



# Notat

## Det særlige affald - indhold af radioaktive stoffer, udbrænding og varmeudvikling

### 1 Indledning

I Risøs Hot Cell anlæg blev der i perioden 1968 - 1990 udført forskellige typer efterbestrålingsundersøgelser af eksperimentelt fremstillede og bestrålede brændselsstave til kernekraftværker. Rester fra disse forsøg er i øjeblikket oplagret hos Dansk Dekommissionering. Det drejer sig om i alt ca. 233 kg lavt beriget uran med et betydeligt indhold af fissionsprodukter (spaltningens produkter) og transuraner (aktinider). Det særlige affald er underlagt IAEA's og EURATOM's safeguards kontrol.

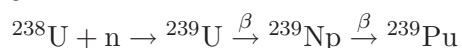
Dette notat beskriver det særlige affald: (1) udbrændingen (eng.: burnup) af fissilt materiale, (2) indholdet af fissionsprodukter og transuraner i materialet, (3) varmeudviklingen i materialet og (4) klassifikationen af materialet iht. IAEA's anbefalinger. Notatet beskriver endvidere aktivitetsindholdet i kerneopløsningen fra DR 1 og mulige metoder til deponering af dette affald.

### 2 Udbrænding af det særlige affald

Udbrændingen af fissilt materiale ( $^{235}\text{U}$  og  $^{239}\text{Pu}$ ) angiver materialeforbruget i form af fissioner (spaltning) af atomkernerne i materialet. Ved spaltningen produceres to mindre radioaktive atomkerner (fissionsprodukter, f.eks.  $^{90}\text{Sr}$  og  $^{137}\text{Cs}$ ) samt frigivelse af 2 - 3 neutroner. Fission af en atomkerne resulterer i en frigjort energi på omkring 200 MeV ( $3.2 \cdot 10^{-11}$  joule). Spaltning af ét gram fissilt materiale frigør en energi på 1 MWd (24 000 kWh).

Udbrænding af reaktorbrændsel angives i enheden MWd pr. kg uran metal ( $^{235}\text{U} + ^{238}\text{U}$ ). Indholdet af semi-langlivede og langlivede fissionsprodukter i bestrålet reaktorbrændsel vokser lineært med tiden, og det samlede indhold er proportional med udbrændingen. Indholdet af kortlivede fissionsprodukter opnår hurtigt en ligevægt mellem dannelsesrate og radioaktiv henfaldsrate, og indholdet er uafhængig af udbrændingen men proportional med reaktoreffekten.

Dannelsen af  $^{239}\text{Pu}$  i bestrålet uranbrændsel sker ved neutronindfangning i  $^{238}\text{U}$ :



Der opstår hurtigt en ligevægt mellem dannelsesraten og fissionsraten af  $^{239}\text{Pu}$ , og indholdet af  $^{239}\text{Pu}$  i bestrålet brændsel er derfor uafhængig af udbrændingen.

Indholdet af fissionsprodukter og aktinider i bestrålet uranbrændsel kan beregnes på grundlag af forskellige computermodeller. Modellen ORIGEN [1] er udviklet på Oak Ridge National Laboratory i USA, og den har dannet grundlag for beregningen af aktivitetsindholdet i det særlige affald.

Som eksempel er indholdet af  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  og  $^{239}\text{Pu}$  i bestrålet uranbrændsel med lav berigning (3 - 4%) beregnet med ORIGEN for to forskellige udbrændinger, 39 MWd/kg og 72 MWd/kg, og resultaterne er vist i tabel 1 [1].

Tabel 1. Aktivitetsindhold (GBq pr. gram uranmetal) af  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  og  $^{239}\text{Pu}$  i bestrålet uranbrændsel med forskellig udbrænding.

Radionuklid	Udbrænding (39 MWd/kg)	Udbrænding (72 MWd/kg)
$^{90}\text{Sr}$	1.6	2.5
$^{137}\text{Cs}$	2.5	5.0
$^{239}\text{Pu}$	0.01	0.01

Det fremgår af tabellen, at aktivitetsindholdet af  $^{90}\text{Sr}$  og  $^{137}\text{Cs}$  er (nogenlunde) proportional med udbrændingen, hvorimod aktivitetsindholdet af  $^{239}\text{Pu}$  er uafhængig af udbrændingen.

Typiske udbrændinger i kraftreaktorbrændsel er 40 MWd/kg. I den finske kraftreaktor, der er under opførsel, planlægger man at udbrænde brændslet til 60 MWd/kg.

### 3 Indhold af radioaktive stoffer i det særlige affald

Indholdet af aktivitet i det særlige affald er bestemt på grundlag af udbrændingen af affaldet. Affaldet består hovedsageligt af rester af brændselsstave, der har været bestrålet i forskellige reaktorer:

- danske bestrålinger i DR 3-, Halden- og Kahl-reaktoren
- bestrålinger i udenlandske reaktorer
- udenlandske bestrålinger i Halden-, Garigliano- og Dragon-reaktoren

I tabel 2 er vist det samlede aktivitetsindhold i det særlige affald [2]. Den samlede aktivitet i det særlige affald udgør i alt 791 TBq.

Tabel 2. Aktivitetsindhold (GBq) i 233 kg særligt affald (juni 2008).

Affald	$\beta$ -/ $\gamma$ -aktivitet ( $T_{1/2} < 30$ år)	$\beta$ -/ $\gamma$ -aktivitet ( $T_{1/2} \geq 30$ år)	$\alpha$ -aktivitet (Langlivet)
	$Q_{\beta/\gamma}$	$Q_{\beta/\gamma}$	$Q_{\alpha}$
12 kg bestrålet brændsel	23 000	55	1 500
221 kg bestrålet brændsel	730 000	5 200	31 000
I alt 233 kg brændsel	753 000	5 255	32 500

I Forstudier til slutdepot for radioaktivt affald, Working Report 3, Nuclides in the waste [2] er der i tabel 3-4, side 11, angivet et skøn over det samlede inventarium af radioaktivt affald fra dekommissioneringen af de nukleare anlæg på Risø-området, inkl. det særlige affald.

Det fremgår heraf, at  $\beta$ -/ $\gamma$ -aktiviteten i det særlige affald udgør omkring 56% af det samlede inventorium. Tilsvarende udgør  $\alpha$ -aktiviteten i det særlige affald omkring 87% af det samlede inventorium.

#### 4 Varmeudvikling i det særlige affald

Når radionuklider henfalder udsendes der partikler og fotoner fra atomkernerne,  $\alpha$ -partikler (og i nogle tilfælde også fotoner) fra aktinider og andre  $\alpha$ -emittere og  $\beta$ -partikler og fotoner fra  $\beta$ -/ $\gamma$ -emittere. De udsendte partikler og fotoner fra fissionsprodukter og aktinider i bestrålet reaktorbrændsel absorberes i uranmetallet og afgiver herved deres energi.  $\alpha$ - og  $\beta$ -partiklerne afsætter hele deres energi, hvorimod kun en del af fotonenergien - afhængig af brændselsgeometrien - afsættes her.

Henfaldseffekten,  $P$ , fra en given aktivitet,  $Q$ , i bestrålet uranbrændsel beregnes som energiafsættelsen pr. tidsenhed (joule/s = W):

$$P = P_\alpha + P_\beta + P_\gamma$$

$$\cong Q_\alpha \cdot E_\alpha + Q_{\beta/\gamma} \cdot \bar{E}_\beta + 0.3 \cdot Q_{\beta/\gamma} \cdot \bar{E}_\gamma$$

hvor  $Q_\alpha$  og  $Q_{\beta/\gamma}$  er indholdet af henholdsvis  $\alpha$ - og  $\beta$ -/ $\gamma$ -aktivitet vist i tabel 2,  $E_\alpha$  er energien af de udsendte  $\alpha$ -partikler, og  $\bar{E}_\beta$  og  $\bar{E}_\gamma$  er henholdsvis middelenegien af de udsendte  $\beta$ -partikler og middelenegien af de udsendte fotoner. Det er her antaget, at kun 30% af  $\gamma$ -fotonenergien afsættes i uranmetallet, og resten i omgivelserne. Energien af de udsendte partikler og fotoner er:

$$E_\alpha = 5 \text{ MeV}/\alpha\text{-partikel} \quad (8.0 \cdot 10^{-13} \text{ joule}/\alpha\text{-partikel})$$

$$\bar{E}_\beta = 0.5 \text{ MeV}/\beta\text{-partikel} \quad (8.0 \cdot 10^{-14} \text{ joule}/\beta\text{-partikel})$$

$$\bar{E}_\gamma = 0.7 \text{ MeV}/\gamma\text{-foton} \quad (1.1 \cdot 10^{-13} \text{ joule}/\gamma\text{-foton})$$

Med de ovenfor angivne værdier af partikel- og fotonenergi samt de angivne aktiviteter i tabel 2 kan den samlede henfaldseffekt beregnes til ca. 112 W, fordelt med 23% ( $\alpha$ ), 54% ( $\beta$ ) og 23% ( $\gamma$ ). Kendes udbrændingen af givne delmængder af det særlige affald, kan aktiviteten af semi-langlivede og langlivede radionuklider og dermed henfaldseffekten beregnes for hver af disse delmængder.

#### 5 Klassifikation af radioaktivt affald

I IAEA's General Safety Guide No. GSG-1, *Classification of Radioactive Waste*, er højaktivt affald (High Level Waste, HLW) defineret som [3]:

High Level Waste (HLW):

Waste with levels of activity concentration high enough to generate significant quantities of heat by the radioactive decay process or waste with large amounts of long lived radionuclides that need to be considered in the design of a disposal facility for such waste.

2.31. HLW typically has levels of activity concentration in the range of  $10^4$  -  $10^6$  TBq/m<sup>3</sup> (e.g. for fresh spent fuel

from power reactors, which some States consider radioactive waste)<sup>1</sup>. HLW includes conditioned waste arising from the reprocessing of spent fuel together with any other waste requiring a comparable degree of containment and isolation. At the time of disposal, following a few decades of cooling time, waste containing such mixed fission products typically has levels of activity concentration of around  $10^4$  TBq/m<sup>3</sup>. For the purposes of communication pending the establishment of disposal facilities for HLW, *national authorities may determine that certain waste constitutes ILW or HLW on the basis of generic safety cases.*

De nationale myndigheder kan iflg. ovenstående anbefalinger fastsætte, om radioaktivt affald udgør mellemaktivt eller højaktivt affald baseret på en generisk sikkerhedsanalyse.

## 6 DR 1 kerneopløsningen

Efter nedlukningen af DR 1 i 2001 blev kerneopløsningen overført til fire cylindriske containere, der hver blev placeret i en blyafskærmning med en tykkelse på ca. 12 cm. Hver container indeholder fire liter kerneopløsning.

Det samlede aktivitetsindhold i kerneopløsningen er mindre end 0.1 TBq, og de dominerende nuklider er <sup>90</sup>Sr og <sup>137</sup>Cs. Flydende affald kan ikke deponeres i et dansk slutdepot, og kerneopløsningen skal derfor bringes på fast form. Der er principielt to muligheder herfor.

Kerneopløsningen kunne inddampes i mindre portioner i destillationsanlægget, og det inddampede koncentrat kan herefter placeres i normale affaldstromler. Alternativt kunne kerneopløsningen fortyndes og bringes på en kemisk form, der er forenelig med udstøbning i mindre cementblokke. Begge metoder skal i givet fald studeres i detaljer.

## 7 Konklusioner

Udbrændingen af de enkelte brændselsdele i det særlige affald varierer mellem 3 og 42 MWd/kg, svarende til en udviklet energi på mellem 33 og 1156 MWd. Aktivitetsindholdet i de enkelte brændselsdele i det særlige affald er beregnet på grundlag heraf.

De enkelte brændselsdele befinder sig i en række rustfri stålbeholdere, hvis indhold varierer i følgende intervaller:

- aktivitet: 4.7 - 164 TBq
- aktivitetskoncentration:  $0.02 \cdot 10^4$  -  $0.55 \cdot 10^4$  TBq/m<sup>3</sup>
- effektkoncentration: 0.02 - 0.78 kW/m<sup>3</sup>

I henhold til IAEA's anbefalinger [3] skal det særlige affald iflg. de ovenstående beregnede aktivitets- og effektkoncentrationer ikke kategoriseres som højaktivt affald. De enkelte stålbeholdere kan derfor deponeres som mellemaktivt affald, både samlet eller hver for sig.

---

<sup>1</sup>The previous classification system [4] quoted a corresponding thermal power of 2 - 20 kW/m<sup>3</sup>. A level of thermal power is not specified in this Safety Guide as it is a matter for detailed consideration in the demonstration of the safety of a geological disposal facility.

## Litteratur

- [1] Naegeli, R.E., *Calculation of the Radionuclides in PWR Spent Fuel Samples for SFR Experiment Planning*. Sandia Report, SAND2004-2757, Sandia National Laboratories, Albuquerque, New Mexico (2004).
- [2] Dansk Dekommissionering, *Pre-feasibility study for final disposal of radioactive waste - Nuclides in the waste*. Working Report 3 (2011).
- [3] INTERNATIONAL ATONMIC ENERGY AGENCY, *Classification of Radioactive Waste*. IAEA Safety Standards. General Safety Guide No. GSG-1. IAEA Vienna (2009).
- [4] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, *Classification of Radioactive Waste*. Safety Series No. 111-G-1.1. IAEA Vienna (1994).
- [5] World Nuclear Association, *Plutonium*. (2012)
- [6] Lauridsen, K., *Description of the fuel solution from the DR 1 reactor*. Technical Note, Danish Decommissioning (2004).