

## Выход радиоактивных благородных газов из теплоносителя в газовые объемы первого контура реактора БОР-60

В. М. ГРЯЗЕВ, В. В. КОНЯШОВ, В. И. ПОЛЯКОВ, Ю. В. ЧЕЧЕТКИН

УДК 539.173.8:621.039.534.63

При работе реакторов с натриевым теплоносителем в условиях нарушения герметичности твэлов и особенно при использовании твэлов с выпуском газообразных продуктов деления очень важно знать долю газообразных радиоактивных продуктов, выходящих из теплоносителя в газовые объемы реактора. Уровень радиоактивности в газовых объемах определяет необходимые меры защиты газовых коммуникаций при нормальной эксплуатации и требования к системе газоочистки и чувствительности системы контроля герметичности оболочек. Описание реактора БОР-60, его параметры, назначение и возможности приведены в работах [1, 2].

Для изучения распределения радиоактивных благородных газов в первом контуре реактора БОР-60 производились измерения их активности в газовых объемах и в натриевом теплоносителе. Активность благородных газов в газовых объемах реактора и циркуляционного насоса первого контура измерялась на газовых спектрометрических петлях беспроботборным методом с применением сцинтилляционного гамма-спектрометра с коллиматором [3].

Для более детального исследования изотопного состава и определения малых активностей благородных газов в пробах газа применялся Ge(Li)-детектор (чувствительный объем 25 см<sup>3</sup>, разрешение по Cs<sup>137</sup> приблизительно 1,2%).

Активность Ne<sup>23</sup> в натриевом теплоносителе определялась беспроботборным методом в трубопроводе первого контура при тепловой мощности реактора до 400 кВт.

В табл. 1 приведены удельные активности благородных газов в газовых объемах реактора и насоса.

Уровни активности этих газов в газовых объемах, а также их соотношение свидетельствуют о герметичности твэлов. При этом максимальное выгорание тяжелых ядер в них достигает 3%.

Соотношение активностей благородных газов с разными периодами полураспада в газовых объемах реактора и насоса позволяет вычислить вероятность утечки газов из теплоносителя. Уравнение для переноса радиоактивных благородных газов в первом контуре с учетом двух

насосов запишется в виде

$$\begin{aligned} \frac{dN_i^T}{dt} &= c_i - \lambda_i N_i^T - a_i N_i^T - 2b_i N_i^T + d_i N_i^P + 2f_i N_i^H; \\ \frac{dN_i^P}{dt} &= a_i N_i^T - \lambda_i N_i^P - d_i N_i^P; \\ \frac{dN_i^H}{dt} &= b_i N_i^T - \lambda_i N_i^H - f_i N_i^H; \end{aligned} \quad (1)$$

где  $N_i^T$ ,  $N_i^P$ ,  $N_i^H$  — количество атомов  $i$ -го изотопа в теплоносителе, в газовом объеме реактора и в газовом объеме насоса соответственно;  $c_i$  — скорость поступления  $i$ -изотопа, сек<sup>-1</sup>;  $\lambda_i$  — постоянная распада  $i$ -го изотопа, сек<sup>-1</sup>;  $a_i, b_i, d_i, f_i$  — коэффициенты, характеризующие вероятность утечки  $i$ -го изотопа из теплоносителя в газовые объемы реактора и насоса соответственно, сек<sup>-1</sup>;  $d_i, f_i$  — коэффициенты, характеризующие вероятность захвата теплоносителем  $i$ -го изотопа из газового объема реактора и газового объема насоса соответственно, сек<sup>-1</sup>.

Подстановка экспериментальных значений (см. табл. 1) в систему уравнений (1) для трех изотопов одного элемента ( $i, k, l$ ) в предположении, что  $a_i = a_k = a_l = a_e$ ,  $b_i = b_k = b_l = b_e$ ,  $d_i = d_k = d_l = d_e$ ,  $f_i = f_k = f_l = f_e$ , для стационарного случая ( $\frac{dN_i^T}{dt} = 0$ ;

Изотопный состав радиоактивных благородных газов в газовых объемах реактора и насоса при мощности реактора 40 Мвт

Изотоп	Период полураспада T <sub>1/2</sub>	Удельная активность, кюри/л	
		Газовый объем реактора	Газовый объем насоса
Ne <sup>23</sup>	37,5 сек	(3±0,5)·10 <sup>-2</sup>	(5±0,8)·10 <sup>-5</sup>
Ar <sup>41</sup>	1,83 ч	(1,3±0,2)·10 <sup>-3</sup>	(2,5±0,5)·10 <sup>-6</sup>
Kr <sup>85m</sup>	4,5 ч	(3,8±0,5)·10 <sup>-7</sup>	(1±0,2)·10 <sup>-7</sup>
Kr <sup>87</sup>	1,27 ч	(4±0,5)·10 <sup>-7</sup>	(1±0,2)·10 <sup>-7</sup>
Kr <sup>88</sup>	2,79 ч	(1±0,2)·10 <sup>-6</sup>	(2,1±0,3)·10 <sup>-7</sup>
Xe <sup>133</sup>	5,3 сутки	(4±0,5)·10 <sup>-6</sup>	(8,5±1)·10 <sup>-7</sup>
Xe <sup>133m</sup>	2,26 сутки	(1,2±0,2)·10 <sup>-8</sup>	—
Xe <sup>135</sup>	9,15 ч	(2,7±0,4)·10 <sup>-6</sup>	(6,2±1)·10 <sup>-7</sup>
Xe <sup>135m</sup>	15,7 мин	(8±1)·10 <sup>-8</sup>	—
Xe <sup>138</sup>	17 мин	(2,5±0,5)·10 <sup>-7</sup>	—

Примечания. 1. Расход теплоносителя в первом контуре 1000 м<sup>3</sup>/ч. 2. Температура теплоносителя на выходе из реактора 450° С. 3. В схему включена холодная ловушка окислов натрия.

$$\left. \frac{dN_i^p}{dt} = 0; \frac{dN_i^h}{dt} = 0 \right) \text{ дает } d_i \ll a_i \text{ и } f_i \ll b_i.$$

Это подтверждается и характером движения теплоносителя на границе раздела с газовыми объемами. Тогда решение системы уравнений (1) запишется в виде

$$\begin{aligned} Q_i^p &= \frac{a_i}{\lambda_i + a_i + 2b_i} c_i; \\ Q_i^h &= \frac{b_i}{\lambda_i + a_i + 2b_i} c_i, \end{aligned} \quad (2)$$

где  $Q_i^p$  и  $Q_i^h$  — активность  $i$ -го изотопа в газовом объеме реактора и в газовом объеме насоса соответственно.

Для продуктов деления  $U^{235}$  в случае загрязнения им оболочек твэлов и теплоносителя

$$\frac{c_i}{c_k} = \frac{\eta_i}{\eta_k}, \quad (3)$$

где  $\eta_i$ ;  $\eta_k$  — выход  $i$ -го и  $k$ -го изотопов на одно деление  $U^{235}$ . Тогда в предположении равенства коэффициентов, характеризующих вероятности утечки, для двух изотопов  $i$  и  $k$  одного элемента из формулы (2) с учетом (3) получим

$$\begin{aligned} a &= \frac{\lambda_i A_i^p \eta_k - \lambda_k A_k^p \eta_i}{\eta_i \left( A_k^p + 2A_k^h \frac{V^h}{V^p} \right) - \eta_k \left( A_i^p + 2A_i^h \frac{V^h}{V^p} \right)}; \\ b &= \frac{A_i^h}{A_i^p} = \frac{V^h}{V^p} a, \end{aligned} \quad (4)$$

где  $A_i^p$ ,  $A_i^h$  — удельная активность  $i$ -го изотопа в газовом объеме реактора и насоса соответственно;  $V^p$ ,  $V^h$  — объем газа в реакторе и насосе соответственно, л. Для реактора БОР-60  $V^h = 0,5 \text{ м}^3$ ,  $V^p = 1,2 \text{ м}^3$ .

Результаты расчетов по изотопам  $\text{Xe}^{133}$ ,  $\text{Xe}^{135m}$ ,  $\text{Kr}^{85m}$  и  $\text{Kr}^{88}$  приведены в табл. 2, где

Коэффициенты, характеризующие вероятность утечки благородных газов из теплоносителя в газовые объемы реактора и насоса, и средние времена пребывания этих газов в теплоносителе Таблица 2

Элемент	$a$ , ч <sup>-1</sup>	$b$ , ч <sup>-1</sup>	$\tau$ , ч
Xe	$0,98 \cdot 10^{-1}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	8,3
Kr	$1,08 \cdot 10^{-1}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$	7,6
Ne	$1,96 \cdot 10^{-1}$	$1,4 \cdot 10^{-4}$	5,1

среднее время пребывания в теплоносителе рассчитывалось по формуле

$$\tau = \frac{1}{a + 2b}. \quad (5)$$

Из соотношения (2), используя экспериментальные величины удельных активностей для  $\text{Xe}^{133}$ ,  $\text{Xe}^{135}$ ,  $\text{Kr}^{85m}$  и  $\text{Kr}^{88}$  (см. табл. 1) и рассчитанные коэффициенты  $a$  и  $b$  (см. табл. 2), можно найти число делений  $U^{235}$  на поверхности твэлов и в теплоносителе —  $3,6 \cdot 10^9$  делений/сек, что соответствует максимальному поверхностному загрязнению твэлов  $1,2 \cdot 10^{-9} \text{ г } U^{235}/\text{см}^2$ .

С целью проверки рассматриваемой методики расчета и полученных констант по формуле (2) была рассчитана для газовых объемов удельная активность изотопов  $\text{Kr}^{87}$ ,  $\text{Xe}^{133m}$ ,  $\text{Xe}^{135m}$ ,  $\text{Xe}^{138}$ . Все полученные расчетным путем удельные активности совпадают в пределах точности измерений с экспериментальными (см. табл. 1).

Коэффициенты, характеризующие вероятность утечки неона в газовые объемы из теплоносителя, определялись по  $\text{Ne}^{23}$ , причем учитывалось, что в стационарном состоянии

$$c_i = Q_i^r + Q_i^p + 2Q_i^h.$$

Из табл. 1 с учетом объемов  $Q^p(\text{Ne}^{23}) = 36 \text{ кюри}$ ,  $Q^h(\text{Ne}^{23}) = 2,5 \text{ кюри}$ .

Измерения беспроботборным методом на трубопроводе первого контура показали, что при мощности реактора 40 Мвт  $Q^r(\text{Ne}^{23}) = 1,2 \cdot 10^4 \text{ кюри}$ . Следовательно, для  $\text{Ne}^{23}$   $Q^p \ll Q^r$ ,  $Q^h \ll Q^r$ . Из формул (2) и данных табл. 1 следует, что  $b \ll a$ , поэтому выражения (2) упрощаются:

$$a = \frac{Q^p}{Q^r} \lambda; \quad b = \frac{Q^h}{Q^r} \lambda. \quad (6)$$

Вычисленные по формуле (6) коэффициенты  $a$  и  $b$  для  $\text{Ne}^{23}$  представлены в табл. 2. Для сравнения утечки  $\text{Ne}^{23}$  и газообразных продуктов деления  $U^{235}$  следует ввести поправку на распад  $\text{Ne}^{23}$  за время движения по первому контуру.

Действительно, при расходе 1000 м<sup>3</sup>/ч период обращения теплоносителя в первом контуре составляет 85 сек, тогда удельная активность  $\text{Ne}^{23}$  на входе в активную зону в пять раз меньше, чем на выходе.

Для всех рассмотренных газообразных продуктов деления  $U^{235}$  удельные активности в баке реактора и насоса равны их средним удельным активностям в теплоносителе первого контура. Для  $\text{Ne}^{23}$  удельная активность в баке реактора в два раза больше средней удельной активности, а в баке насоса равна средней удельной активности. Таким образом, коэффициент, харак-

переходящий вероятность утечки неона в газовый объем реактора, был бы равен  $9,8 \cdot 10^{-2} \text{ ч}^{-1}$  для хорошо перемешанного теплоносителя, что совпадает с полученными выше величинами для ксенона и криптона.

Теплоноситель на границе с газовым объемом в насосе обеднен  $\text{Ne}^{23}$  в 85 раз по сравнению с циркулирующим теплоносителем в насосе. Это объясняется тем, что в реакторе и в насосе установки БОР-60 теплоноситель поступает к границе раздела с газовыми объемами по запылевому зазору небольшой величины. Высота теплоносителя в зазорах значительна и в насосе в два-три раза больше, чем в реакторе. Это уменьшает долю короткоживущих благородных газов, выходящих в газовый объем насоса.

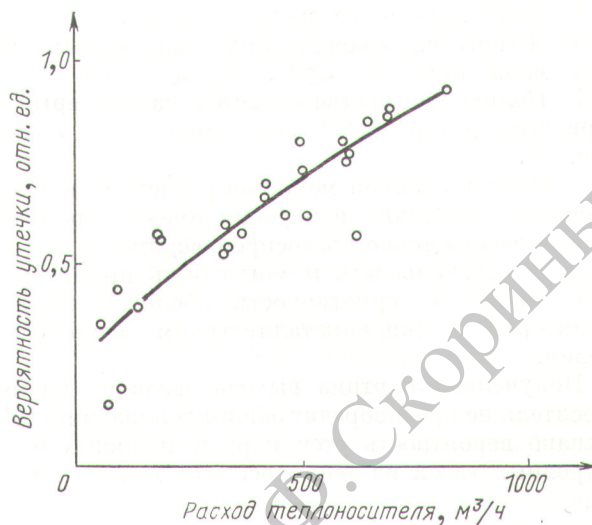
Полученные экспериментально величины удельных активностей  $\text{Ne}^{23}$  в газовом объеме реактора позволили по формуле (6) рассчитать зависимость коэффициентов, характеризующих вероятность утечки  $\text{Ne}^{23}$ , от расхода теплоносителя (см. рисунок). С увеличением расхода вероятность утечки растет в результате лучшего обмена теплоносителя в зазорах. Увеличение температуры приводит к уменьшению вероятности утечки в газовый объем реактора.

При отсутствии захвата пузырьков газа теплоносителем из газовых объемов, что следует из решения уравнений (1) с учетом экспериментальных данных и рассмотрения конструктивных особенностей реактора и насоса, возможно оценить количество аргона в натрии. После перекрытия газовой линии, соединяющей газовой объем реактора и насоса, активность  $\text{Ar}^{41}$  в газовом объеме насоса не уменьшалась. Это свидетельствует о том, что аргон выходит в газовый объем насоса из теплоносителя (активацией аргона в газовом объеме насоса можно пренебречь). Тогда, принимая коэффициент, характеризующий вероятность утечки аргона из теплоносителя в газовый объем насоса, равным соответствующему коэффициенту для криптона и ксенона, получаем по формуле (4)  $C_i(\text{Ar}^{41}) = 1,25 \cdot 10^9 \text{ сек}^{-1}$ .

Поступление  $\text{Ar}^{41}$  в теплоноситель обусловлено активацией в реакторе  $\text{Ar}^{40}$ , растворенного в теплоносителе (поступлением в теплоноситель  $\text{Ar}^{41}$  при растворении газа можно пренебречь). В таком случае по формуле

$$N(\text{Ar}^{40}) = \frac{c_i(\text{Ar}^{41})}{\Phi \sigma},$$

(где  $\Phi$  — поток нейтронов в реакторе,  $\text{см}^{-2} \cdot \text{сек}^{-1}$ ;  $\sigma$  — сечение реакции  $\text{Ar}^{40}(n, \gamma) \text{Ar}^{41}$ ,  $\text{см}^2$ ) можно



Зависимость коэффициента, характеризующего вероятность утечки  $\text{Ne}^{23}$  в газовый объем реактора, от расхода теплоносителя в первом контуре (температура теплоносителя  $220^\circ \text{C}$ ).

определить количество аргона в теплоносителе. На реакторе БОР-60 экспериментально было найдено произведение  $\Phi \sigma$  для реакции  $\text{Na}^{23}(n, \gamma) \text{Na}^{24}$  и пересчитано для реакции  $\text{Ar}^{40}(n, \gamma) \text{Ar}^{41}$  по отношению сечений этих реакций для соответствующего спектра нейтронов. Оценка показала, что количество аргона в натриевом теплоносителе при средней температуре  $400^\circ \text{C}$  равно  $4 \cdot 10^{-6}$  вес. %.

В экспериментах по исследованию влияния работы холодной ловушки окислов на изотопный состав благородных газов не обнаружено увеличения активности долгоживущих газов при ее выключении, как в работе [4]. Это свидетельствует о том, что предшественники ксенонов — иоды — находятся преимущественно на поверхностях конструкционных материалов и оболочках твэлов.

Изложенное выше позволяет сделать следующие выводы:

1. При достигнутом 3%-ном выгорании тяжелых ядер в активной зоне отсутствуют негерметичные твэлы, а уровни активности благородных газов определяются начальным загрязнением первого контура горючим ( $1,2 \cdot 10^{-9} \text{ г } \text{U}^{235}/\text{см}^2$ ).

2. Захват теплоносителем пузырьков газа из газовых объемов установки БОР-60 маловероятен.

3. Для всех радиоактивных благородных газов с  $T_{1/2} > 10 \text{ мин}$  среднее время пребывания в теплоносителе одинаково и составляет  $\sim 8 \text{ ч}$ .

4. Доля выходящих из теплоносителя в газовые объемы короткоживущих благородных газов мала (для  $T_{1/2} < 10 \text{ мин}$  не более 3%).

5. Количество растворенного в натрии аргона при температуре  $400^\circ\text{C}$  составляет около  $4 \cdot 10^6$  вес. %.

6. Используемая методика расчета и методы спектрометрических измерений имеют хорошую практическую точность, воспроизводимость, высокую чувствительность и могут быть применены для контроля герметичности оболочек твэлов реакторов с жидкометаллическим теплоносителем.

Полученная картина выхода газов из теплоносителя не противоречит общим положениям [5], однако вероятность утечки радиоактивных благородных газов из теплоносителя может значи-

тельно различаться для разных реакторов [4,6] в зависимости от их конструктивных особенностей.

Поступила в Редакцию 1/II 1972 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. А. И. Лейпунский и др. «Атомная энергия», 21, вып. 6, 450 (1966).
2. А. Е. Карелин, Б. Н. Ковердяев. Там же, 28, вып. 2, 179 (1970).
3. В. И. Поляков, Ю. В. Чечеткин. Там же, 31, вып. 2, 139 (1971).
4. И. А. Ефимов и др. Там же, 26, вып. 6, 544 (1969).
5. G. Keilholtz, G. Battle. Nucl. Safety, 9 (6), 494 (1968).
6. И. А. Ефимов, Ю. К. Куликов, В. С. Филонов. «Атомная энергия», 26, вып. 5, 463 (1969)

## ПОРЯДОК ДЕПОНИРОВАНИЯ СТАТЕЙ

Депонирование статей осуществляется или по просьбе авторов, или по решению редакционной коллегии журнала.

В журнале печатаются подробные аннотации статей, а полные тексты хранятся в редакции в течение пяти лет и высылаются читателям по их требованию наложенным платежом. Объем аннотации не должен превышать 2 стр. машинописного текста, а объем депонируемого текста — 12 стр. В отдельных случаях в аннотацию можно включать рисунок, таблицу, основные формулы и т. п. (уменьшив соответственно объем текстового материала аннотации).

Депонированные статьи являются научными публикациями и учитываются при защите диссертаций.

Статьи, представленные для депонирования, должны быть окончательно обработаны авторами и пригодны для фотографического воспроизведения (первый экземпляр), в связи с чем необходимо соблюдать следующие правила их подготовки.

1. Текст следует печатать на машинке с жирной черной лентой через два интервала на одной стороне белой односортной бумаги форматом  $21 \times 30 \text{ см}$  с полями сверху, слева и снизу не менее  $3 \text{ см}$  и справа  $1 \text{ см}$ . При перепечатке текста на первой странице оригинала необходимо отступать на  $10 \text{ см}$  сверху (место для клише «Атомная энергия»). Никакие поправки чернилами или карандашом над словами не допускаются. Исправления выполняются путем вклеивания.

2. Необходимо вписывать формулы тушью или черными чернилами; разметку формул в тексте (подчеркивание красным или синим карандашом и т. д.) делать не следует.

3. Рисунки необходимо выполнять на ватманской бумаге или на кальке, наклеивать их на стандартные форматные страницы и помещать в конце статьи, после таблиц и списка литературы. Каждый рисунок следует снабжать подрисуночной подписью. Рисунки должны быть достаточно отчетливыми для фотографического воспроизведения. Включение в рукопись тоновых рисунков не допускается в связи с трудностью их копирования. В необходимых случаях тоновые рисунки выполняется штриховым методом.

4. Допускается в виде исключения печатать отдельные (большие) таблицы на неформатных листах (вклейках).

5. Все страницы рукописи (включая приложение) должны быть пронумерованы (первой страницей считается титульный лист, на нем цифра «1» не ставится, на следующей странице проставляется цифра «2» и т. д.). Порядковый номер печатается в середине верхнего поля страницы.

6. Первый экземпляр рукописи должен быть подписан автором в конце статьи.

В случае несоблюдения указанных правил оформления статей рукописи возвращаются авторам.

Копии текстов депонированных статей рассылаются читателям по их запросам без ограничений. При оформлении заказа на тексты необходимо указывать регистрационный номер статьи, который помещен в конце аннотации. Советским читателям копии высылаются наложенным платежом; цена одной копии 40 коп.

Заказы направлять в редакцию журнала по адресу: 101876, Москва, Центр, ул. Кирова, 18, тел. 223-51-89.