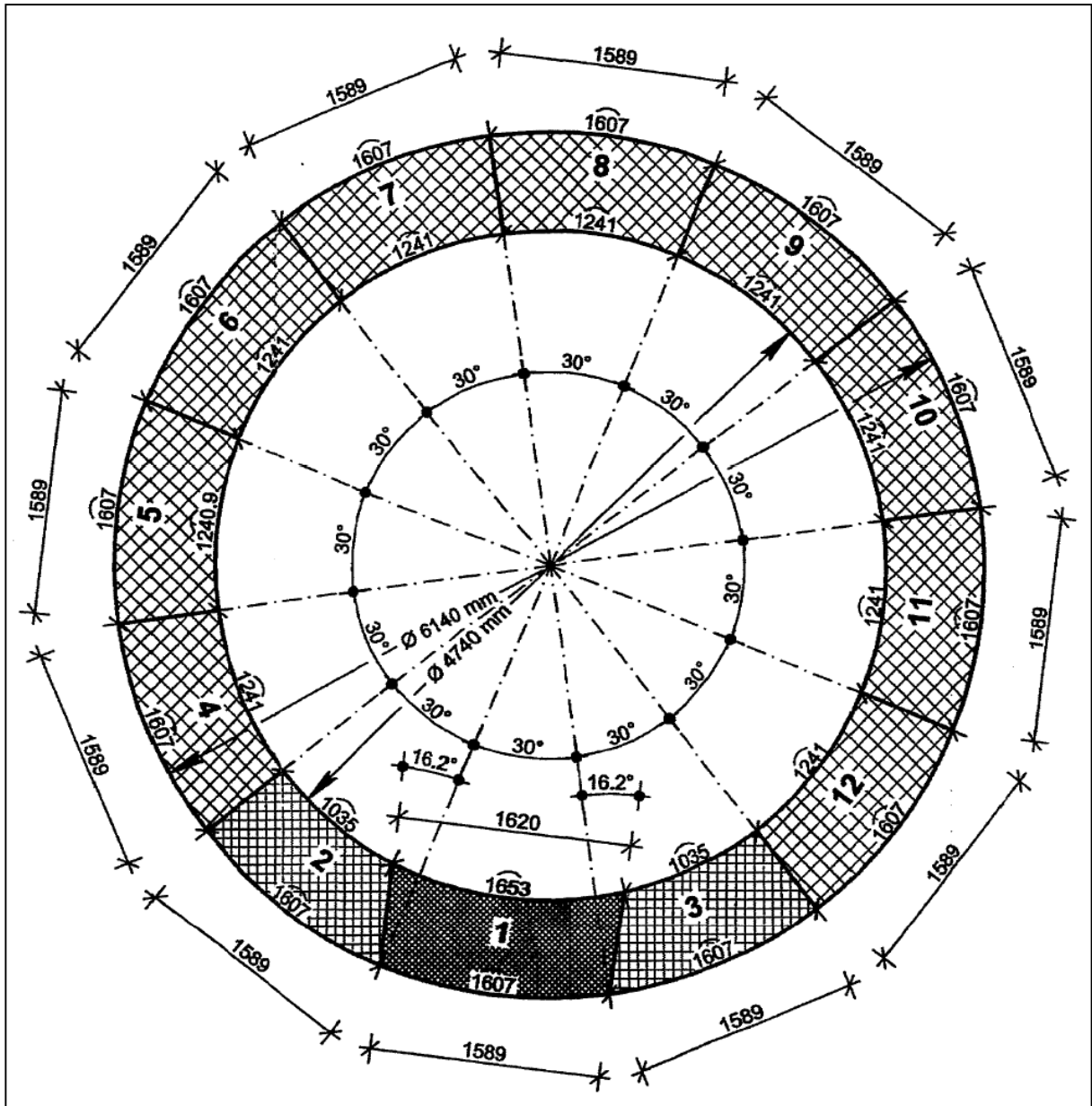
## 2.3 Popis bloku

Betonový segment je 1/12 obvodové válcové výseče šachty reaktoru (viz Obr. 2). Oba válcové povrchy segmentu (vnitřní, přilehlá k reaktoru, i vnější) pokrývá ocelová oblicovka (viz Obr. 3). Beton představuje serpentinitový beton o hustotě 2,3 g/cm<sup>3</sup>. Beton byl vyroben ze dvou druhů (dle hrubosti) serpentinitového písku, drobného serpentinitového štěrku, portlandského cementu a vody. Bližší prvkové složení betonu nebylo bohužel dodavateli segmentu poskytnuto.

Segment má následující rozměry:

- Výška rovnoběžná s osou reaktoru (viz Obr. 4, Obr. 6): 2 780 mm
- Šířky představující kruhový obvod šachty reaktoru (viz Obr. 2): 1 653 mm (vnitřní) a 1 598 mm (vnější)
- Hloubka představující tloušťku stínicí vrstvy betonu radiálně od osy reaktoru (viz Obr. 2 a Obr. 4): 700 mm

Hmotnost segmentu je 7 200 kg.

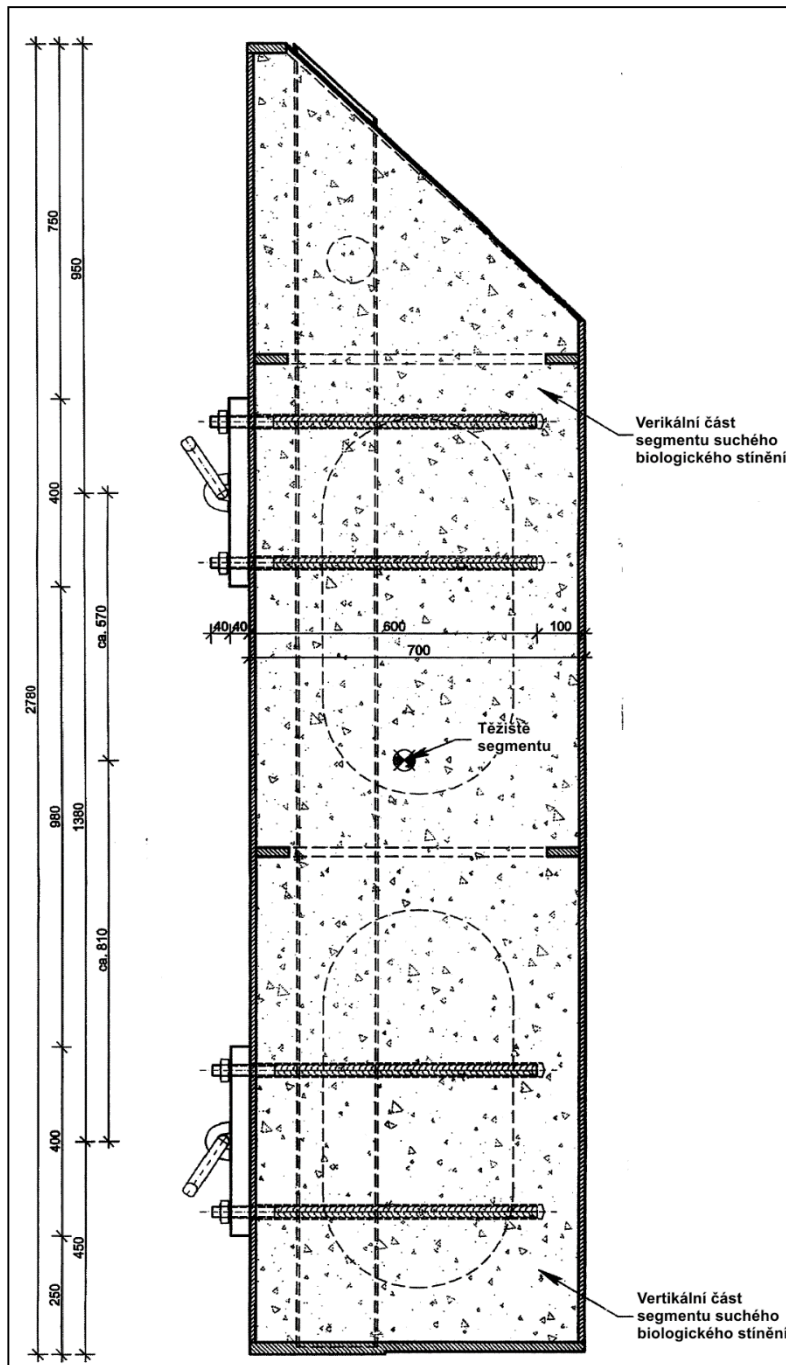


**Obr. 2:** Betonový segment (číslo 1), jako součást šachty reaktoru (horizontální řez).

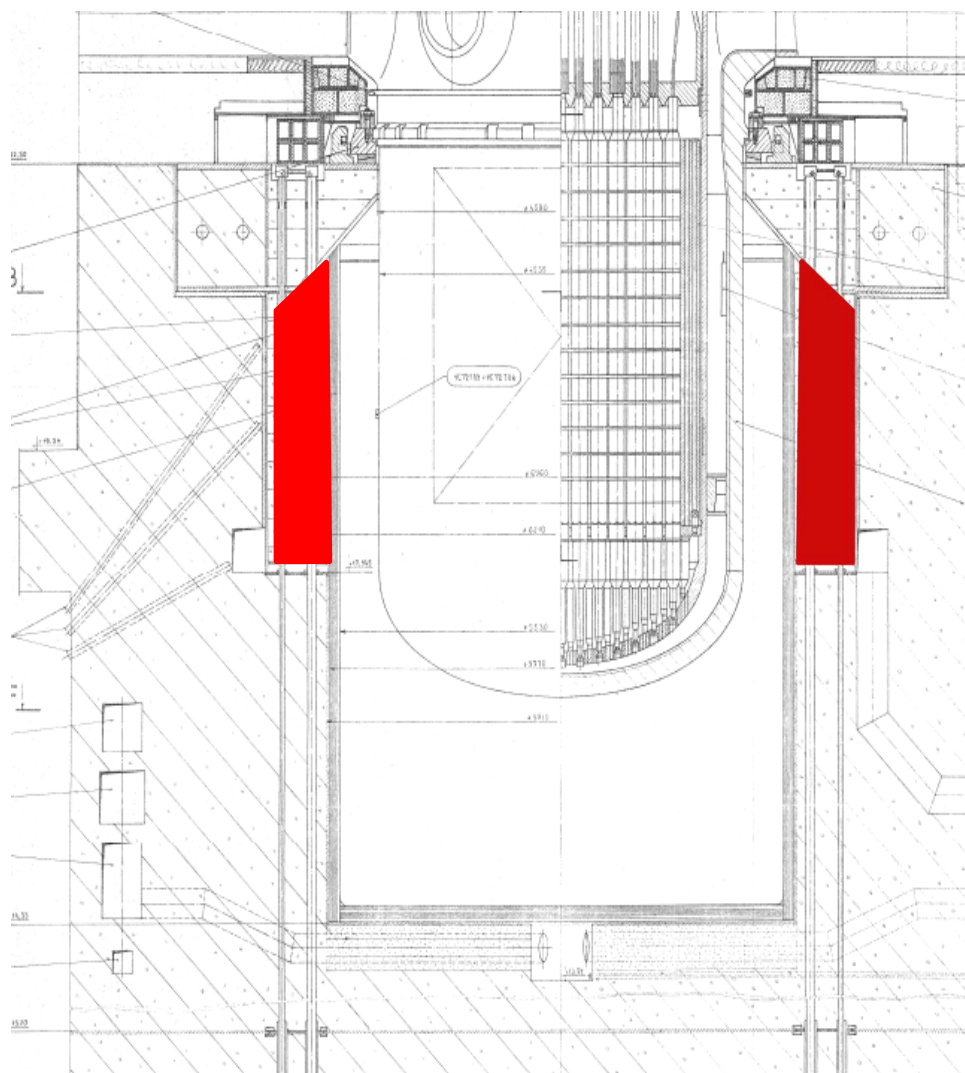




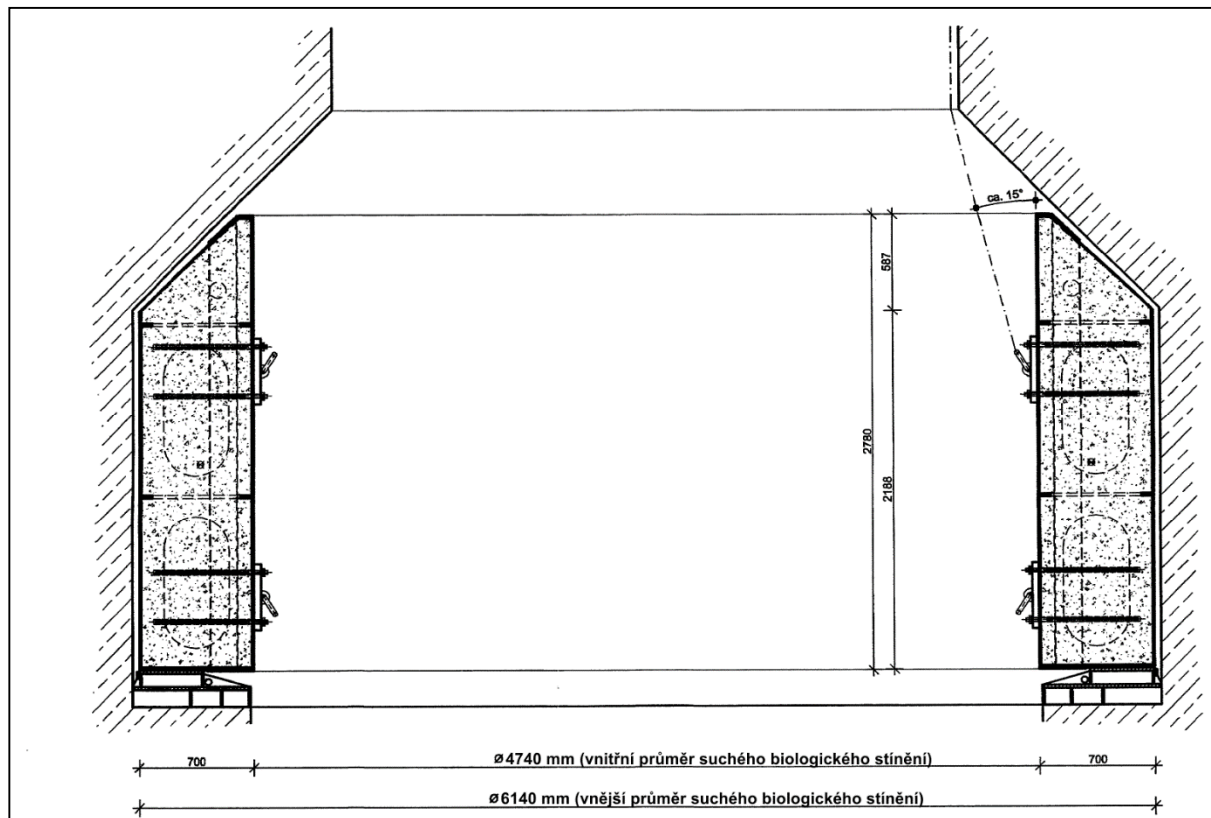
**Obr. 3:** Betonový segment biologického stínění z šachty reaktoru 5. bloku JE Greifswald



Obr. 4: Vertikální řez segmentem betonového stínění.



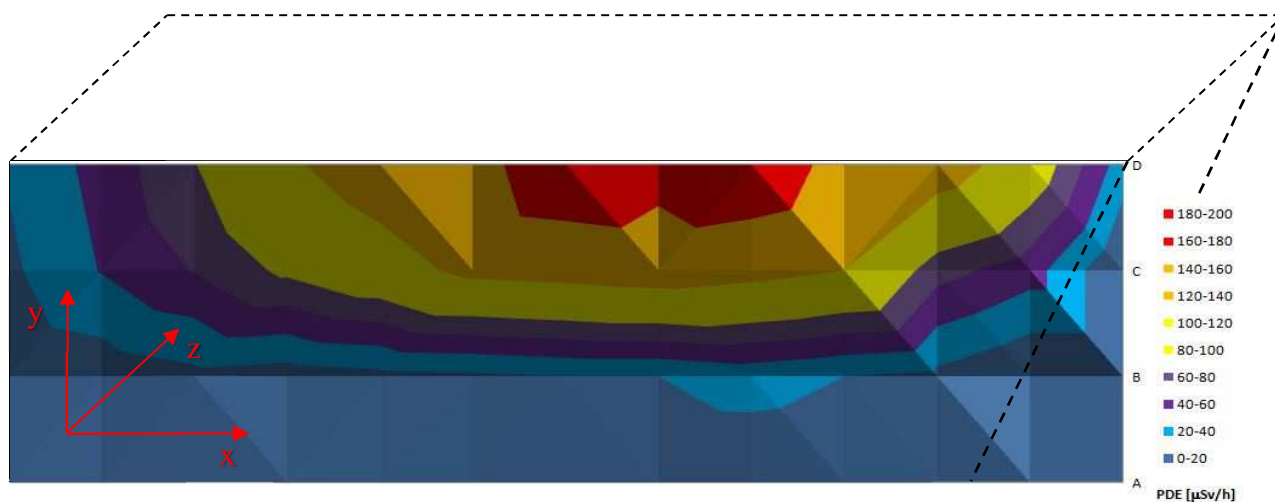
**Obr. 5:** Vertikální pozice betonového biologického stínění v šachtě reaktoru (označeno červeně).



**Obr. 6:** Vertikální pozice betonového biologického stínění v šachtě reaktoru.

## 2.4 Radiační mapa na povrchu bloku

Byla provedena charakterizace bloku betonu na povrchu na boční straně válcové plochy v síti 5 x 8 bodů (cca 0,3 x 0,3 m) a to přímým měřením příkonu dávkového ekvivalentu, resp. četnosti impulsů. K měření byl použit přenosný dozimetrický přístroj FH40 s externí sondou FHZ. Segment není vertikálně (rozměr rovnoběžný se svislou osou reaktorové nádoby), ani radiálně ozářen rovnoměrně. To lze dokumentovat (viz Obr. 7) průběhem příkonu dávkového ekvivalentu (PDE) na povrchu betonu podél jeho výškové osy a v radiálním směru (tloušťka betonu). PDE se pohybuje v rozpětí od 10 do 175  $\mu\text{Sv/hod}$ . V části segmentu s nejvyšší hodnotou PDE lze očekávat, že byly nejvyšší fluence neutronů uniklých z aktivní zóny.



Obr. 7: Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu.

## 3 Vzorkování

### 3.1 Příprava a odběr vzorků

Odběr vzorků byl náročný z hlediska zajištění radiační ochrany. Příprava a odběr vzorků na místě skladování betonového segmentu zahrnovaly:

1. Zpracování a schválení pracovního postupu pro práci se zvýšeným radiačním rizikem (pracovní postup č. PP 2405 269).
2. Nákup a příprava potřebných technických prostředků (ochranné pomůcky včetně oděvů Tyvek, ochranné fólie, filtrační masky (filtry), vrtačka s odsáváním, apod.).
3. Provedení zkoušky odvrtání "nasucho" v neaktivních podmínkách.
4. Zřízení a vybavení dočasného pracoviště (obj. 211/5).
5. Vytvoření radiační mapy betonového segmentu (příkon dávkového ekvivalentu na povrchu) pomocí přístroje FH40 s externí sondou FHZ.
6. Odvrtání samotných vzorků k analýze.
7. Zabalení vzorků a transport vzorků do laboratoře.
8. Úklid a dekontaminace pracoviště, odvoz a zpracování vniklých RAO (použité ochranné pomůcky, fólie, další nářadí).
9. Radiační monitoring pracoviště a jeho uvolnění pro další činnost.

### 3.2 Odběr vzorků

Na odběr vzorků byly kladeny speciální nároky s ohledem na fyzikálně-chemické vlastnosti prvků, které měli být analyzovány. Pro odvrtání vzorku nebylo možné použít chladicí médium, které by mohlo přijít do kontaktu s odebíraným vzorkem. Chladicí médium by mohlo vyloužit některý ze sledovaných analytů a ovlivnit tak výsledek analýzy. Teplota vrtného tělesa nesměla dosáhnout vyšších teplot, protože by mohlo dojít k reakci sloučenin uhlíku (s vodou, kyslíkem, apod.) a úniku  $^{14}\text{C}$  ve formě  $\text{CO}/\text{CO}_2$  nebo i jiných těkavých sloučenin, co by mohlo ovlivnit výsledky analýzy. Pro odběr vzorku tedy bylo nutné zajistit co nejnižší

teplotu vrtáku při vrtání bez použití chladicího media. Proto bylo rozhodnuto použít pomaloběžný způsob vrtání s kontrolou teploty.

Vzorky byly odvrtny korunkovým vrtákem za použití minimálních otáček vrtáku bez dodatečného chlazení. Teplota karbidových břitů byla kontrolována pomocí infračerveného bezkontaktního teploměru a to v průběhu každého vzorkování 2x v hloubce 75mm a 150 mm. Teplota břitů při vrtání nepřekročila 38°C.

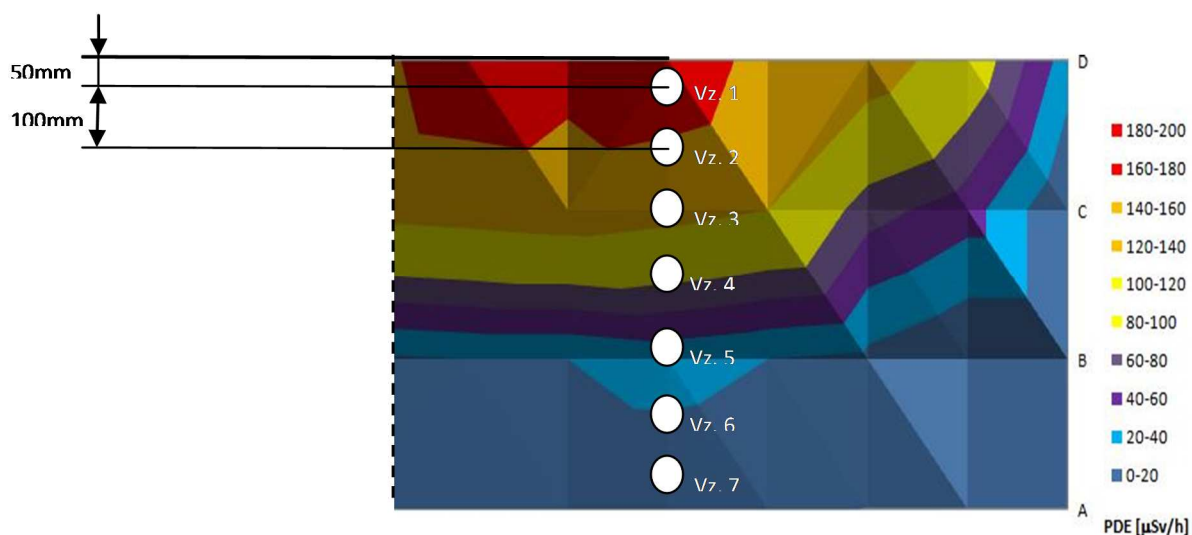
Kolmost vrtacího nástroje byla kontrolována pomocí vodováhy (horizontální vzdálenost vzorkovaného materiálu od kolmé osy aktivní zóny je stejná v celém průřezu vzorku). Materiál z hloubky 0 – 10mm od povrchu a sběrný kanálek se odsál aktivním vysavačem bez dotyku, včetně otření kanálku dekontaminačním roztokem na průmyslové utěrce Tork. Stejně tak vrtací nástroj byl očištěn dekontaminačním roztokem a osušen. Ke každému odběru byl použit nový vrták z důvodu zamezení křížové kontaminace vzorků.

Vzorek byl přenesen nerezovou laboratorní lžičkou do 100 ml PE vzorkovnice, uzavřen a opatřen datem odběru, popisem a pořadovým číslem vzorku.

Vzorky odebrány (7ks) v místě nejvyššího PDE v bočním průřezu a očíslovány vzestupně tak, jak vzrůstá jejich vzdálenost od vnitřního pláště stínění ke vnějšímu povrchu. Rozestupy mezi vzorkovacími body jsou shodné a to 100 mm. Osa prvního vzorku je 50 mm od vnitřního kovového pláště včetně. Sedmý vzorek je 50 mm od vnějšího kovového pláště včetně. Odběr materiálu byl proveden z hloubky 10 mm až 150 mm. Odebráno bylo cca 50g vzorku z každé pozice.

Fotografie dokumentující způsob odběru vzorků z betonového segmentu (viz. Obr. 9).

Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu a vyznačení odběrových míst je znázorněn na následujícím obrázku (Obr. 8)



**Obr. 8:** Rozložení dávkového příkonu na povrchu segmentu a vyznačení odběrových míst.



**Obr. 9:** Fotografie dokumentující způsob a průběh odběru vzorků z betonového segmentu.

## 4 Zpracování a analýzy vzorků

### 4.1 Zpracování vzorků

Vzorky byly odvrtny klasickým vrtákem, takže výsledkem byly homogenní jemně zrnité vzorky. Z toho důvodu nebylo nutné provádět jakoukoliv speciální předúpravu nebo zpracování vzorků jiné, než související s požadovanou analýzou.

### 4.2 Gama spektrometrické měření

Na odebraných vzorcích byla provedena kompletní gama spektrometrická analýza (stanovení měrné aktivity radionuklidů emitujících záření gama). Gama spektrometrie byla provedena vysokorozlišovací polovodičovou spektrometrií záření gama na pracovišti laboratoře CAL podle akreditovaného standardního operačního postupu R-01 – Stanovení aktivity izotopů - zářičů gama - metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením. Měřeno bylo veškeré množství vzorku získaného odběrem pro dosažení maximální citlivosti. Pro měření byl použit HPGe det. s rel. účinností 90% GX9021.

Gama spektrometrické měření vzorků potvrdilo přítomnost pouze několika umělých radionuklidů:  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  a  $^{154}\text{Eu}$  nad mez detekce měřící aparatury. Naměřené hodnoty aktivit jednotlivých gama radionuklidů byly přepočteny ke dni ukončeného ozařování: 29.11.1989. Výsledky jsou shrnuté v Tab. 1.

**Tab. 1:** Výsledky gama spektrometrické analýzy odebraných vzorků (v pořadí od místa nejbližšího k reaktoru k místu nejvzdálenějšímu).

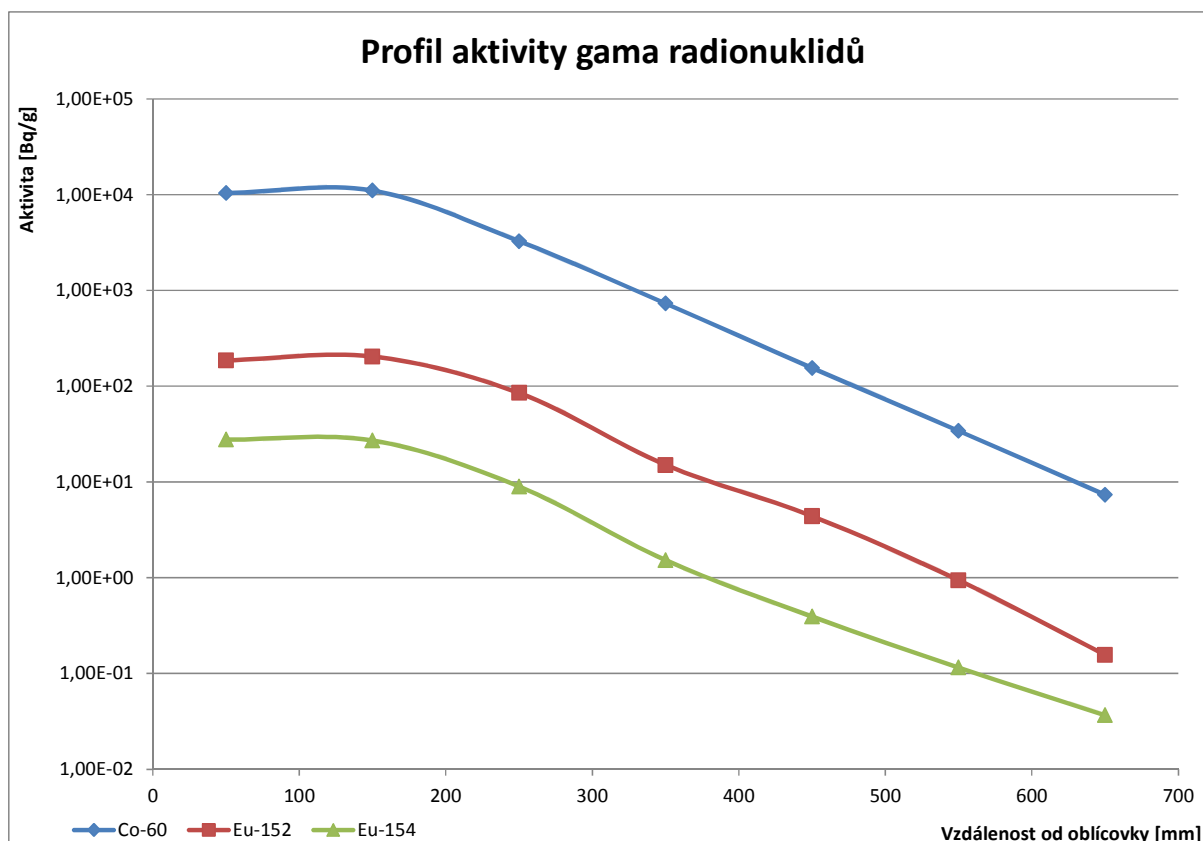
Vzdálenost od obličovky [mm]	50			150			250		
	659/17 [Bq/g vzorku]			660/17 [Bq/g vzorku]			661/17 [Bq/g vzorku]		
<b>Co-60</b>	1,04E+04	±	1,13E+02	1,10E+04	±	1,08E+02	3,27E+03	±	3,19E+02
<b>Eu-152</b>	1,86E+02	±	1,82E+01	2,04E+02	±	1,78E+01	8,49E+01	±	7,17E+00
<b>Eu-154</b>	2,77E+01	±	3,66E+00	2,71E+01	±	3,11E+00	8,96E+00	±	9,14E-01

Vzdálenost od obličovky [mm]	350			450		
	662/17 [Bq/g vzorku]			663/17 [Bq/g vzorku]		
<b>Co-60</b>	7,30E+02	±	7,51E+01	1,55E+02	±	1,55E+01
<b>Eu-152</b>	1,51E+01	±	6,92E-01	4,40E+00	±	3,83E-01
<b>Eu-154</b>	1,53E+00	±	1,64E-01	3,93E-01	±	6,21E-02

Vzdálenost od obličovky [mm]	550			650		
	664/17 [Bq/g vzorku]			665/17 [Bq/g vzorku]		
<b>Co-60</b>	3,41E+01	±	4,20E+00	7,33E+00	±	6,78E-01
<b>Eu-152</b>	9,41E-01	±	1,06E-01	1,57E-01	±	1,55E-02
<b>Eu-154</b>	1,15E-01	±	1,83E-02	< 3,66E-02		

Výsledky byly vyneseny do grafu, který znázorňuje profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu (viz. Obr. 10).





**Obr. 10:** Profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu.

### 4.3 Radiochemické stanovení těžko stanovitelných radionuklidů

Radiochemické stanovení obsahu (měrné aktivity) radionuklidů  $^{14}\text{C}$ ,  $^{41}\text{Ca}$  a  $^{36}\text{Cl}$  bylo provedeno metodami podle schválených standardních operačních postupů akreditované zkušební laboratoře CAL na přístrojích LSC Quantulus ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ) a na detektoru nízkoenergetického gama záření SLP10190 ( $^{41}\text{Ca}$ ). Jedná se o akreditované postupy R-18 – Stanovení aktivity  $^{36}\text{Cl}$  metodou kapalinové scintilační spektrometrie a R-05 – Stanovení aktivity  $^{14}\text{C}$  kapalinovou scintilační spektrometrií a neakreditovaný postup LP CA-41 – Stanovení  $^{41}\text{Ca}$  ve vzorcích z provozu jaderných elektráren a okolí metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením.

Měření byla provedena 1x, tam kde to bylo nezbytné bylo měření opakováno. Součástí měření bylo i zajištění QA použitím tzv. blanků (požadové vzorky bez analytu k prokázání čistoty během analýzy) a kontrolních měření tzv. opakováním vybraných vzorků pro ověření spolehlivosti analýz.

Všechny výsledky jsou přepočteny ke dni ukončení ozařování - 29.11.1989.

#### 4.3.1 Stanovení $^{14}\text{C}$

Stanovení  $^{14}\text{C}$  je standardně prováděno třemi možnými způsoby, dle R-05 „Stanovení aktivity kapalinovou spektrometrií  $^{14}\text{C}$ “. Jedním z nich je rozklad vzorku lučavkou královskou

(HNO<sub>3</sub> a HCl v poměru 1:3) a vznikající plyny jsou jímány v hydroxidu vápenatém nebo barnatém. Tento postup může být někdy nedostatečný, pokud je chemické složení odolné vůči směsi těchto kyselin.

Dalším postupem je spalování vzorku až do teploty 900°C, kdy všechny uhlíkaté sloučeniny zoxidují na CO<sub>2</sub>. Plyn je zachytáván stejným způsobem jako v předchozím případě.

Posledním postupem je alkalický rozklad s hydroxidem draselným za teploty 600°C. Vzniklá tavenina je rozpuštěna a z roztoku kyselinou uvolněn CO<sub>2</sub>, který je zachycen jako v předchozích případech.

Pro účely tohoto projektu byly použity všechny tři postupy. Ale protože výsledky spalování a alkalickým rozkladem byly srovnatelné, byly vlastně využity pouze dva postupy (kyselý rozklad, alkalické tavení) pro všech sedm vzorků. Popis analýz a prezentace výsledků jsou uvedeny dále v textu.

Zhruba 1 g vzorku betonu bylo rozloženo ve směsi koncentrovaných kyselin HNO<sub>3</sub> a HCl v poměru 1:3 (tzv. lučavka královská) za současného jímání unikajících plynů do hydroxidu barnatého. Vznikající CO<sub>2</sub> reaguje v roztoku hydroxidu se solemi Ba<sup>2+</sup> za vzniku sraženiny BaCO<sub>3</sub>. Vzniklá sraženina uhličitanu byla přefiltrována, propláchnuta a smíchána se scintilačním roztokem v měřicí vialce. Směs se měřila na LSC.

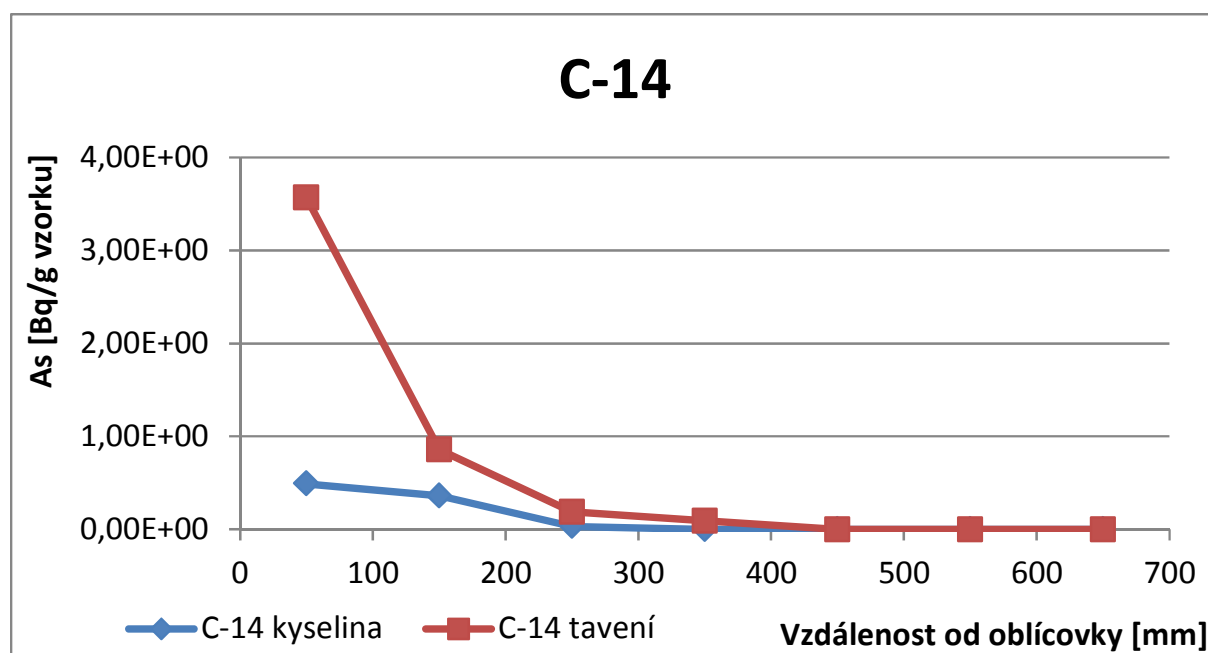
Zhruba 1 g vzorku betonu byl s hydroxidem draselným vložen do Ni kelímku a taven při 600°C. Tavenina byla rozpuštěna ve vodě a přidavkem lučavky královské byl vytěsněn CO<sub>2</sub> do hydroxidu draselného. Vzniklá sraženina uhličitanu byla přefiltrována, propláchnuta a smíchána se scintilačním roztokem v měřicí vialce. Směs se měřila na LSC.

Zhruba 1 g vzorku bylo vloženo do spalovací korundové trubky a spalováno v kyslíkové atmosféře postupně od 250-900°C. Plyny vznikající při spalování byly přečištěny od konkurenčních plynů a CO<sub>2</sub> pak jímán do hydroxidu draselného. Vzniklá sraženina uhličitanu byla přefiltrována, propláchnuta a smíchána se scintilačním roztokem v měřicí vialce. Směs se měřila na LSC. Zde byl analyzován jeden vzorek pro porovnání s tavením, a protože výsledky analýzy se s tavením shodovaly, další spalování nebylo provedeno.

Výsledky analýz jsou uvedeny v Tab. 2 a Obr. 11.

**Tab. 2:** Výsledky analýz <sup>14</sup>C v betonu biologického stínění JE Greifswald

Vzdálenost od obložky [mm]	č. vzorku	Aktivita C-14 [Bq/g betonu]								
		kyselý rozklad			spalování			alkalické tavení		
50	<b>659/17</b>	4,92E-01	±	3,95E-02	3,79E+00	±	1,30E-01	3,58E+00	±	1,20E-01
150	<b>660/17</b>	3,62E-01	±	3,02E-02	-			8,61E-01	±	6,42E-02
250	<b>661/17</b>	3,48E-02	±	8,15E-03	-			1,91E-01	±	4,82E-02
350	<b>662/17</b>	<0,027			-			9,34E-02	±	4,72E-02
450	<b>663/17</b>	<0,026			-			<0,071		
550	<b>664/17</b>	<0,030			-			<0,066		
650	<b>665/17</b>	<0,029			-			<0,060		



**Obř. 11:** Profil aktivity  $^{14}\text{C}$  v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu.

#### 4.3.2 Stanovení $^{36}\text{Cl}$

Zhruba 1g vzorku byl rozložen alkalickým tavením s KOH při teplotě asi 600°C. Vzniklá tavenina byla převedena do roztoku a poté upraveny vlastnosti roztoku tak, aby mohla být provedena separace na vhodném extrakčním činidlo na pevné fázi (na pevném sorbentu je vázané stříbro). Ke vzniklému roztoku bylo přidáno známého množství přírodního chloridu draselného jako stopovače bez obsahu  $^{36}\text{Cl}$ . U vzniklého roztoku byl stanoven obsah chlóru na ICP-MS pro stanovení účinnosti separace. Vzorek po separaci a přečištění chlóru, obsahující také  $^{36}\text{Cl}$ , byl rozdělen na dvě části. V jedné byl stanoven obsah celkového chlóru na ICP-MS, druhá část byla smíchána se scintilačním roztokem v měřící vialce a provedeno měření na LSC přístroji Quantulus.

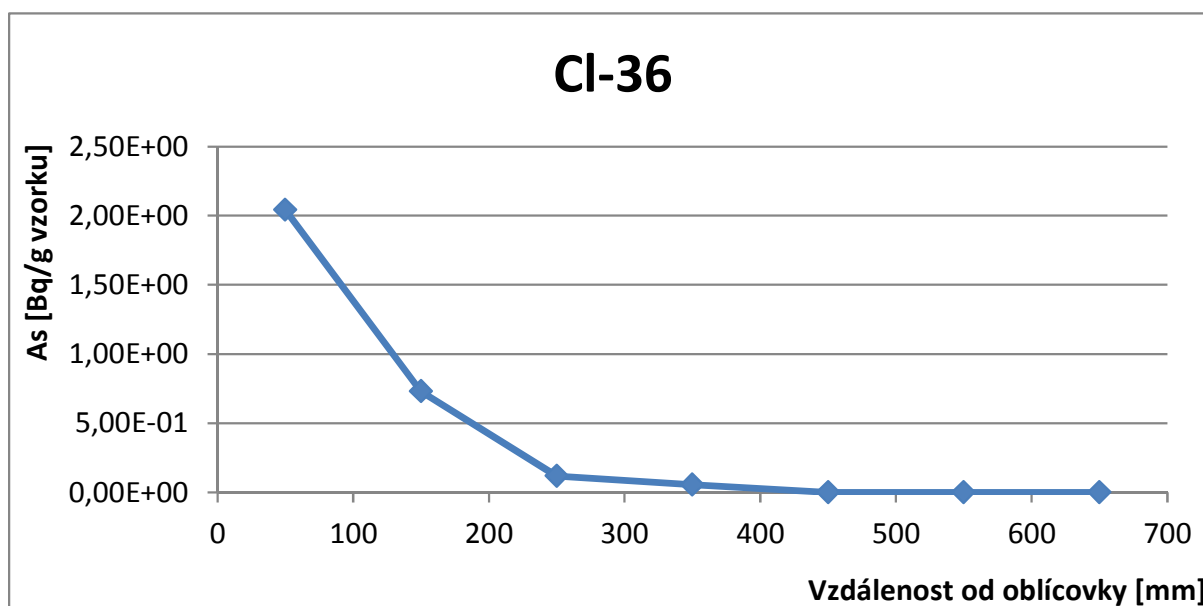
Zjištěné koncentrace chlóru ICP-MS v roztocích před a po separaci byly použity pro výpočet účinnosti separace a následné korekce aktivity  $^{36}\text{Cl}$ .

Současně v analyzované sérii vzorků byla provedena analýza tzv. fortifikovaného blanku (do pozadového roztoku se přidá známý obsah  $^{36}\text{Cl}$ ) a pozadového vzorku, jako kontrolní vzorky pro zajištění kontroly kvality.

Výsledky analýzy vzorků jsou uvedeny v následující tabulce a grafu.

**Tab. 3:** Výsledky analýz  $^{36}\text{Cl}$  v betonu biologického stínění JE Greifswald

Vzdálenost od obličovky [mm]	č. vzorku	Aktivita $\text{Cl-36}$ [Bq/g betonu]		
50	659/17	2,04E+00	±	2,40E-01
150	660/17	7,30E-01	±	1,30E-01
250	661/17	1,18E-01	±	2,70E-02
350	662/17	5,60E-02	±	1,70E-02
450	663/17	<0,0163		
550	664/17	<0,018		
650	665/17	<0,017		


**Obr. 12:** Profil aktivity  $^{36}\text{Cl}$  v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu.

#### 4.3.3 Stanovení $^{41}\text{Ca}$

1 g vzorku betonu byl loužen HCl k rozpuštění vápníku obsahujícího i  $^{41}\text{Ca}$ . K vylouženému roztoku HCl měl být přidán neaktivní vápník s přírodním zastoupením izotopů, který jednak slouží jako neradioaktivní nosič, jednak pro stanovení výtěžnosti separačního procesu stanovením na ICP-MS. Vzhledem k tomu, že v betonu bylo vápníku dostatečné množství, přídavek byl nahrazen stanovením množství vápníku před a po separaci. Z výsledného roztoku byl vápník izolován několika stupňovým separačním postupem zahrnujícím

- izolaci vápníku srážením kyselinou šťavelovou a kyselinou vinnou.
- oddělení makro množství železa a prvků, které vytvářejí chlorokomplexy.

Radioaktivita  $^{41}\text{Ca}$  byla stanovena měřením nízkoenergetického  $\text{K}\alpha$  záření planárním detektorem (energie 3,3 keV). Vše dle postupu LP CA-41 – Stanovení  $^{41}\text{Ca}$  ve vzorcích z provozu jaderných elektráren a okolí metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením.

Bohužel, v naměřeném spektru (viz. Obr. 13) není patrný žádný pík odpovídající  $^{41}\text{Ca}$  ani po 24 hodinách měření. To neodpovídalo teoretickému obsahu  $^{41}\text{Ca}$ . Stanovením na ICP-MS

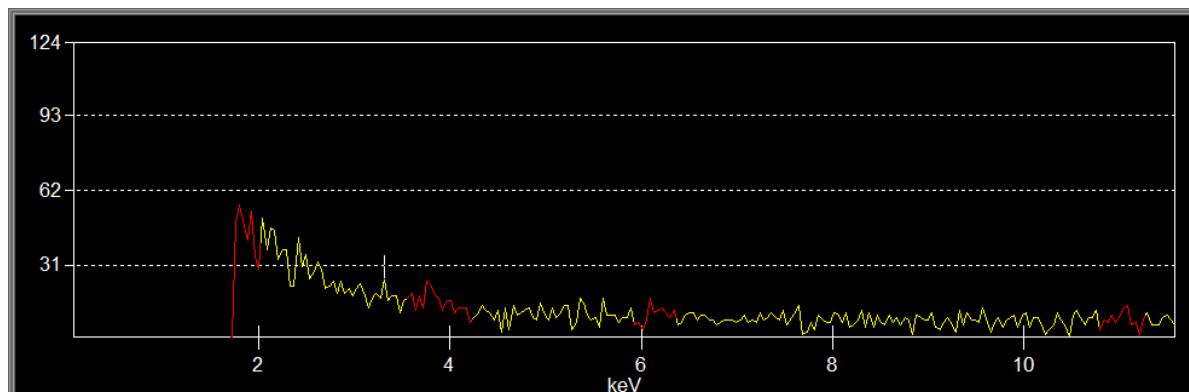
byla ověřena účinnost izolace  $^{41}\text{Ca}$  >60%, proto problém nemohl být v separaci, ale musel být v měření nebo teoreticky očekávané aktivitě v betonu.

Jedním z důvodů, proč nebyl  $^{41}\text{Ca}$  detekován, mohl být vysoký obsah vápníku přítomný v betonu. Separací vápníku se neoddělí  $^{41}\text{Ca}$  od přírodního a tak při přípravě vzorku na měření na X-ray spektrometrii přírodní vápník tvoří množství solí, které způsobují silnou samoabsorbci měřeného záření (3,3 keV) emitovaného  $^{41}\text{Ca}$  během jeho přeměny. Aby bylo možné ověřit, jestli se  $^{41}\text{Ca}$  ve vzorku nachází, byl použit ještě jeden způsob detekce – LSC. Jeho výhodou je vysoká účinnost, ale velká nevýhoda spočívá ve značné citlivosti na znečišťující příměsi, které u gama spektrometrie nevadí.

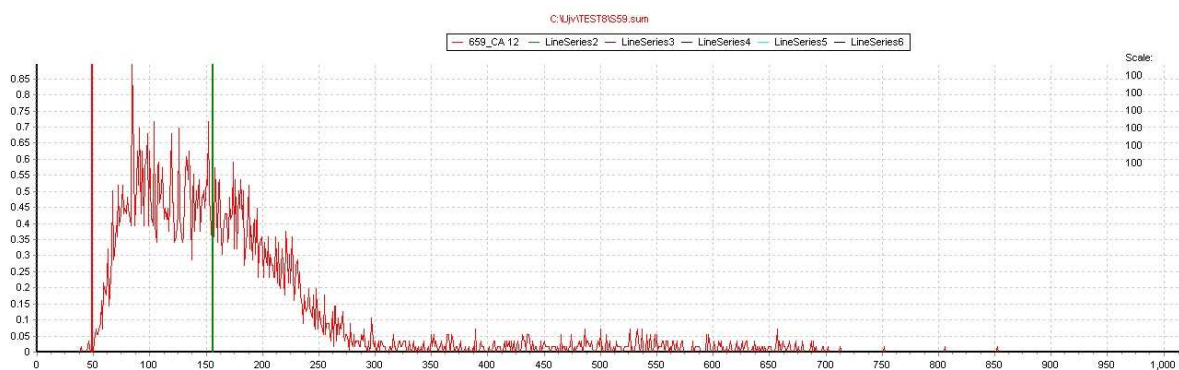
Proto byl vzorek měřený na X-ray spektrometrii rozpuštěn a smíchán se scintilačním roztokem a změřen na LSC (Obr. 14). Porovnáním naměřeného spektra s teoretickým spektrem (viz. zelené spektrum na Obr. 15) je patrné, že ve vzorku patrně  $^{41}\text{Ca}$  je přítomen, ale značně znečištěn nějakou interferenční příměsí. Takové spektrum nebylo možné využít pro vyhodnocení  $^{41}\text{Ca}$ .

To bylo důvodem k nalezení vhodnějšího způsobu izolace a čištění vápníku. Nejprve byla snaha modifikovat stávající postup, ale jen s malým zlepšením, které k výsledku nevedlo. Nakonec byl nalezen vhodný postup v článku Radiochemical determination of  $^{41}\text{Ca}$  in nuclear reactor concrete Xiaolin (2005), který přesně vyhovoval našemu požadavku, včetně měření na LSC. Aplikací tohoto postupu bylo dosaženo dokonalé izolace vápníku bez znečišťujících příměsí potvrzeného na LSC (viz. hnědá čára na Obr. 15).

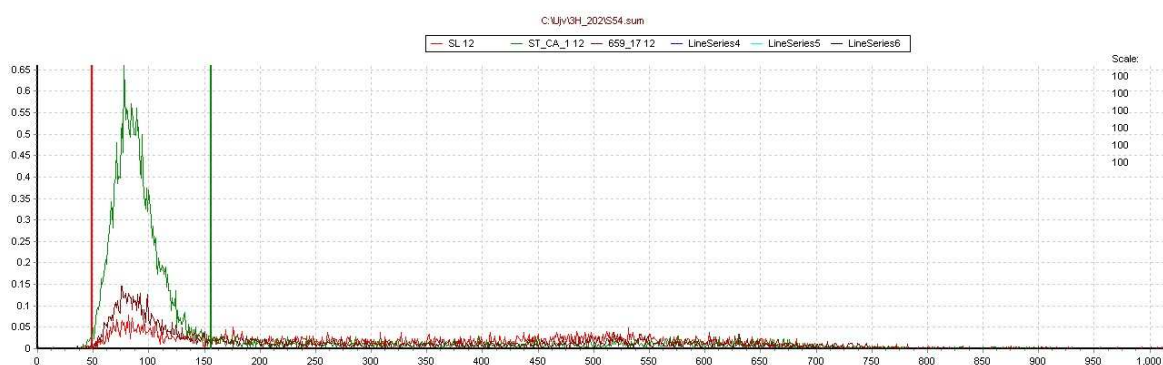
Výsledky analýzy pouze vzorků jsou uvedeny v Tab. 4 a Obr. 16.



**Obr. 13:** Gama spektrum vzorku s  $^{41}\text{Ca}$  - po 24hod měření není patrný žádný pík na energii 3,3 keV (označeno kurzorem).



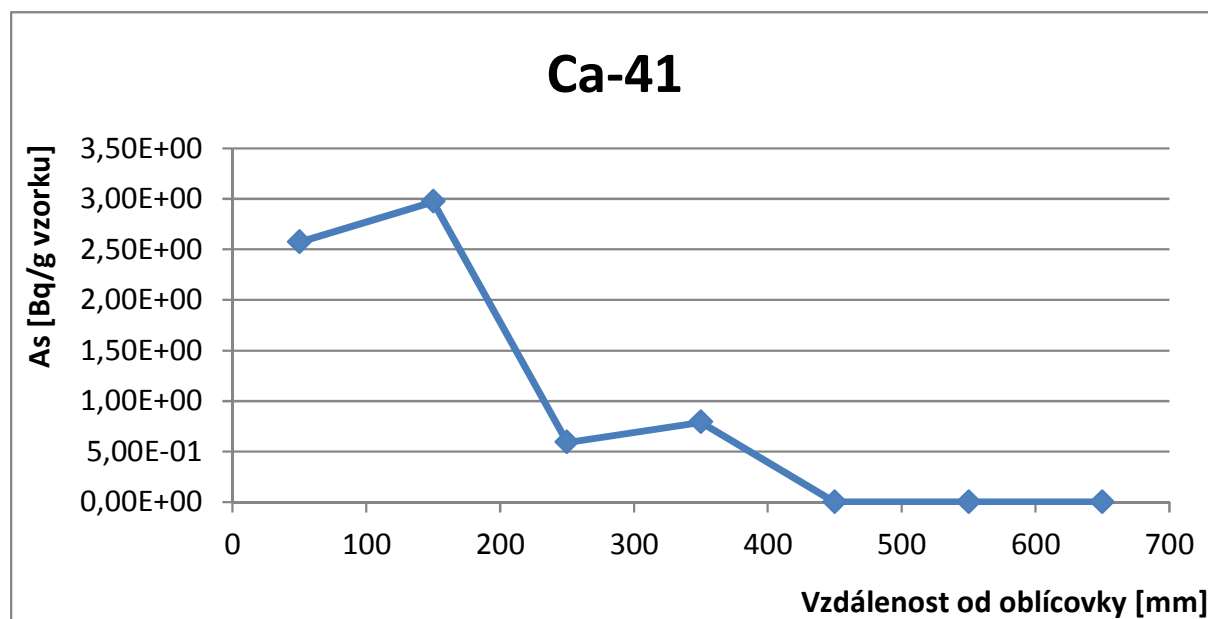
**Obr. 14:** Výsledek měření na LSC vzorku  $^{41}\text{Ca}$  připraveného původním postupem LP CA-41.



**Obr. 15:** Výsledek měření na LSC vzorku  $^{41}\text{Ca}$  připraveného novým postupem dle práce Xiaolin (2005).

**Tab. 4:** Výsledky analýz  $^{41}\text{Ca}$  v betonu biologického stínění JE Greifswald

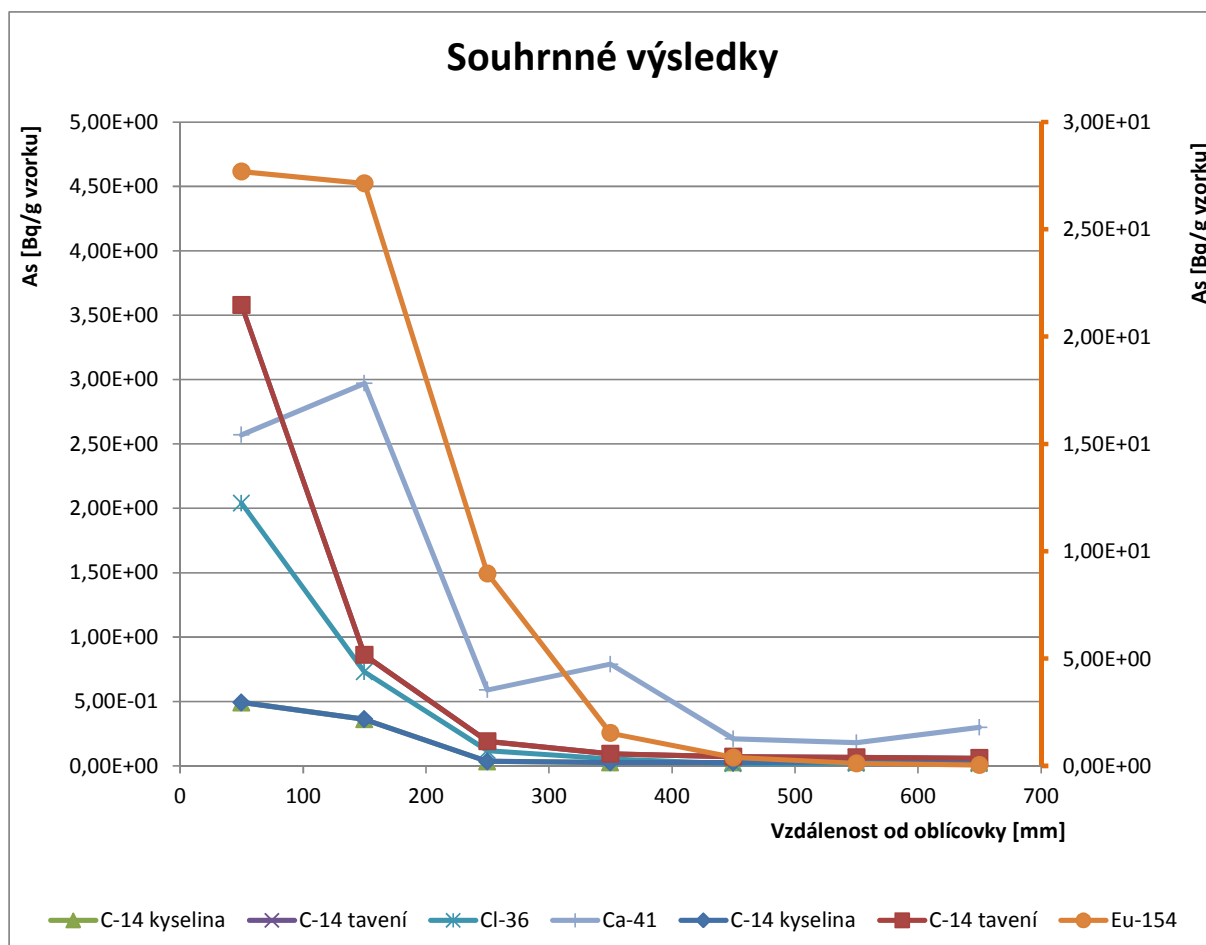
Vzdálenost od oblízovky [mm]	č. vzorku	Aktivita Ca-41 [Bq/g betonu]		
50	<b>659/17</b>	2,57E+00	±	3,60E-01
150	<b>660/17</b>	2,97E+00	±	4,00E-01
250	<b>661/17</b>	5,90E-01	±	1,70E-01
350	<b>662/17</b>	7,90E-01	±	1,60E-01
450	<b>663/17</b>	< 2,10E-01		
550	<b>664/17</b>	< 1,80E-01		
650	<b>665/17</b>	< 3,00E-01		



Obr. 16: Profil aktivity <sup>41</sup>Ca v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu.

#### 4.4 Souhrn výsledků

Všechny výsledky jsou souhrnně uvedeny v následujícím grafu.



**Obr. 17:** Profil aktivity detekovaných radionuklidů v závislosti na vzdálenosti od vnitřní obličovky betonového segmentu. Pro přehlednost grafu gama radionuklidy reprezentuje pouze  $^{154}\text{Eu}$ , jehož aktivity jsou vyneseny na ose vpravo označené oranžovou barvou. Levá osa zobrazuje hodnoty pro ostatní radionuklidy.

## 5 Vyhodnocení

### 5.1 Sledované radionuklidy

Cílem analýz provedených v rámci tohoto dílčího projektu bylo charakterizovat reálný vzorek biologického betonového stínění, který byl vystaven známému poli neutronového záření. Jednalo se o betonový segment, který pochází z pátého bloku jaderné elektrárny Greifswald v Německu. Výsledky analýz byly srovnány s předběžnými výsledky výpočtových ověření.

Analýzy byly zaměřené především na stanovení obsahu radionuklidů  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{41}\text{C}$ . Nicméně na základě prvotní gama spektrometrické analýzy odebraných vzorků byla zjištěna přítomnost radionuklidů  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  a  $^{154}\text{Eu}$ . Tyto radionuklidy mají původ v příměsích, které jsou obvykle obsaženy v přírodních materiálech (serpentinové štěrky a písky) z nichž je vyráběn beton sloužící jako biologické stínění v okolí tlakové nádoby jaderného reaktoru.

Níže je uvedena charakteristika sledovaných/zjištěných radionuklidů z pohledu jejich základních vlastností a geneze.



### 5.1.1 $^{14}\text{C}$

V jaderných reaktorech se izotop uhlíku  $^{14}\text{C}$  může tvořit pěti různými na sobě nezávislými reakcemi neutronů s izotopy prvků, které jsou běžnou součástí paliva, moderátoru, konstrukčních materiálů aktivní zóny a chladicí vody primárního okruhu. Mezi tyto izotopy patří  $^{13}\text{C}$ ,  $^{14}\text{N}$ ,  $^{15}\text{N}$ ,  $^{16}\text{O}$  a  $^{17}\text{O}$ . V případě izotopů  $^{15}\text{N}$  a  $^{16}\text{O}$  se jedná o prahové reakce s rychlými neutrony, jejichž účinný průřez se pohybuje řádově  $10^{-7}$ , resp.  $10^{-8}$  barnů a jejich výtěžek bude zanedbatelný. Významnějšími reakcemi jsou:

- $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  (účinný průřez 1,82 barnů pro tepelné neutrony)
- $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$  (účinný průřez 0,24 barnů pro tepelné neutrony)
- $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$  (účinný průřez  $10^{-3}$  barnů pro tepelné neutrony)

Vzhledem k minimálnímu zastoupení izotopu  $^{17}\text{O}$  v přírodě, lze i tuto reakci jako zdroj  $^{14}\text{C}$  zanedbat. Hlavním zdrojem  $^{14}\text{C}$  v betonu budou tedy reakce neutronů na izotopech  $^{14}\text{N}$  a  $^{13}\text{C}$ . Nicméně s ohledem na malé účinné průřezy pro dané reakce, resp. nízké zastoupení dusíku, lze očekávat i nízkou produkci  $^{14}\text{C}$ .

Poločas přeměny uhlíku  $^{14}\text{C}$  je 5730 let, poté se rozpadá na stabilní dusík  $^{14}\text{N}$ , přičemž dochází k emisi beta záření. Izotop uhlíku  $^{14}\text{C}$  je čistým emitorem beta záření o energii 156,48 keV, což činí stanovení jeho obsahu v materiálech značně problematickým.

### 5.1.2 $^{36}\text{Cl}$

Izotop  $^{36}\text{Cl}$  se nachází i v přírodě, nicméně pouze ve stopovém množství. V konstrukčních materiálech jaderného reaktoru vzniká  $^{36}\text{Cl}$  na základě zachytu tepelných neutronů jádrem  $^{35}\text{Cl}$ . Reakce probíhá s účinným průřezem pro tepelné neutrony 43,7 barnů. Izotop  $^{35}\text{Cl}$  se v betonu objevuje v malém množství v rámci výrobního postupu.

Poločas přeměny  $^{36}\text{Cl}$  je  $3 \cdot 10^5$  let. K přeměně dochází především beta rozpadem (98,1%) při němž vzniká  $^{36}\text{Ar}$  a v malé míře elektronovým zachytem (1,9%), který vede na  $^{36}\text{S}$ .

### 5.1.3 $^{41}\text{Ca}$

$^{41}\text{Ca}$  se nachází v přírodě pouze ve stopovém množství. Uměle vzniká v konstrukčních materiálech při zachytu tepelných neutronů jádrem  $^{40}\text{Ca}$ . Účinný průřez pro zachyt tepelných neutronů na jádrech  $^{40}\text{Ca}$  je 0,4 barnů.

Poločas přeměny  $^{41}\text{Ca}$  je  $1,03 \cdot 10^5$  let. Proces přeměny je založen na elektronovém zachytu, přičemž vzniká  $^{41}\text{K}$ . Při přeměně dochází k emisi charakteristického rentgenového záření. Díky své velké reaktivitě se vápník vyskytuje pouze ve sloučeninách, což činí stanovení obsahu izotopu  $^{41}\text{Ca}$  (s ohledem na způsob jeho přeměny) velmi problematickým.

### 5.1.4 $^{60}\text{Co}$

$^{60}\text{Co}$  je umělý radionuklid s poločasem přeměny 5,27 let, přičemž se rozpadá na  $^{60}\text{Ni}$ .  $^{60}\text{Co}$  vzniká především zachytem tepelných neutronů na jádrech  $^{59}\text{Co}$ , nicméně k jeho vzniku může dojít i reakcí neutronů se železem, resp. niklem. Účinný průřez pro zachyt tepelných

neutronů jádru  $^{59}\text{Co}$  je 37,2 barnů. Izotop  $^{59}\text{Co}$  se objevuje ve stopovém množství v betonu jako běžný kontaminant serpentinových štěrků a písků.

$^{60}\text{Co}$  se rozpadá na  $^{60}\text{Ni}$ , při přeměně jsou emitována gama kvanta, přičemž ty nejintenzivnější mají energii 1173,2 keV a 1332,5 keV. Je tedy dobře měřitelný na polovodičových spektrometrických systémech.

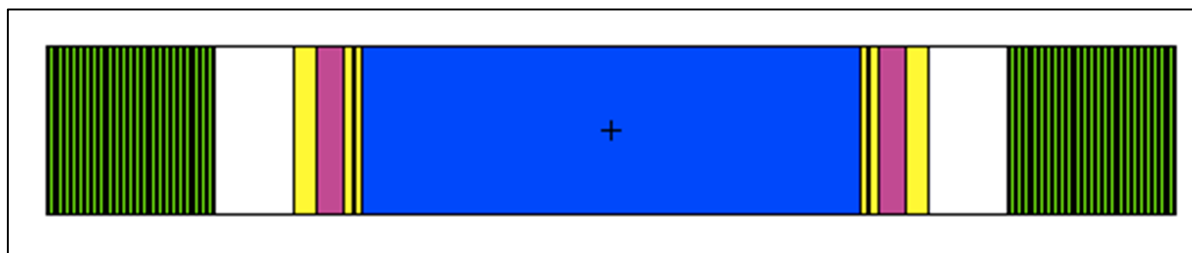
### 5.1.5 $^{152}\text{Eu}$ a $^{154}\text{Eu}$

V přírodě se europium vyskytuje pouze ve formě sloučenin, nicméně je obsaženo v řadě minerálů, a to je i důvod, proč se ve stopovém množství nachází v betonových směsích. Přírodní europium se skládá z izotopu  $^{151}\text{Eu}$  (47,8 %) a  $^{153}\text{Eu}$  (52,2 %). Tyto izotopy se při ozáření neutrony mění na  $^{152}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 13,54$  let), resp.  $^{154}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 8,59$  let). Účinný průřez pro zachyt tepelných neutronů na jádrech  $^{151}\text{Eu}$  je 5 900 barnů a pro zachyt tepelných neutronů na jádrech  $^{153}\text{Eu}$  je 312 barnů. Při přeměně izotopů  $^{152}\text{Eu}$  a  $^{154}\text{Eu}$  dochází k emisi záření gama o dostatečných energiích a intenzitách, takže jsou dobře měřitelné na polovodičových spektrometrických systémech.

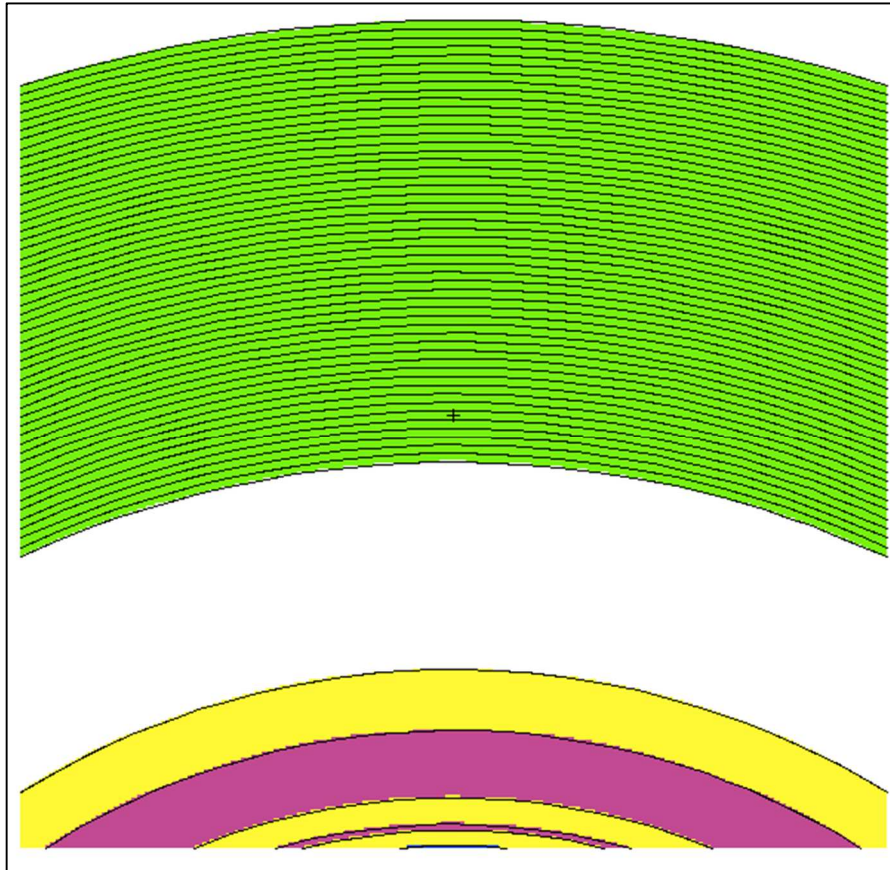
## 5.2 Výpočtová ověření

Model reaktoru byl vytvořen v programu MCNP5. Jednalo se o 2D model sestavený podle dostupné dokumentace poskytnuté dodavatelem bloku biologického stínění. Aktivní zóna byla homogenizována do objemového zdroje ve tvaru válce o poloměru 1502 mm. Bylo uvažováno čerstvé palivo  $\text{UO}_2$  bez obsahu Gd, s obsahem  $\text{H}_3\text{BO}_3$  ve vodě, ocelovým reflektorem. Byly zachovány hmotnostní zlomky všech materiálů. Neutronové spektrum vysílané homogenizovanou zónou bylo charakterizováno Wattovou distribucí s parametry  $a=0,988$ ,  $b=2,249$ . Neutronové spektrum v betonu bylo vypočteno ve formátu 238 energetických grup pomocí karty TALLY FMESH. Statistická nejistota vypočteného spektra nepřekročila v jednotlivých grupách hodnotu 10%.

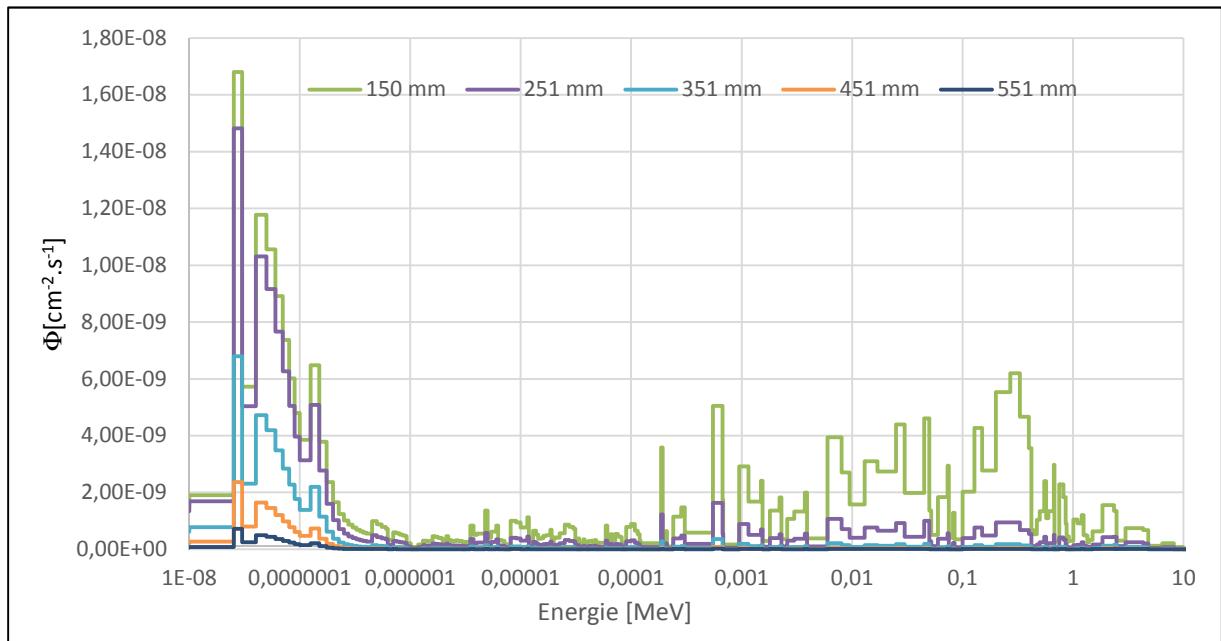
Na Obr. 18 a Obr. 19 je podélný a příčný řez MCNP modelem reaktoru. Z obrázku je patrné rozdělení betonového biologického stínění do jednotlivých vrstev, které byly vytvořeny za účelem stanovení spektra neutronů v těchto vrstvách. Spektrum je normováno na 1 neutron vyslaný objemovým zdrojem. Tvary vypočtených spekter jsou vyobrazeny v grafech na Obr. 20



**Obr. 18:** Podélný řez zjednodušeným modelem reaktoru JE Greifswald (homogenizovaná aktivní zóna - modrá, vnitřními vestavby - žlutá, nádoba – fialová a biologické stínění –zelená).



**Obr. 19:** Příčný řez zjednodušeným modelem reaktoru JE Greifswald – detail betonového biologického stínění a jeho rozdělení na vrstvy.



**Obr. 20:** Ukázka vypočtených neutronových spekter v betonu ve vrstvách 151, 251, 351, 451 a 551 mm.

Klíčovým problémem u provedených výpočtů bylo stanovení přesného složení serpentinitového betonu. Složení betonu se může lišit především množstvím kontaminantů (Cl, Cd a Eu), které jsou pro tento typ betonu typické a také obsahem vodíku. Složení je určeno přírodními materiály, z nichž byl beton vyroben a také postupy použitými při jeho výrobě. Složení betonu má vliv nejen na radionuklidy vznikající následkem reakce s neutrony, ale i změnu spektra neutronů. Oba problémy jsou navíc vzájemně závislé.

Z dat poskytnutých dodavatelem bloku biologického stínění bylo možné stanovit pouze jeho hustotu, která byla  $2,280 \text{ g/cm}^3$ . Detailní prvkové složení betonu (viz Tab. 5) bylo pro účely výpočtu spektra neutronů převzato z benchmarkových experimentů prováděných na reaktoru LR-0, jejichž cílem bylo studovat vliv betonu použitým v JE Temelín na spektrum neutronů.

Pro výpočet produktů aktivace bylo použito jiné složení betonu, které vycházelo z kompendia Gesh et al (2017), s hustotou upravenou tak, aby odpovídala hustotě  $2,280 \text{ g/cm}^3$ . Jedná se o standardizované složení serpentinitových betonů doporučený pro účely výpočtů. Do tohoto složení byly uměle přidány kontaminanty kobaltu a europia podle dokumentu Carrol (2001) a chloru podle dokumentu National Ready Mixed Concrete Association (2017). Složení betonu, které bylo určeno pro výpočty produktů reakcí s neutrony je uvedeno v Tab. 6. Nicméně je nutné konstatovat, že toto složení nemusí odpovídat přesnému složení serpentinitového betonu, který se nachází ve zkoumaném segmentu z JE Greifswald.

Produkty reakce s neutrony v různých vrstvách betonu byly vypočteny pomocí kódu ORIGEN. V rámci zjednodušení výpočtu byla uvažována stejná hustota toku neutronů na vnitřním povrchu stínění po celou dobu ozařování. Jednalo se o hodnotu  $7,26 \cdot 10^{12} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , která byla převzata z dokumentace poskytnuté dodavatelem segmentu betonového stínění. Dále bylo zjednodušeně uvažováno, že beton byl vystaven tomuto neutronovému toku po dobu 219 dnů, hodnota byla odhadnuta na základě provozních údajů poskytnutých dodavatelem betonového bloku. Rekonstrukce přesného časového průběhu výkonu, a tím i hustoty toku neutronů, nebyla v tomto případě provedena z důvodů přílišné časové náročnosti výpočtu. Čas od ukončení aktivace do měření činí 10 135 dnů.

**Tab. 5:** Složení serpentinitu použité při výpočtu spektra neutronů

Izotop	Hmotnostní zastoupení (%)	Izotop	Hmotnostní zastoupení (%)
H-1	0,9298	Cr-53	0,0425
Cnat	0,9004	Cr-54	0,0099
O-16	46,4827	Mn-55	0,0025
Na-23	0,1558	Fe-54	0,0657
Mg-24	7,5116	Fe-56	0,2189
Mg-25	0,9906	Fe-57	3,5639
Mg-26	1,1342	Fe-58	0,0838
Al-27	1,8237	Fe-59	0,0113

Si-28	14,1755	Fe-60	0,0632
Si-29	0,7450	Fe-61	0,0252
P-31	0,5072	Fe-62	0,0011
S-32	0,0261	Fe-64	0,0036
K-39	1,0123		
K-40	0,4399		
K-41	0,0001		
Ca-40	0,0334		
Ca-42	18,3552		
Ca-43	0,1286		
Ca-44	0,0275		
Ca-46	0,4344		
Ca-48	0,0009		

**Tab. 6:** Složení serpentinu použité při výpočtu produktů aktivace neutrony (Gesh et al (2017); Carrol (2001); National Ready Mixed Concrete Association (2017))

<b>Izotop</b>	<b>Atomová hustota (10<sup>-24</sup>/cm<sup>3</sup>)</b>	<b>Izotop</b>	<b>Atomová hustota (10<sup>-24</sup>/cm<sup>3</sup>)</b>
H-1	2.1869E-02	Cr-50	1.0537E-06
Cnat	1.0491E-04	Cr-52	2.0319E-05
O-16	4.4324E-02	Cr-53	2.3040E-06
Na-23	2.4659E-04	Cr-54	5.7352E-07
Mg-24	6.0790E-03	Fe-54	4.4823E-05
Mg-25	7.6959E-04	Fe-56	7.0362E-04
Mg-26	8.4732E-04	Fe-57	1.6249E-05
Al-27	9.8032E-04	Fe-58	2.1626E-06
Si-28	9.5136E-03	Co-59	7.3373E-08
Si-29	4.8308E-04	Eu-151	1.5715E-09

 <b>SÚRAO</b>	<b>Biologické stínění reaktoru</b>	Evidenční označení:
		SÚRAO TZ 203/2017

Si-30	3.1845E-04	Eu-153	1.7155E-09
K-39	1.3519E-04	Cl-35	6.7321E-06
K-40	1.6961E-08	Cl-37	2.1516E-06
K-41	9.7570E-06		
Ca-40	2.2851E-03		
Ca-42	1.5251E-05		
Ca-43	3.1822E-06		
Ca-44	4.9171E-05		
Ca-46	9.4283E-08		
Ca-48	4.4078E-06		

### 5.3 Srovnání experimentálních a vypočtených hodnot

Na základě výše uvedených údajů byly provedeny první zjednodušené výpočtové analýzy. Ty posloužily pro ověření experimentálně získaných výsledků radiochemických analýz. Samotný postup měření a jeho výsledky jsou shrnuty v kapitole 4.

Srovnání vypočtených a experimentálních hodnot je uvedeno pro jednotlivé pozice v Tab. 7 až Tab. 12.

**Tab. 7:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 659/17 (50 mm)

Radionuklid	$A_{\text{exp.}}$ (Bq/g)	$A_{\text{teor.}}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$282,57 \pm 3,06$	97,77	0,35
$^{152}\text{Eu}$	$45,73 \pm 4,46$	1363,97	29,83
$^{154}\text{Eu}$	$3,03 \pm 0,40$	60,63	20,01
$^{36}\text{Cl}$	$2,04 \pm 0,24$	6,62	3,25
$^{41}\text{Ca}$	$2,20 \pm 0,47$	62,39	28,36
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$0,490 \pm 0,039$	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	3,78		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$3,57 \pm 0,12$		

**Tab. 8:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 660/17 (150 mm)

Radionuklid	$A_{\text{exp.}}$ (Bq/g)	$A_{\text{teor.}}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$299,62 \pm 2,94$	18,33	0,06
$^{152}\text{Eu}$	$50,01 \pm 4,38$	231,6	4,63
$^{154}\text{Eu}$	$2,97 \pm 0,34$	16,55	5,57
$^{36}\text{Cl}$	$0,73 \pm 0,13$	1,16	1,59
$^{41}\text{Ca}$	$2,60 \pm 0,51$	11,08	4,26
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$0,361 \pm 0,030$	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$0,858 \pm 0,064$		

**Tab. 9:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 661/17 (250 mm)

Radionuklid	$A_{\text{exp.}}$ (Bq/g)	$A_{\text{teor.}}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$88,73 \pm 8,66$	3,66	0,04
$^{152}\text{Eu}$	$20,85 \pm 1,76$	41,69	2,00
$^{154}\text{Eu}$	$0,98 \pm 0,10$	4,17	4,26
$^{36}\text{Cl}$	$0,118 \pm 0,027$	0,219	1,86
$^{41}\text{Ca}$	$0,44 \pm 0,27$	2,13	4,84
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$0,035 \pm 0,008$	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$0,190 \pm 0,048$		

**Tab. 10:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 662/17 (350 mm)

Radionuklid	$A_{\text{exp.}}$ (Bq/g)	$A_{\text{teor.}}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$19,81 \pm 2,04$	0,81	0,04
$^{152}\text{Eu}$	$3,70 \pm 0,17$	9,21	2,49
$^{154}\text{Eu}$	$0,167 \pm 0,018$	0,89	5,33
$^{36}\text{Cl}$	$0,056 \pm 0,017$	0,048	0,86
$^{41}\text{Ca}$	$0,54 \pm 0,22$	0,48	0,88
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$< 0,027$	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$0,093 \pm 0,047$		

**Tab. 11:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 663/17 (450 mm)

Radionuklid	$A_{exp.}$ (Bq/g)	$A_{teor.}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$4,21 \pm 0,42$	0,04	0,01
$^{152}\text{Eu}$	$1,08 \pm 0,094$	0,58	0,54
$^{154}\text{Eu}$	$0,0430 \pm 0,0,0068$	0,03	0,70
$^{36}\text{Cl}$	0,0163	0,003	0,18
$^{41}\text{Ca}$	< 0,39	0,13	-
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	0,026	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	0,071		

**Tab. 12:** Experimentální a teoretické výsledky analýzy vzorku 664/17 (550 mm)

Radionuklid	$A_{exp.}$ (Bq/g)	$A_{teor.}$ (Bq/g)	C/E
$^{60}\text{Co}$	$0,926 \pm 0,114$	0,0047	0,01
$^{152}\text{Eu}$	$0,231 \pm 0,026$	0,0643	0,28
$^{154}\text{Eu}$	$0,0126 \pm 0,0020$	0,0032	0,25
$^{36}\text{Cl}$	< 0,018	0,0003	-
$^{41}\text{Ca}$	< 0,35	0,04	-
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	< 0,030	-	-
$^{14}\text{C}$ (spalování)	-		
$^{14}\text{C}$ (tavení)	< 0,066		

## 5.4 Zhodnocení výsledků

Z výsledků uvedených v předchozí kapitole (5.3) vyplývá neshoda mezi měřeními a vypočtenými hodnotami.

Oproti původním výpočtům (použita jedna úroveň hustoty toku, a tedy konstantní průběh ozařovací historie betonu) byla neshoda výrazně snížena (cca o dva řády) díky přesnějšímu popisu modelované ozařovací historie betonu. K tomuto účelu posloužila historie provozu bloku uvedená v provozním diagramu (viz Obr. 1 v kapitole 2.2). Historie ozařování betonu byla rekonstruována v maximální možné míře podle tohoto diagramu.

V současnosti je hlavním zdrojem rozdílu mezi vypočtenými a experimentálně určenými hodnotami neznámé složení betonu. Složení použité ve výpočtech vycházelo z doporučení nalezených v dokumentu Gesh et al (2017), složení příměsí (Cl a Eu) bylo odhadnuto na základě hodnot používaných v literatuře Carrol (2001) a National Ready Mixed Concrete Association (2017). Nicméně toto složení se může od skutečného značně lišit.

Z tohoto důvodu by bylo přínosné provést chemické nebo jiné (např. NAA) analýzy, které by pomohly upřesnit složení betonu a zpřesnit tak výpočtový model. Vhodné by bylo, co



nejpřesněji určit nejen primární množství příměsí, ale také prvků vedoucích k produkci vybraných kritických radionuklidů ( $^{14}\text{C}$  a  $^{41}\text{Ca}$ ), kterými jsou například dusík nebo vápník. Při výpočtech nebyla vůbec zaznamenána produkce uhlíku  $^{14}\text{C}$ , což lze vysvětlit tím, že dusík nebyl uveden v chemickém složení betonu a tudíž nebyl zadán do výpočetního modelu. Přitom reakce  $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  je o více jak tři řády pravděpodobnější než reakce  $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$ .

Z pohledu výpočtů je, kromě příměsí, důležité také znát množství vodíku, který má vliv na spektrum neutronů. Ocenit tento vliv lze na základě informací z dostupné literatury a provedení potřebné citlivostní analýzy, která však je časově náročná. Výpočet spektra v jednotlivých vrstvách betonu trvá přibližně 21 dnů. Nicméně i tato analýza by byla přínosná.

## 5.5 Srovnání experimentálních hodnot s predikcemi pro JE Dukovany

Získané experimentální hodnoty z radio-chemických analýz biologického betonového stínění reaktorové nádoby 5. bloku JE Greifswald mohou posloužit k ověření výpočtových predikcí, které byly zpracovány v rámci návrhu způsobu vyřazování z provozu JE Dukovany. Na 5. bloku JE Greifswald byl provozován stejný typ jaderného reaktoru (VVER-440/213), jako jsou provozovány v JE Dukovany.

Výsledky výpočtů aktivačních produktů v technologických částech reaktoru JE Dukovany jsou zpracovány v dokumentu EGP Invest (2012). Pro účely srovnání s výsledky z analýz biologického betonového stínění z JE Greifswald byly vybrány v dokumentu EGP Invest (2012) hodnoty aktivit radionuklidů, které jsou očekávány v případě zahájení okamžitého vyřazování JE Dukovany z provozu. Jedná se o vyřazování po dosažení projektové životnosti elektrárny, tj. 30 let. Vybrány byly pouze radionuklidy, které byly identifikovány i v analyzovaném biologickém betonovém stínění JE Greifswald. V případě JE Greifswald byly použity hodnoty z analýzy vzorku č. 659/17 (nejblíže reaktorové nádobě). Srovnání hodnot aktivit těchto radionuklidů je provedeno v Tab. 13.

**Tab. 13:** Přehled aktivačních produktů a jejich aktivit v případě serpentínového betonu použitého na JE Greifswald (experimentálně zjištěná data –  $A_{\text{Greifswald}}$ ) a na JE Dukovany (teoretické hodnoty –  $A_{\text{JEDU}}$ ).

Radionuklid	$A_{\text{Greifswald}}$ (Bq/g)	$A_{\text{JEDU}}$ (Bq/g)	$A_{\text{Greifswald}} / A_{\text{JEDU}}$
$^{60}\text{Co}$	$282,57 \pm 3,06$	102	2,77
$^{36}\text{Cl}$	$2,04 \pm 0,24$	0,101	20,20
$^{41}\text{Ca}$	$2,20 \pm 0,47$	4 240	$5,19 \cdot 10^{-4}$
$^{14}\text{C}$ (kyselina)	$0,490 \pm 0,039$	364	$1,35 \cdot 10^{-3}$
$^{14}\text{C}$ (spalování)	3,78		$1,04 \cdot 10^{-2}$
$^{14}\text{C}$ (tavení)	$3,57 \pm 0,12$		$9,80 \cdot 10^{-3}$

Jak vyplývá z *Tab. 13*, nebyly v analýzách provedených pro JE Dukovany zjištěny radioizotopy  $^{152}\text{Eu}$  a  $^{154}\text{Eu}$ . Tyto vzácné zeminy, které se obvykle nacházejí jako příměs v serpentinových betonech, nebyly zřejmě ve výpočtech pro JE Dukovany uvažovány.

Abychom mohli provést korektní srovnání výše uvedených hodnot, bylo by nutné přepočítat (korigovat) aktivity radionuklidů zjištěné v případě JE Greifswald na historii ozařování betonu v JE Dukovany, nebo opačně. 5. Blok JE Greifswald byl v provozu několik desítek dnů s maximálně dosaženým výkonem 220 MW<sub>t</sub>. Oproti tomu analýzy provedené pro JE Dukovany odpovídají 30-letému provozu elektrárny na maximálním výkonu. Nicméně i bez těchto korekcí, lze vysledovat v uvedených datech překvapivě odlišnosti.

V první řadě je pozoruhodný rozdíl v aktivitě  $^{60}\text{Co}$ , která je v případě JE Greifswald vyšší (cca 3x) než v případě JE Dukovany. Tento radionuklid má nejkratší poločas přeměny ( $T_{1/2} = 5,27$  let) ze všech porovnávaných, a proto by se jeho aktivita měla v případě JE Dukovany blížit saturované aktivitě a zároveň by měla být vyšší i z důvodů vyššího ozařovacího výkonu. Taktéž aktivita  $^{36}\text{Cl}$  je v případě JE Dukovany výrazně nižší (cca 20x), než v případě JE Greifswald, přestože se u JE Dukovany jedná o delší dobu ozařování i vyšší výkon. Tyto skutečnosti by mohly indikovat překvapivě výrazně nižší množství příměsí  $^{59}\text{Co}$  a  $^{35}\text{Cl}$  v serpentinovém betonu, který byl použit v JE Dukovany. Naopak aktivita  $^{14}\text{C}$  je v případě JE Dukovany o dva až tři řády vyšší (viz *Tab. 13*), než v případě JE Greifswald. To může být způsobeno jak výrazně delší dobou ozařování, tak i vyšším výkonem v případě JE Dukovany. Nicméně s ohledem na reakce vedoucí ke vzniku  $^{14}\text{C}$  a jejich účinné průřezy, je hodnota aktivity tohoto radionuklidu v případě JE Dukovany překvapivě vysoká.

## 6 Závěr

Cílem tohoto dílčího projektu je ověřit údaje pro výpočet zdrojového členu pro bezpečnostní rozboru hlubinného úložiště pro biologické stínění reaktoru jako zdroje RAO nepřijatelného do přípovrchových úložišť, se zvláštním zřetelem k obsahu radionuklidů  $^{14}\text{C}$ ,  $^{41}\text{Ca}$  a  $^{36}\text{Cl}$ . K tomuto účelu byla využita unikátní možnost destruktivní radiochemické analýzy reálných vzorků ozářeného betonu, pocházející z vyřazovaného 5. bloku jaderné elektrárny Greifswald, která byla stejného typu jako je jaderná elektrárna Dukovany.

Byly odebrány vzorky v místech s odlišnou vzdáleností od reaktorové nádoby a provedeny radiochemické analýzy těchto vzorků. Byly změřeny tyto radionuklidy:  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152,154}\text{Eu}$ . Aktivity těchto radionuklidů byly porovnány s vypočtenými hodnotami přímo pro JE Greifswald, provedenými v rámci tohoto projektu, a s hodnotami pro JE Dukovany napočtenými v dokumentu EGP Invest (2012).

**Naměřené a modelově vypočtené hodnoty aktivit vybraných radionuklidů jsou ve vzájemném rozporu, který v případě některých radionuklidů dosahuje až násobků jednoho řádu. S ohledem na zpřesněný model ozařovací historie betonu, spočívá hlavní neurčitost v nepřesném popisu složení betonu. Aby mohla být experimentálně zjištěná data s dostatečnou přesností výpočtově ověřena, je nutné určit přesné složení zkoumaného betonu. Toho lze docílit pouze na základě dodatečných analýz (viz kapitola 5.4.).**

## 7 Reference:

*EGP Invest, spol. s r.o. - Návrh způsobu vyřazování z provozu JE Dukovany, 12/2012.*

*C.J., Gesh, et al. - Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling, Washington, D.C. : United States. Dept. of Energy.; Oak Ridge, Tenn.: distributed by the Office of Scientific and Technical Information, U.S. Dept. of Energy, 2011, online [http://www.pnnl.gov/main/publications/external/technical\\_reports/pnnl-15870rev1.pdf](http://www.pnnl.gov/main/publications/external/technical_reports/pnnl-15870rev1.pdf), [30-09-2017]*

*L.R., Carroll - Predicting Long-Lived, Neutron-Induced Activation of Concrete in a Cyclotron Vault, AIP Conference Proceedings 576, 301 (2001); doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1395309>.*

*National Ready Mixed Concrete Association. - Technology in Practice 13, Chloride Limits in Concrete, online: <http://www.nrmca.org/aboutconcrete/downloads/Tip13.pdf>, [30-09-2017]*

*H., Xiaolin - Radiochemical determination of <sup>41</sup>Ca in nuclear reactor concrete, Radiochimica Acta 93(9):611-617, January 2005*

Citace vnitřních předpisů CAL-ZL:

- PP 2405 269 *Provedení nestandardní činnosti: Pro práci se zvýšeným radiačním rizikem při vzorkování biologického stínění reaktoru – betonový blok Greifswald“*
- SOP R-01 *Stanovení aktivity izotopů - zářičů gama - metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením*
- SOP R-18 *Stanovení aktivity <sup>36</sup>Cl metodou kapalinové scintilační spektrometrie*
- SOP R-05 *Stanovení aktivity <sup>14</sup>C kapalinovou scintilační spektrometrií*
- LP CA-41 *Stanovení <sup>41</sup>Ca ve vzorcích z provozu jaderných elektráren a okolí metodou gama spektrometrie s vysokým rozlišením (neakreditovaný postup)*

# NAŠE BEZPEČNÁ BUDOUCNOST



**SÚRAO**

Správa úložišť radioaktivních odpadů

Dlážděná 6, 110 00 Praha 1

Tel.: 221 421 511, E-mail: [info@surao.cz](mailto:info@surao.cz)

[www.surao.cz](http://www.surao.cz)