

УДК 621.039.526:539.16.08

Радиоактивность в первом контуре быстрого реактора БОР-60

Кизин В. Д., Лисицын Е. С., Поляков В. И., Чететкин Ю. В.

Существуют различные мнения о возможности работы АЭС с дефектными * твэлами, о необходимости очистки теплоносителя и газа от радиоактивных нуклидов, способах очистки. Исследования, проведенные на реакторе БР-5 [1], а также опыт работы БОР-60 позволили выявить основные источники радиоактивности и определить их влияние на условия эксплуатации оборудования.

Особенности БОР-60. Все основное оборудование первого контура (насос, теплообменник, арматура) размещено в двух боксах. Оборудование второго (натрий) и третьего (вода — пар) контуров не имеет биологической защиты. Конструкция насосов, теплообменников, запорной и регулировочной арматуры позволяет при необходимости ремонта их извлекать и дезактивировать выемные детали. Газовые полости реактора и насосов заполнены аргоном (общий объем $\sim 3,5$ м³) при давлении 0,12—0,14 МПа. Температура натрия на выходе из реактора при мощности реактора 60 МВт равна 530—550 °С, максимальная тепловая нагрузка 1,1 кВт/см² (0,5 кВт/см). В твэлах достигнуто выгорание свыше 13% по тяжелым атомам. Часть времени реактор эксплуатировали с дефектными твэлами, число которых к концу кампаний достигало 0,1—1% загрузки.

Радиоактивность во время работы. Во время работы реактора на мощности радиационная обстановка в большинстве помещений первого контура определяется γ -излучением ²⁴Na. Его

концентрация на 3—4 порядка выше концентрации остальных долгоживущих нуклидов в теплоносителе. Мощность экспозиционной дозы около трубопровода первого контура достигает 18 Р/с. В местах периодического обслуживания оборудования (приводы вентиля, электродвигатели насосов, газовые линии первого контура и т. п.) она не превышала 0,5 мкР/с.

Радиоактивность продуктов деления в газовых полостях реактора и насосов зависит от числа дефектных твэлов в активной зоне и определяется в основном радиоизотопом ¹³³Xe (табл. 1). Суммарная радиоактивность газов достигала при наибольшем числе дефектных твэлов 800—1200 Ки. Концентрация радиоактивных газообразных продуктов деления (ГПД) в газовой полости насоса на порядок ниже, чем в реакторе.

На АЭС при нормальной эксплуатации реактора отсутствовали протечки радиоактивных газов и аэрозолей в производственные помещения. Основным источником газовой и аэрозольной радиоактивности в выбросах АЭС являлась активация воздуха, охлаждающего биологическую защиту реактора. Выброс ⁴¹Ar составляет 15—20 Ки/сут. Радиоактивность выбросов аэрозолей не превышала 10^{-3} Ки/сут (²⁴Na, ⁵¹Cr, ⁵⁹Fe, ⁵⁶Mn, ¹²²Sb, ⁶⁵Zn).

Накопление радиоактивности. Радиоактивность нуклидов в теплоносителе на поверхности оборудования измеряли γ -спектрометрическим методом через 10—20 сут после остановки реактора (табл. 2).

В период работы с герметичной активной зоной радиоактивность теплоносителя определяли активацией теплоносителя, коррозионных

* Твэл, оболочка которого потеряла герметичность в процессе облучения.

Радиоактивность нуклидов в газовой полости реактора, отн. ед.*

Таблица 1

Параметр	¹³³ Xe	^{135m} Xe	¹³⁵ Xe	⁸⁵ Kr	⁸⁸ Kr	⁸⁷ Kr	⁸⁵ Kr	⁴¹ Ar
Период полураспада	5,27 сут	15,6 мин	9,2 ч	4,4 ч	2,8 ч	76 мин	10,76	1,83 ч
Радиоактивность, отн. ед.	1	0,01	0,10	0,006	0,005	0,003	0,001	0,006

* За единицу принята радиоактивность ¹³³Xe.

Радиоактивность теплоносителя

Таблица 2

Время измерения	Концентрация радионуклидов, мкКи·кг ⁻¹						
	²² Na	^{110m} Ag	⁶⁵ Zn	¹³¹ I	¹³⁷ Cs	¹³⁶ Cs	¹³⁴ Cs
Ноябрь 1970	49	16	10	—	0,1	—	0,2
Февраль 1971	73	24	12	—	0,1	—	0,2
Сентябрь 1971	190	90	14	0,4	0,1	—	0,3
Март 1972	250	110	16	11	210	15	13
Август 1972	330	140	20	15	1 800	—	160
Март 1973	350	160	—	46	3 600	400	330
Октябрь 1973	420	190	—	2800	8 500	620	720
Март 1974	480	220	—	—	19 000	—	1700
Август 1974	580	230	—	—	21 000	—	1740
Февраль 1975	590	200	—	—	20 000	—	1800
Февраль 1975	590	200	—	—	5 200 *	—	530 *
Июль 1975	620	200	10	—	9 300	—	700
Июль 1975	620	200	10	—	2 200 *	—	180 *

* Уменьшение радиоактивности произошло в результате экспериментов по очистке теплоносителя.

примесей и примесей натрия — ²²Na, ^{110m}Ag, ⁶⁵Zn [2].

В период работы реактора с дефектными твэлами основной вклад в радиоактивность теплоносителя вносят нуклиды ¹³⁷Cs, ¹³¹I, ¹³⁶Cs, ¹³⁴Cs, образующиеся непосредственно при делении ядер топлива или при последующей активации ¹³³Cs(n, γ)¹³⁴Cs, ¹³⁵Cs(n, γ)¹³⁶Cs [3]. Радиоактивность других нуклидов в теплоносителе ¹⁰⁶Ru, ¹²⁴Sb, ¹²⁵Sb значительно меньше, чем ²²Na.

После появления первых дефектных твэлов радиоактивность ¹³⁷Cs и ¹³⁴Cs значительно возросла и в конце 1974 г. она превысила радиоактивность всех остальных долгоживущих нуклидов в 30—40 раз. Отношение концентраций ¹³⁴Cs и ¹³⁷Cs в этот период равнялось 0,07—0,1.

Радионуклиды ¹³⁶Cs и ¹³¹I имеют относительно небольшие периоды полураспада, поэтому их радиоактивность в теплоносителе зависит от времени, прошедшего от момента разгерметизации оболочек твэлов до измерений, а для ¹³¹I еще и от режима работы холодной ловушки, в которую иод выводится практически полностью.

Радиоактивность в холодной ловушке. По принятой технологии холодную ловушку окислов включали на очистку натрия первого контура периодически. Концентрацию кислорода в натрии поддерживали на уровне $(1,2 \div 2,5) \times 10^{-6}$ г/г Na, концентрация углерода в натрии равнялась $(1 \div 4) \cdot 10^{-4}$ г/г Na. Средний расход натрия через ловушку составлял 0,1%

расхода через активную зону реактора. Время работы ловушки в различные периоды составляло 10—50% времени работы реактора.

Измерение радиоактивности в холодной ловушке и сопоставление с радиоактивностью в теплоносителе показало, что в ней накапливаются почти все радионуклиды. В 1973—1974 гг. в холодной ловушке было найдено, Ки: ¹³¹I, 200—1000; ¹³⁷Cs 130; ¹³⁴Cs 9; ⁶⁰Co 3, а ⁶⁵Zn, ^{110m}Ag, ⁵⁴Mn, ⁹⁵Nb, ¹²⁴, ¹²⁵Sb, ²²Na по 0,1—1,0 Ки каждого. Мощность экспозиционной дозы γ-излучения достигала 0,6 мР·с⁻¹ на расстоянии 2 м от поверхности ловушки.

Радионуклиды цезия в ловушке накапливались с момента появления дефектных твэлов (февраль 1972—март 1973 гг.). Отношение радиоактивности в ловушке контура для цезия и других радионуклидов в этот период оставалось неизменным. Ниже приведено отношение радиоактивности в холодной ловушке БОР-60 к радиоактивности в контуре, %:

²² Na	5,4	¹³⁷ Cs	30
^{110m} Ag	4,3	¹³¹ I	99
⁶⁵ Zn	86	⁶⁰ Co	21
¹³⁴ Cs	32	¹²⁴ Sb	22
¹³⁶ Cs	30		

В дальнейшем цезий практически не накапливался в холодной ловушке, несмотря на значительное возрастание его концентрации в натрии. В 1974—1975 гг. доля цезия в ловушке составляла ~20%. Последующие измерения показали, что в зависимости от содержания примесей (в основном С, Н) эффективность ловушки может достигать 90%. Этим, вероятно, объясняется различие результатов, полученных на других реакторах. Например, на БР-5 эффективность улавливания цезия 90% [1].

Радиоактивность продуктов деления и коррозии в отложениях. Изучение распределения в контуре коррозионных продуктов ⁶⁰Co и ⁵⁴Mn и продуктов деления ¹⁴⁰Ba — ¹⁴⁰La и ⁹⁵Nb показало, что эти нуклиды находятся в основном на поверхности трубопроводов и оборудования. В табл. 3 приведены результаты измерений радиоактивности в отложениях на поверхности теплообменника и трубопроводов до и после теплообменника. За последние 3 года практически не накапливались в контуре радионуклиды коррозионного происхождения. Это свидетельствует о низкой скорости коррозии и, возможно, о накоплении кобальта в недоступных для измерения местах. Всего в контуре БОР-60 находится 20—30 Ки продуктов коррозии ⁶⁰Co и ⁵⁴Mn.

Распределение радиоактивности в поверхностных отложениях первого контура, мКи/м²

Таблица 3

Нуклид	Время измерений, г	Трубопровод от реактора до теплообменника	Теплообменник	Трубопровод после теплообменника
⁶⁰ Со	Март 1972	1,0	7,0	3,8
	Август 1972	1,3	3,3	7,0
	Март 1973	2,0	14—60	7,0
	Октябрь 1973	2,3	Не измерено	—
	Март 1974	2,1	Не измерено	3,0
	Август 1974	1,4	5,4—110	4,0
	Февраль 1975	0,6	Не измерено	1,9
	Июль 1975	3,1	25—50	2,9—9,7
⁵⁴ Mn	Март 1972	2,4	3,4	7,6
	Август 1972	3,3	4,0	6,7
	Март 1973	4,9	8—33	10
	Октябрь 1973	< 4	Не измерено	23
	Март 1974	2,0	Не измерено	12
	Август 1974	1,8	5,3—3,2	40—43
	Февраль 1975	0,9	Не измерено	19
	Июль 1975	3,7	4,5—11	20—60
⁹⁵ Nb	Март 1972	3,9	4	2
	Август 1972	47	3,7	48
	Март 1973	21	36—190	96
	Октябрь 1973	26	Не измерено	40
	Март 1974	3	Не измерено	15
	Август 1974	< 2	4	2
	Февраль 1975	2	Не измерено	1,6
	Июль 1975	6,4	10	10
¹⁴⁰ Ba — ¹⁴⁰ La	Март 1972	0,1	0,05	0,15
	Август 1972	4,3	12	175
	Март 1973	10	15—130	130
	Октябрь 1973	0,8	Не измерено	27
	Март 1974	13	Не измерено	180
	Август 1974	0,5	0,5—1,3	2,4—48
	Февраль 1975	1,3	Не измерено	14
	Июль 1975	< 2	5	8—10

Концентрация ⁶⁰Со имеет наиболее высокие значения на поверхности в теплообменнике (в 5—50 раз выше, чем в трубопроводах до теплообменника). В трубопроводах после теплообменника концентрация ⁶⁰Со в 2—3 раза, а ⁵⁴Mn примерно в 10 раз выше, чем до теплообменника.

Радиоактивность продуктов деления ⁹⁵Nb и ¹⁴⁰Ba в отложениях зависит от числа дефектных твэлов, находящихся в активной зоне в период, предшествовавший измерениям. При числе дефектных твэлов 0,1—0,2% всей загрузки вклад γ -излучения отложений продуктов деления (без радионуклидов цезия) в мощность дозы от трубопровода становится примерно равным

вкладу излучения радионуклидов коррозионного происхождения.

Продукты деления, как и продукты коррозии, распределены по контуру неравномерно. Концентрация ⁹⁵Nb в отложениях на трубопроводах после теплообменника обычно в 2—5, а ¹⁴⁰Ba в 10—20 раз выше, чем в трубопроводах до теплообменника.

Согласно оценке, в поверхностных отложениях находится 4—10% радиоактивности ¹³⁷Cs в теплоносителе.

Неравномерность отложения радионуклидов по длине трубопроводов и в оборудовании подтверждается также результатами измерения мощности дозы (рис. 1). Кроме отличия мощностей доз от трубопроводов до и после теплообменника можно отметить также изменение мощности дозы по длине трубопроводов в 1,5—2 раза, некоторое возрастание ее около загибов и значительное увеличение около магнитного расходомера.

На рис. 2—4 представлены результаты измерения распределения радионуклидов по высоте основных элементов оборудования.

Характерными особенностями изменения мощности дозы вдоль теплообменника являются резкое ее возрастание в верхней части, максимум в области между верхней и средней труб-

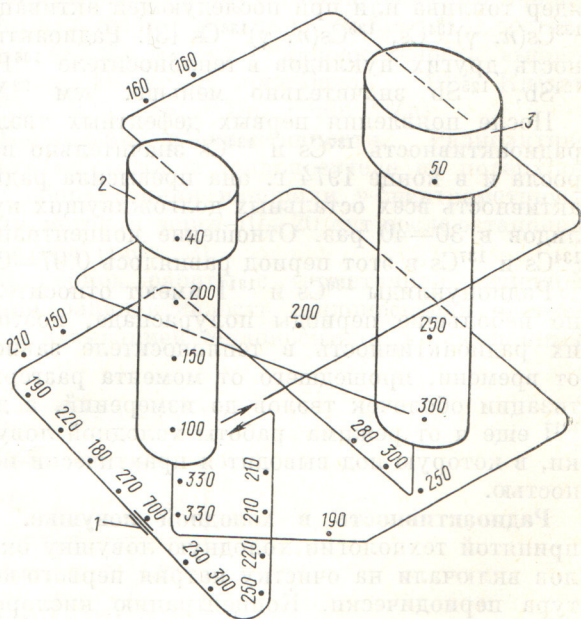


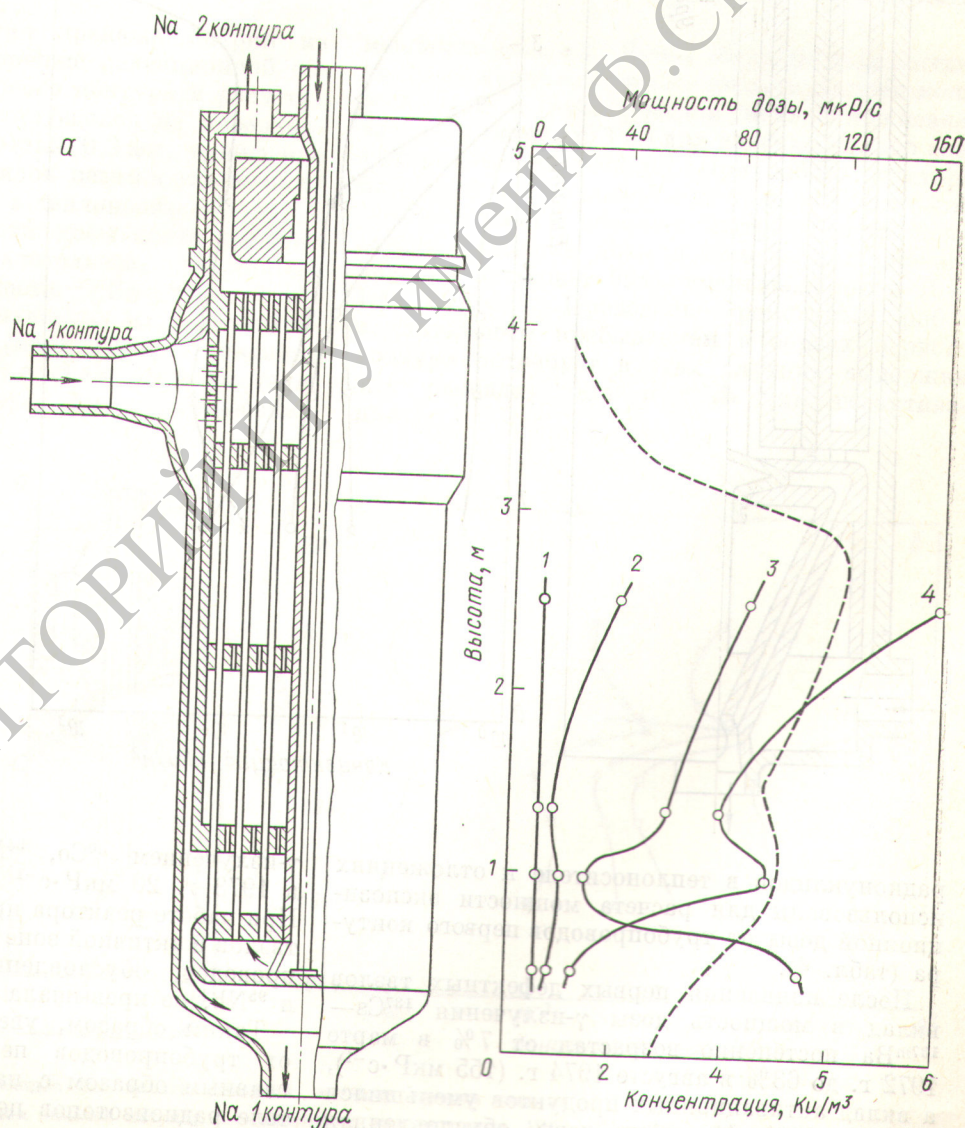
Рис. 1. Распределение γ -излучения по трубопроводам и оборудованию в боксе первого контура: 1 — магнитный расходомер; 2 — промежуточный теплообменник; 3 — насос

ными досками и плато в нижней части теплообменных трубок. По всей теплопередающей части мощность дозы определяется γ -излучением ^{60}Co . Концентрация ^{54}Mn по высоте теплообменника меняется незначительно.

На поверхности выемной части насоса большая доля радиоактивности ^{95}Nb , ^{140}Ba — ^{140}La и ^{60}Co сосредоточена в зоне рабочего колеса, а радионуклидов цезия — в области колебания уровня натрия при работе насоса. Радиоактивность нуклидов в отложениях на поверхности выемной части, расположенной в газовой полости, незначительна и обусловлена радионуклидами цезия.

В холодной ловушке окислов все идентифицированные радионуклиды ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{124}Sb , ^{125}Sb , ^{60}Co распределены неравномерно по высоте с максимумом перед первой фильтрующей зоной и в ней. Измерения выше 170 см не проводили, однако вид распределений по высоте ловушки и идентичность слоев позволяют предполагать наличие аналогичного максимума в районе первой зоны второго фильтрующего слоя. В этих слоях особенно значительно концентрирование цезия.

Анализ полей γ -излучения от трубопроводов первого контура и влияние дренажа теплоносителя. Результаты измерений концентрации

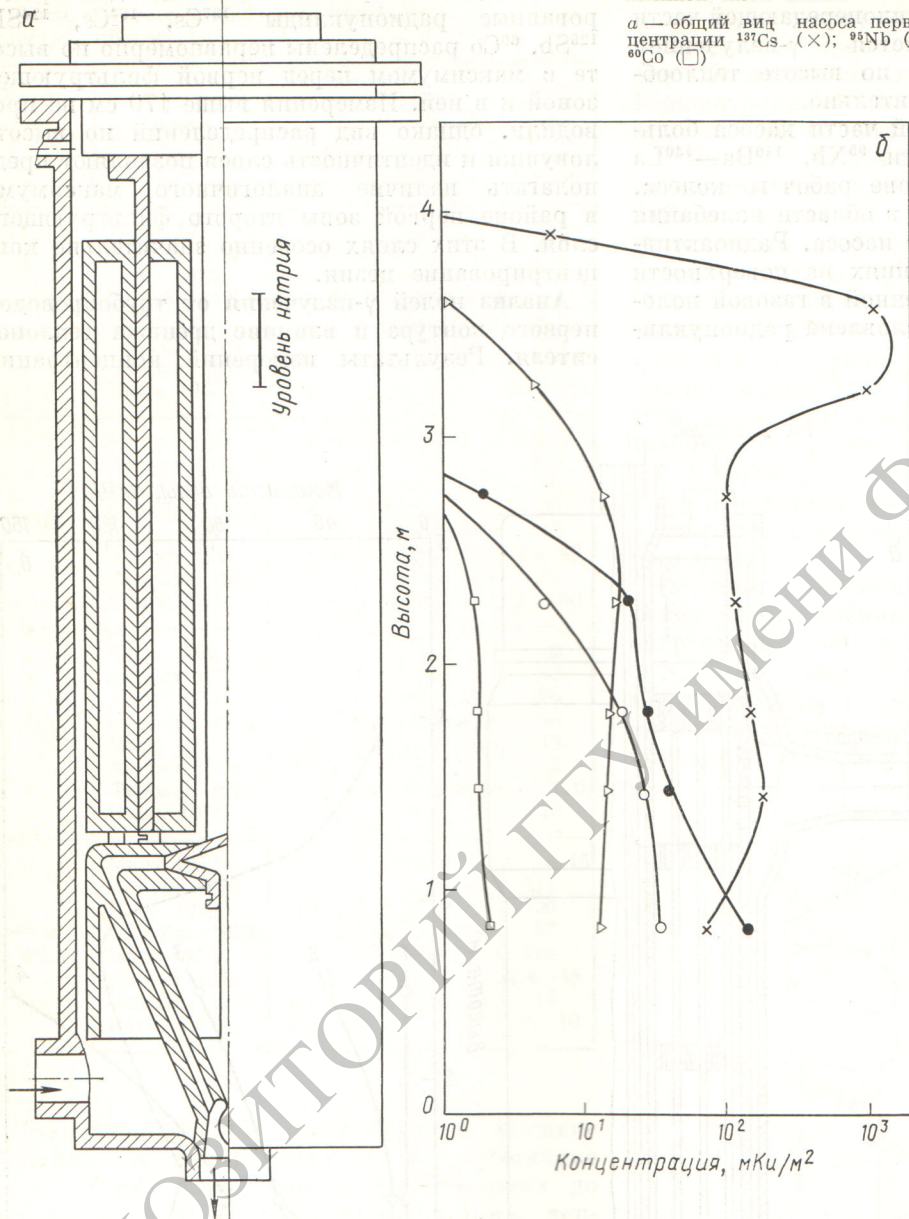


Р и с. 2. Мощность экспозиционной дозы и концентрация радионуклидов по высоте промежуточного теплообменника:

а — общий вид промежуточного теплообменника; б — изменение мощности дозы и концентрации ^{22}Na (1); ^{54}Mn (2); ^{137}Cs (3); ^{60}Co (4) по высоте теплообменника; — — — — мощность дозы

Р и с. 3. Распределение радионуклидов в отложениях по высоте выемной части насоса:

а — общий вид насоса первого контура; б — изменение концентрации ^{137}Cs (×); ^{95}Nb (●); $^{140}\text{Ba} - ^{140}\text{La}$ (○); ^{54}Mn (△); ^{60}Co (□)



радионуклидов в теплоносителе и отложениях использовали для расчета мощности экспозиционной дозы от трубопроводов первого контура (табл. 4).

После появления первых дефектных твэлов вклад в мощность дозы γ -излучения ^{137}Cs — ^{137m}Ba постепенно возрастал от 7% в марте 1972 г. до 63% в августе 1974 г. ($155 \text{ мкР} \cdot \text{с}^{-1}$), а вклад активационных продуктов уменьшился с 84 до 15%. Мощность дозы, обусловленная

γ -излучением ^{60}Co , ^{54}Mn и ^{110m}Ag , достигла в 1973 г. $20 \text{ мкР} \cdot \text{с}^{-1}$ и далее не изменялась. При работе реактора примерно с 1% дефектных твэлов в активной зоне мощность дозы от трубопроводов, обусловленная γ -излучением ^{140}La и ^{95}Nb , не превышала $70 \text{ мкР} \cdot \text{с}^{-1}$.

Таким образом, увеличение мощности дозы от трубопроводов первого контура связано главным образом с накоплением в теплоносителе радиоизотопов цезия.

Мощность экспозиционной дозы от трубопровода за теплообменником (через 15 сут после остановки реактора)

Таблица 4

Дата	Суммарная мощность дозы от трубопровода, мкР/с	Вклад γ -излучения отдельных радионуклидов в мощность дозы от трубопровода, %							
		^{22}Na	^{110m}Ag	^{137}Cs — ^{137m}Ba	^{134}Cs	^{60}Co	^{54}Mn	^{140}Ba — ^{140}La	^{95}Nb — ^{95}Zr
Март 1972	20/10	37/1	19/0,5	7/2	2/0,5	16/48	12/34	2/5	5/9
Август 1972	100/120	8/0,1	4/0,1	9/2	3/0,5	6/8	2/3	55/69	13/17
Март 1973	130/115	8/0,1	5/0,1	25/5	8/1	5/8	2/4	31/54	16/28
Октябрь 1973	140/70	9/0,2	5/0,1	48/16	13/5	5/14	5/16	6/19	9/30
Февраль 1974	180/140	5/0,1	5/0,1	55/19	12/4	2/5	1/5	20/64	2/6
Август 1974	240/70	7/0,2	3/0,1	63/37	15/7	2/9	3/16	4/20	3/11

Примечание. В знаменателе даны значения для трубопровода после дренажа натрия.

При оценке влияния дренажа натрия из трубопроводов на изменение радиационной обстановки в боксах первого контура в расчетах принимали толщину остающейся на поверхности пленки теплоносителя 0,2 мм, отношение радиоактивности нуклидов цезия в отложениях к радиоактивности их в теплоносителе 0,1.

Уменьшение мощности дозы после дренажа теплоносителя тем значительнее, чем меньше величина радиоактивности ^{140}Ba — ^{140}La , ^{95}Nb . Так, при небольших значениях их радиоактивности в отложениях (март 1972 г., октябрь 1973 г., август 1974 г.) дренаж теплоносителя, согласно расчету, привел бы к уменьшению

мощности дозы в 2—3 раза. Если же радиоактивность их велика, то после дренажа натрия мощность дозы от трубопроводов уменьшается незначительно (март 1973 г.) или даже несколько возрастает (август 1972 г.). При работе реактора примерно с 1% дефектных твэлов в активной зоне с помощью дренажа натриевого теплоносителя мощность дозы в помещениях первого контура не может быть уменьшена ниже 70—100 мкР·с⁻¹. Проведение ремонтных работ с длительным пребыванием в боксах первого контура потребует в этих случаях выдержки для распада ^{140}Ba и ^{95}Nb или дезактивации.

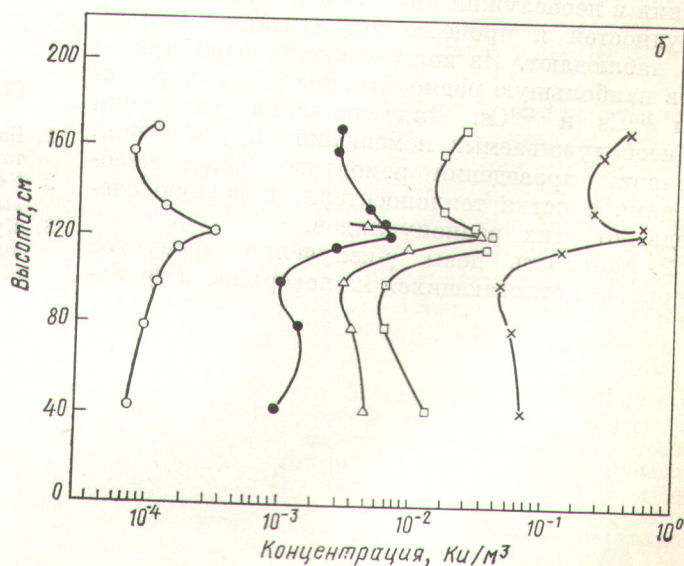
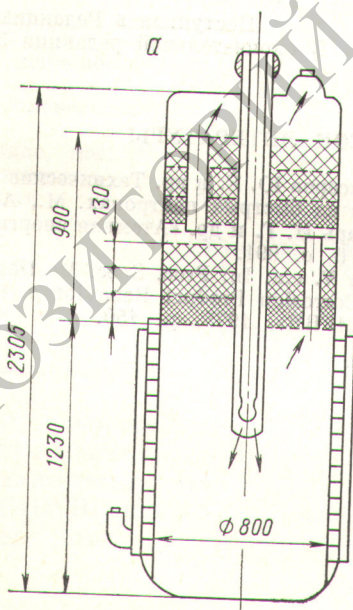


Рис. 4. Распределение радионуклидов по высоте холодной ловушки окислов натрия:

а — общий вид холодной ловушки окислов натрия; б — изменение концентрации ^{124}Sb (O); ^{60}Co (●); ^{134}Cs (Δ); ^{125}Sb (□)

Радиационная обстановка в помещениях БОР-60 при ремонтных и перегрузочных работах. Радиационную обстановку в боксах первого контура после останова реактора определяет γ -излучение долгоживущих радионуклидов ^{137}Cs , ^{95}Nb , ^{140}Ba — ^{140}La и др. За шесть лет эксплуатации реактора в боксах первого контура не отмечены протечки натрия и появление радиоактивных аэрозолей и газа. Мощность экспозиционной дозы достигала 300—500 мкР·с⁻¹ (в некоторых местах 1 мР·с⁻¹).

В центральном зале мощность экспозиционной дозы составляет 0,1—0,8 мкР·с⁻¹, а в период перегрузок топлива до 2—25 мкР·с⁻¹. Уровень локальных загрязнений поверхностей оборудования и помещений не превышал 400 β -частиц/(мин·см²) и был обусловлен радионуклидами ^{137}Cs , ^{95}Nb , ^{141}Ce , ^{60}Co . Радиоактивность в аэрозолях определяется радионуклидами цезия, концентрация их не превышала 1·10⁻⁷ Ки·м⁻³. Средний медианный аэродинамический диаметр аэрозолей равен 3—8 мкм.

За весь период эксплуатации установки средняя доза облучения одного человека из персонала 0,3—0,5 бэр/год. Вклад β -излучения в суммарную дозу облучения не больше 9%.

Выводы.

1. Длительная работа реактора с 0,1—1% дефектных твэлов значительно повышает γ -излучения в необслуживаемых помещениях. Других трудностей в процессе эксплуатации БОР-60 не наблюдают. Из долгоживущих радионуклидов наибольшую радиоактивность имеют изотопы ^{137}Cs и ^{134}Cs . Для снижения излучения в необслуживаемых помещениях и улучшения условий проведения ремонтных работ необходима очистка теплоносителя, в первую очередь, от этих радионуклидов.

2. Мощность дозы γ -излучения продуктов коррозии, отлагающихся на поверхности трубо-

проводов, не превышает мощности дозы ^{22}Na . Радиоактивность продуктов коррозии ^{60}Co , ^{54}Mn и продуктов деления ^{140}Ba — ^{140}La и ^{95}Nb сопоставимы при работе реактора с 0,1—0,2% дефектных твэлов.

3. Продукты деления и коррозии распределены по контуру неравномерно. Концентрация ^{95}Nb и ^{60}Co в отложениях на трубопроводах после теплообменника в 2—5 раз, а ^{140}Ba и ^{54}Mn в 10—20 раз больше, чем до теплообменника. Преимущественное отложение ^{60}Co происходит в теплообменнике.

4. Холодная ловушка окислов быстро и практически полностью удаляет из натриевого теплоносителя радионуклиды иода. Доля радиоактивности нуклидов цезия в холодной ловушке, составляет 20—90% суммарной радиоактивности в первом контуре, сурьмы и кобальта 20—30%.

5. Радиоактивность в газовых полостях реактора может достигать 1000 Ки по ^{133}Xe при работе с 1% дефектных твэлов. Однако вследствие герметичности системы это не создает каких-либо трудностей для эксплуатации.

6. Радиационная обстановка на АЭС БОР-60 за весь период эксплуатации была удовлетворительной. Выброс радиоактивных газов (^{41}Ar) с АЭС даже при отсутствии специальных систем очистки не превышал 5000 Ки/год.

Поступила в Редакцию 24/VI 1977 г.
В окончательной редакции 30/VIII 1977 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Багдасаров Ю. Е. и др. Технические проблемы реакторов на быстрых нейтронах. М., Атомиздат, 1969.
2. Кобзарь И. Г. и др. «Атомная энергия», 1972, т. 33, вып. 6, с. 991.
3. Kysin V. e. a. In: Proc. Spec. Meeting IAEA «Fission and Corrosion Product Behavior in Primary Circuits of LMFBR», 1975, p. 150.