

гию с соблюдением критерия безопасного перемещения элементов кладки, т.е. работоспособность активной зоны реактора при разрушении бандажей не будет нарушена. Дальнейшая эксплуатация реакторов с разрушенными бандажами потребует уже принятия дополнительных мер по укреплению кладок для предотвращения их прогрессирующего искривления под действием термомеханических нагрузок.

Бандажи, опоясывающие кладки промышленных уран-графитовых реакторов, расположены в недоступных для проведения осмотра местах. Тем не менее путем измерения наведенной γ -активности в 1987 г. был экспериментально зафиксирован факт разрушения в период работы на мощности одного центрального бандажа реактора АВ-3 [6]. При этом кладка не потеряла свою работоспособность и проработала еще 3 года до его полного останова. На основании исследований деформации кладки было отмечено увеличение скорости прироста стрелы прогиба колонн в направлении разрушенных стяжек бандажа. После анализа результатов измерений было высказано предположение о разрушении еще двух бандажей, близлежащих к центральному разрушившемуся бандажу. На основе расчетов баланса сил в кладке и установленного факта разрушения бандажей во время капитального ремонта 1988 г. в реактор АВ-3 было установлено 180 натяжных устройств, суммарное осевое усилие натяжения которых составило 1500 кН.

Таким образом, прогнозы о безопасности последствий разрушения бандажей и сохранения кладками реакторов типа АВ своей работоспособности нашли экспериментальное подтверждение на действующем реакторе.

Расчетно-экспериментальные исследования формоизменения кладок легли в основу обоснования и обеспечения их безопасности при эксплуатации промышленных уран-графитовых реакторов, проработавших около 40 лет до их останова. Реактор А был остановлен и выведен из эксплуатации 16 июня 1988 г., АВ-1 — 12 августа 1989 г., АВ-2 — 14 июля 1990 г., АВ-3 — 1 ноября 1990 г. Обследования реакторов, выполненные незадолго до их останова, показали, что графитовая кладка, основные металлоконструкции, системы управления, защиты и контроля реакторов находятся в работоспособном состоянии [2].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Швеченко В.И. Первый реакторный завод (страницы истории). Озерск, 1998.
2. Бурдаков Н.С. Некоторые страницы из истории развития технологии промышленных уран-графитовых реакторов. Озерск, 1996.
3. Гончаров В.В., Бурдаков Н.С., Виргильев Ю.С. и др. Действие облучения на графит ядерных реакторов. М.: Атомиздат, 1978.
4. Клименков В.И. Поведение графита в кладках ядерных реакторов. — Атомная энергия, 1961, т. 10, вып. 5, с. 447—460.
5. Березюк А.И., Дубровин И.Ю., Клестов Р.А. и др. Ячейка уран-графитового реактора для контроля искривления графитовой кладки. Авт. свид. СССР № 245507, 1986.
6. Мокров Ю.Г., Смирнов О.Б., Цвелев М.П. Способ определения местоположения бандажей, стягивающих кладку уран-графитового реактора. Авт. свид. СССР № 286091, 1988.

Поступила в Редакцию 11.02.02

УДК 621.039.532.2

СОСТАВ И СОДЕРЖАНИЕ ПРИМЕСЕЙ В ГРАФИТЕ ПРОМЫШЛЕННЫХ РЕАКТОРОВ

Бушуев А.В., Зубарев В.Н., Прошин И.М. (МИФИ)

Одна из главных причин радиоактивного загрязнения реакторного графита — активация примесей, количество которых зависит от происхождения сырья и технологии изготовления графитовых изделий. Несмотря на малую концентрацию (суммарная массовая доля не превышает $10^{-2}\%$), в результате длительного нейтронного облучения — 30 лет для графитовых блоков кладки — возникают высокие уровни наведенной

активности. Чистый реакторный графит получают путем очистки исходного сырья или использования наиболее чистых материалов, термодиффузионной очистки в процессе графитации, сочетания термодиффузионной очистки с химической с помощью галогенов (хлора, фтора), фреонов или солей галогенов. Цель такой очистки — снижение концентрации поглощающих нейтроны примесей до уровня, обеспечивающего сечение поглощения тепловых нейтронов графитом 4,5—4,8 мб.

Для оценок и прогнозирования наведенной активности необходима информация о содержании примесей, активация которых приводит к образованию долгоживущих радионуклидов. Для средне- (годы, десятилетия) и долгосрочного прогнозирования (сотни, тысячи лет) радиоактивности отработавшего графита необходимы данные о содержании в нем Li, N, Cl, Fe, Co, Ni, Cs, Eu, Th, U и др. Исследования, предпринятые в разных организациях [1—4], не дали достаточной и точной информации о примесях. В одних случаях были получены данные только об образовании относительно короткоживущих нуклидов, в других — о верхних уровнях возможной концентрации отдельных примесей. Образцы, как правило, выбирали из небольшого числа изделий, что не позволяло сравнивать содержание примесей в разных марках графита и делать общие выводы. Эти обстоятельства привели к выводу о необходимости новых исследований для пополнения сведений и уточнения данных о примесях. Особенно важны такие исследования для графита блоков и втулок РБМК, в которых доминирующий вклад активации примесей в радиоактивное загрязнение.

Содержание радионуклидов определяли сравнением наведенной активности образцов графита и образцов-компараторов, содержащих известное количество исследуемых элементов и одновременно облученных в ИРТ МИФИ.

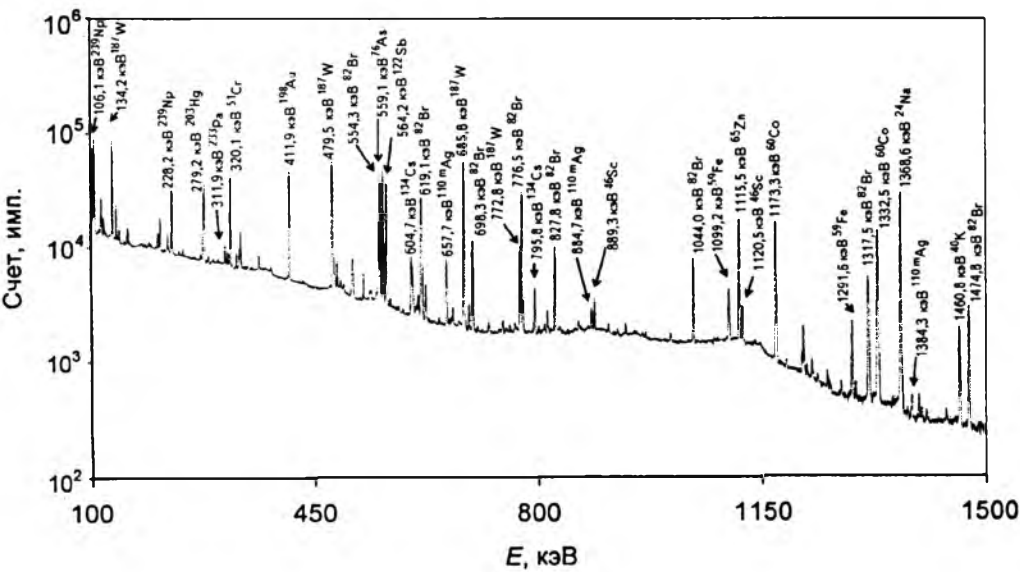
Для количественного определения содержания примесей были отобраны образцы блоков реакторов И-1 и АДЭ-3 и втулок реакторов И-1 и ЭИ-2 Сибирского химического комбината. После проведения серии предварительных исследований в целях получения более представительной выборки был проведен дополнительный отбор образцов из двух разных блоков реакторов И-1 и ЭИ-2, из двух разных втулок ЭИ-2 и втулки И-1, цилиндра («карандаша») ЭИ-2. Цилиндры использовали для заполнения отверстий в графитовых блоках отражателя. Кроме того, были отобраны образцы из двух графитовых блоков и втулки РБМК.

Образцы в форме кернов высверливали полый фрезой из массива блоков и втулок, затем разрезали на отдельные таблетки. Из каждого типа графитовых изделий было отобрано по несколько кернов. Полученные образцы имели диаметр 8 мм, толщину ~ 2 мм. Для исключения возможного вторичного загрязнения поверхности их помещали при загрузке в ИРТ в полые цилиндрические контейнеры, изготовленные также из реакторного графита.

В качестве компараторов использовали аттестованные детекторы из наборов АКН и ДКН, образцы сравнения на основе формальдегидных смол или специально изготовленные смеси из исследуемого элемента и вещества-разбавителя. Количество исследуемого элемента в компараторе составляло 10^{16} — 10^{19} ядер, что соответствовало количеству примесного элемента в образце графита. При изготовлении компараторов в качестве разбавителя использовали алюминий, свинец, свинцово-висмутовый сплав и др., причем вещество-разбавитель предварительно проверяли на отсутствие соответствующего примесного элемента.

Наборы образцов графита и компараторов облучали в вертикальном экспериментальном канале ИРТ МИФИ. Плотность потока нейтронов в месте облучения образцов составляла около $2 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$, продолжительность облучения и высвечивания выбирали с учетом периода полураспада исследуемых и возможных мешающих нуклидов. Спектры γ -излучения образцов графита и компараторов измеряли на установке, состоящей из коаксиального детектора из особо чистого германия БДЕГ, устройства СУ-03П, встроенной в компьютер платы анализатора АЦП 8-K2 (см. рисунок).

К настоящему времени исследовано содержание в образцах графита 16 элементов: Cl, Sc, Cr, Fe, Co, Zn, As, Se, Ag, Sb, Cs, W, Au, Hg, Th, U (табл. 1).



Спектр излучения образца графита из блока реактора И-1 через 7 сут, облученного в течение 48 ч в ИРТ

Т а б л и ц а 1. Примесные элементы, компараторы и условия измерения

Примесный элемент	Компаратор	Реакция	Энергия γ -излучения, кэВ
Cl	Соль NH_4Cl , образец сравнения	$^{37}\text{Cl}(n, \gamma)^{38}\text{Cl}$	1642,4, 2166,8
Sc	Образец сравнения	$^{45}\text{Sc}(n, \gamma)^{46}\text{Sc}$	889,3, 1120,5
Cr	Образец сравнения	$^{50}\text{Cr}(n, \gamma)^{51}\text{Cr}$	320,1
Fe	Детектор из набора АКН	$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$	1099,2, 1291,6
Co	Детектор из набора АКН, образец сравнения	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	1173,2, 1332,5
Zn	Фольга	$^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$	1115,5
Se	Образец сравнения	$^{74}\text{Se}(n, \gamma)^{75}\text{Se}$	264,6, 400,6
As	Арсеназа II	$^{75}\text{As}(n, \gamma)^{76}\text{As}$	559,1
Ag	Сплав Pb+Ag	$^{109}\text{Ag}(n, \gamma)^{110m}\text{Ag}$	884,7, 1384,3
Sb	Образец сравнения	$^{123}\text{Sb}(n, \gamma)^{124}\text{Sb}$	1691,0
Cs	Соль CsCl , образец сравнения	$^{133}\text{Cs}(n, \gamma)^{134}\text{Cs}$	604,7, 795,8
W	Детектор из набора АКН	$^{186}\text{W}(n, \gamma)^{187}\text{W}$	479,6, 685,7
Au	Детектор из набора АКН	$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	411,9
Hg	Сплав Bi+Pb+Hg	$^{202}\text{Hg}(n, \gamma)^{203}\text{Hg}$	279,2
Th	Делящийся радиатор, образец сравнения	$^{232}\text{Th}(n, \gamma)^{233}\text{Th}(\text{Pa})$	311,9
U	Детектор из набора ДКН	$^{238}\text{U}(n, \gamma)^{239}\text{U}(\text{Np})$	106,1

Содержание хлора определяли по реакции $^{37}\text{Cl}(n, \gamma)^{38}\text{Cl}$, в результате которой образуется ^{38}Cl с периодом полураспада 37,2 мин. В природной смеси изотопов ^{37}Cl содержится 22,2%. В соответствии с этим был выбран следующий режим эксперимента: продолжительность облучения и высвечивания по 60 мин, время — от 5 до 30 мин. При определении других примесей продолжительность облучения составила 48 ч, время высвечивания от 3 до 7 сут, время измерения от 2 до 18 ч. Всего к настоящему времени исследовали 117 образцов графита (табл. 2). Диапазон содержания примесей ограничен наибольшей и наименьшей концентрацией по всем исследованным образцам данного типа графита. Число измерений (приведено в скобках) составляло от 1 до 22, погрешность

каждого отдельного измерения от 5 до 15%. Содержание примесей в нескольких образцах графита было определено специалистами Гиредмета методом масс-спектрометрии (табл. 3).

Т а б л и ц а 2. Содержание примесей в графите промышленных реакторов и РБМК, % по массе

Элемент	И-1		ЭИ-2			АДЭ-3	РБМК	
	Блок	Втулка	Блок	Втулка	Цилиндр	Блок	Блок	Втулка
Cl, 10^{-4}	0,8—9,4 (8)	4,2—5,5 (3)	0,6—4,0 (4)	2,0—2,6 (3)	—	—	2,9—4,0 (4)	3,1—10,4 (2)
Sc, 10^{-8}	0,2—2,6 (8)	2,2—4,6 (2)	1,1—4,2 (3)	0,26 (1) (3)	1,0—1,8 (2)	0,1—0,2 (2)	0,4—30 (4)	0,5—3,9 (3)
Cr, 10^{-6}	0,3—2,2 (7)	1,6—4,4 (2)	0,8—3,4 (3)	1,3—5,0 (2)	4,42 (1) (2)	0,1—0,2 (2)	0,1—0,5 (2)	0,05—2,6 (3)
Fe, 10^{-4}	0,8—8,1 (11)	1,1—26 (3)	6,5—15 (3)	2,9—40 (5)	1,1—14 (4)	2,5—14 (6)	2,2—94 (4)	2,6—58 (4)
Co, 10^{-7}	0,7—17 (22)	1,7—31 (11)	3,6—38 (7)	3,3—78 (11)	3,5—26 (4)	1,2—13 (11)	2,1—63 (11)	0,9—53 (9)
Zn, 10^{-6}	0,6—5,2 (12)	2,1—7,3 (5)	5,4—7 (4)	4,9—18 (5)	3,9 (2)	5,6—13 (4)	52—172 (4)	84—87 (4)
As, 10^{-5}	1,2—3,0 (13)	0,5—3,7 (5)	0,3—5,1 (4)	0,4—0,8 (5)	—	2,6—3,3 (4)	1,0—1,1 (4)	0,42—0,45 (4)
Se, 10^{-7}	0,7—6,4 (9)	1,5—3,3 (2)	2,6—9,5 (4)	2,2 (1) (4)	9,1—10,6 (2)	1,5—8,1 (2)	0,3—1,4 (3)	0,5—2,5 (3)
Ag, 10^{-5}	0,1—2,5 (6)	0,05— 0,8 (2)	1,59 (2)	0,1—0,7 (3)	—	0,2 (4)	0,31—0,39 (4)	0,2—0,6 (4)
Sb, 10^{-6}	0,3—2,3 (9)	0,9—1,2 (2)	0,4—5,5 (4)	1,5—1,9 (2)	0,1—0,2 (2)	0,3—2,1 (2)	0,2—1,1 (4)	0,1—2,7 (4)
Cs, 10^{-7}	0,4—10 (18)	0,4—4,0 (4)	1,2—7,6 (4)	0,1—5,9 (3)	1,4—2,0 (2)	1,4—5,3 (5)	0,2—6,4 (5)	0,2—4,9 (6)
W, 10^{-4}	0,1—10 (12)	0,1—13 (5)	4,8—15 (4)	0,1—34 (5)	9,8 (1)	0,02—0,6 (4)	0,8—4,0 (4)	2,0—2,1 (4)
Au, 10^{-7}	0,01—0,8 (14)	0,04— 1,3 (5)	0,6—1,6 (4)	0,02—5,3 (5)	1,9 (1)	0,02—0,2 (4)	0,2—1,5 (4)	0,68—0,73 (4)
Hg, 10^{-6}	0,7—13 (11)	0,8—5,3 (4)	8,4—15 (4)	0,9—11 (5)	8,1 (1)	1,8—4,2 (4)	2,5—2,9 (4)	3,2—4,1 (4)
Th, 10^{-7}	0,1—4,3 (18)	0,2—8,7 (7)	0,4—11 (7)	0,2—5,1 (7)	0,27—0,30 (2)	0,1—0,2 (5)	0,3—4,8 (7)	0,3—8,4 (7)
U, 10^{-6}	0,3—4,6 (10)	0,3—6,4 (3)	0,2—1,2 (4)	0,2—4,2 (6)	1,6 (1)	0,5—18 (4)	1,0—13 (4)	4,5—11 (2)

Т а б л и ц а 3. Содержание примесей в графите промышленных реакторов и РБМК в сравнении с данными масс-спектрометрических измерений, % по массе

Элемент	Настоящая работа	Масс-спектрометрические измерения
Li	—	$4 \cdot 10^{-7}$
N	—	$(0,5-70)10^{-4}$
Cl	$(0,6-10)10^{-4}$	$(1-7)10^{-5}$
Ca	—	$(0,04-7)10^{-4}$
Fe	$(0,8-94)10^{-4}$	$(0,04-2)10^{-4}$
Co	$(0,7-78)10^{-7}$	$< 2 \cdot 10^{-6}$
Ni	—	$(0,1-2)10^{-5}$
Cs	$(0,4-10)10^{-7}$	$< 2 \cdot 10^{-5}$
Eu	—	$< 3 \cdot 10^{-5}$
Th	$(0,1-11)10^{-7}$	$< 2 \cdot 10^{-5}$
U	$(0,2-18)10^{-6}$	$< 2 \cdot 10^{-5}$

Анализируя экспериментальные результаты, можно сделать несколько выводов. Содержание примесей в блоках разных промышленных реакторов и цилиндре из отражателя ЭИ-2 примерно одинаково (диапазон изменения концентрации перекрывается). Концентрация примесей во втулках И-1 и ЭИ-2 также сходная. Для блока АДЭ-3 характерен меньший разброс содержания примесей. Максимальная концентрация кобальта во втулках в 2—2,5 раза выше, чем в блоках. Верхний предел содержания железа во втулках также выше, чем в блоках, в 2,5—3 раза. Эти два элемента принадлежат к одной группе примесей, находящихся в графите в виде твердых растворов внедрения. Содержание других исследованных примесей в блоках и втулках существенно не различается. Наблюдается в 1,5—20 раз большая концентрация железа и кобальта в графите РБМК по сравнению с промышленными реакторами. Для цинка это различие еще более значительно — 10—100 раз. Содержание урана также выше. По остальным элементам значительной разницы не наблюдается.

Сравнение полученных данных с результатами работ [1—4] показало следующее: уран. Начальное содержание в кладках намного меньше, чем предполагалось ранее [1] (до $10^{-5}\%$). Это подтверждается результатами наблюдений, которые показали малое содержание продуктов деления и актиноидов в отработавших графитовых блоках. Данные о содержании урана $(0,15—17,8)10^{-6}\%$ находятся в соответствии с данными работы [2] — $(0,3—10)10^{-6}\%$;

кобальт. Его содержание $(0,07—7,8)10^{-6}\%$ согласуется с данными работы [3] $(0,9—3,4)10^{-6}\%$. Более широкий разброс концентрации может быть обусловлен большим объемом выборки. Кобальт обнаружен в 86 образцах из 18 изделий;

хлор. Его содержание составило $(0,6—10,4)10^{-4}\%$, по результатам масс-спектрометрических измерений — $(0,1—0,7)10^{-4}\%$. В работе [3] для графита марки ГР приводится концентрация $3,2 \cdot 10^{-3}\%$, определенная нейтронно-активационным методом. Таким образом, полученное значение в 10 раз меньше, чем в работе [3], и в 10 раз больше, чем данные масс-спектрометрии, и близко к его содержанию в АGR — $4 \cdot 10^{-4}\%$ [4];

железо. Результаты экспериментов дали диапазон изменения его концентрации в графите $(0,8—94)10^{-4}\%$. С учетом разброса результаты согласуются с данными масс-спектрометрии — $(0,04—2)10^{-4}\%$ и работы [3] — $(0,8—1,7)10^{-4}\%$;

цезий. В работе [2] концентрация цезия принята равной $10^{-4}\%$, в экспериментах $(0,4—10)10^{-7}\%$. Таким образом, разница составляет 100—1000 раз.

Обобщая данные о содержании 16 примесных элементов в графите промышленных реакторов и РБМК, можно отметить, что в семи случаях (Cr, Fe, Co, Zn, As, Sb, W) подтверждены имевшиеся данные, в трех случаях (Cl, Ag, Au) обнаружено их расхождение и необходимость коррекции, данные о шести примесях (Sc, Se, Cs, Hg, Th, U) получены впервые или служат важным дополнением к ранее известным малочисленным данным.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Буланенко В.И., Фролов В.В., Николаев А.Г. Радиационные характеристики графита снятых с эксплуатации уран-графитовых реакторов. — Атомная энергия, 1996, т. 81, вып. 4, с. 304—306.
2. Расчетно-экспериментальное исследование радиационного состояния облученного графита канальных водо-графитовых реакторов. Отчет НИКИЭТ № 030-145-5232, 1997.
3. Виргильев Ю.С. Примеси в реакторном графите и его работоспособность. — Атомная энергия, 1998, т. 84, вып. 1, с. 7—15.
4. Преображенская Л.Б., Семеновская И.В., Спиридонова Г.А. Проблемы снятия с эксплуатации уран-графитовых реакторов. Вып. 2. Оценка накопления радионуклидов в графитовом замедлителе и распределение их по активной зоне газографитового реактора G-2 (Франция). М., ЦНИИатоминформ, 1989.