**Вестник НЯЦ РК** выпуск 2, июнь 2020

УДК 621.039.74: 621.039.7.13

# ОЦЕНКА ЦЕЛОСТНОСТИ ЗАЩИТНЫХ БАРЬЕРОВ ДОЛГОВРЕМЕННОГО ХРАНИЛИЩА ОЯТ РЕАКТОРА БН-350

## Тимонова Л.В., Ляхова О.Н., Айдарханов А.О., Абдигамитов Б.А.

## Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

Одним из видов обращения с ОЯТ является долговременное контейнерное хранение отработавшего ядерного топлива. С целью осуществления комплексной радиационной оценки и возможности выполнения долгосрочных прогнозных оценок радиационной ситуации на территории хранения ОЯТ необходимо осуществлять контроль за эманацией радиоактивных газов в атмосферу.

Газообразные отходы являются одним из видов радиоактивных отходов, образующихся при работе объектов атомной энергетики и промышленности. Превышение их содержания в воздухе может свидетельствовать о радиоактивных выбросах атомных электростанций или медицинских учреждений, ядерных авариях и взрывах, а также о радиационных авариях, к которым можно отнести разгерметизацию контейнеров хранения ОЯТ. К газообразным радиоактивным отходам относятся газы, содержащие в своем составе радионуклиды: <sup>41</sup>Ar, <sup>135</sup>Xe, <sup>85</sup>Kr, <sup>131</sup>I, <sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C и др., которые зачастую могут образовываться и поступать в воздушную среду в количествах, превышающих уровни, установленные нормами радиационной безопасности [1].

В данной статье представлены результаты исследований объемной активности радиоактивных газов в воздухе на территории долговременного хранилища ОЯТ реактора БН-350.

## Введение

Отработавшее ядерное топливо (ОЯТ) – это топливо, отработавшее цикл в реакторе, которое содержит в себе невыгоревший уран и трансурановые элементы. В связи с этим, в тепловыделяющих сборках продолжают происходить ядерные превращения, которые сопровождаются повышенным радиоактивным излучением, а также постоянным (слабо снижающимся с течением времени) выделением тепла.

Методы обращения с отработанным ядерным топливом могут быть различны в стратегических подходах и по набору используемых технологий. Однако все они объединяются общими принципами, связанными с вопросами безопасности.

На современном этапе, в соответствии с тенденциями развития ядерных и радиационных технологий, при организации долговременного хранения ОЯТ используются в основном технологии контейнерного хранения [2].

Общий принцип «сухого» контейнерного хранения ОЯТ заключается в том, что отработавшее топливо хранится в герметичных металлических корзинах, заполненных инертным газом, обычно гелием, а сами корзины располагаются в корпусе защитного контейнера. Прочная конструкция корпуса контейнера служит в качестве радиационной защиты, а также предотвращает повреждение металлической корзины. Контейнер может быть, как бетонный, так и металлический. Теплоотвод осуществляется за счет естественной конвекции окружающего воздуха [3].

Хранилище ОЯТ, согласно стандартам МАГАТЭ, является ядерной установкой. Соответственно, требования к безопасности почти такие же, как и к безопасности АЭС [3].

Главное условие долговременного хранения ОЯТ – соблюдение критериев ядерной безопасности и ра-

диационной защиты согласно требованиям национальных нормативно-законодательных документов по защите персонала, населения и окружающей среды на протяжении всего проектного времени функционирования хранилища в режимах нормальной эксплуатации и нарушений нормальной эксплуатации, включая проектные аварии [2].

Цель работы заключалась в проведении оценки целостности защитных барьеров долговременного хранилища ОЯТ реактора БН-350.

# МЕТОДОЛОГИЯ ПРОВЕДЕНИЯ РАБОТ

Так как топливом для работы реактора БН-350 служила двуокись урана (UO<sub>2</sub>), то основными радиоактивными газами для исследования в воздухе являлись короткоживущие благородные газы: продукт активации аргон (<sup>41</sup>Ar) и продукты деления урана (<sup>85m</sup>Kr, <sup>87</sup>Kr, <sup>88</sup>Kr, <sup>135</sup>Xe). Дополнительно, для контроля радиоактивности воздушной среды, проведены исследования по содержанию тритированных газообразных продуктов, которые могут быть представлены в воздухе в виде окисленных (HTO) и газообразных (HT) соединений трития.

## Аппаратурно-методическое обеспечение

Для достижения поставленной цели использовалось соответствующее аппаратурно-методическое обеспечение. Пробы воздуха отбирались криогенным устройством «Пурга» (Казахстан) (рисунок 1) и коллектором трития «OS1700» (ORTEC, США) (рисунок 2). Анализ образцов, полученных при помощи установки «Пурга», проводился на гамма-спектрометрической установке фирмы Canberra на базе многоканального амплитудного анализатора «InSpector 2000» с коаксиальным германиевым детектором «GC-1518». Пробы воздуха, отобранные коллектором трития, анализировались жидкосцинтилляцион-



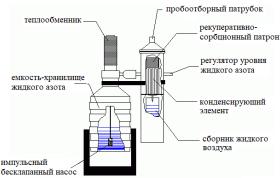


Рисунок 1. Пробоотборное устройство «Пурга»



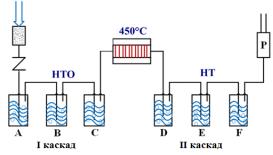


Рисунок 2. Пробоотборное устройство коллектор трития «OS1700»

ным методом на бета-спектрометре «SL-300» (Hidex,  $\Phi$ инляндия).

Криогенное устройство *«Пурга»* предназначено для отбора проб газоаэрозольных форм различных

радиоактивных и нерадиоактивных примесных фракций, содержащихся в воздухе. Устройство позволяет в процессе пробоотбора получать как совокупную пробу, содержащихся в воздухе газоаэрозольных примесей, так и дифференцированную пробу. В последнем случае, часть компонент примесей в аэрозольной и относительно легкосорбируемой газовой формах задерживается на различных композиционных элементах сорбционно-фильтрующей насадки. При этом благородные и другие трудносорбируемые газы равномерно распределяются по всему объему сжиженного воздуха. Принцип действия установки основан на способности воздуха сжижаться в том же составе основных компонентов на поверхности, охлаждаемой ниже температуры кипения анализируемого воздуха, имеющего состав: азот  $(N_2) - 78\%$ , кислород  $(O_2) - 21\%$  ( $T_{\text{кип}} = -193$  °C), но не ниже температуры кристаллизации кислорода. При испарении сжиженного воздуха более высокую скорость испарения имеет  $N_2$  и меньшую –  $O_2$ . Скорость испарения изотопов криптона (Kr) незначительна по сравнению со скоростью испарения кислорода, а скорость испарения ксенона (Хе) еще ниже. Регулярный долив в испаряющуюся пробу жидкого азота поддерживает испарение криптона (не говоря уже о ксеноне) на минимальном уровне, что подтверждается многочисленными исследованиями, проводившимися на открытых пусках реактора [4].

Пробоотборное устройство коллектор трития «OS1700» предназначено для выделения из воздуха тритированных газообразных продуктов, которые могут содержаться в нем в виде окисленных (НТО) и газообразных (НТ) соединений трития [5]. Согласно технологической схеме, воздушный поток, поступая в коллектор трития, проходит последовательно через 2 каскада, каждый из которых состоит из 3-х поглотительных емкостей, заполненных жидким поглотителем, в данном случае – дистиллированной водой. В первом каскаде емкостей осуществляется последовательное очищение воздуха от тритированных паров воды, в связи с чем, происходит выделение из воздуха окисленных соединений трития - НТО. Далее, очищенный поток воздуха проходит через палладиевую спираль, нагретую до 450 °C, где происходит окисление всех газообразных форм трития – НТ, и их последующее поглощение водой во втором каскаде поглотительных емкостей.

Выбор оборудования для отбора проб воздуха основан на результатах экспериментальных исследований, проведенных во время пуска реактора ИВГ.1М при мощности 6 МВт. В ходе проведения экспериментов обеспечивалась подача воздуха в пробоотборное оборудование из трубопровода вентиляционной системы реактора, расположенной в подреакторном помещении. Топливом для реактора ИВГ.1М служит обогащенный уран, поэтому при проведении экспериментальных работ предполагалось определение продуктов его деления.

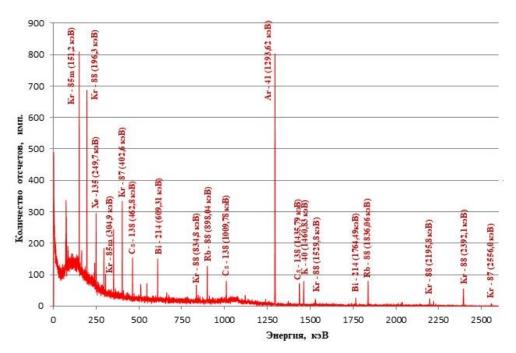


Рисунок 3. Гамма-спектр пробы воздуха

На рисунке 3 представлен гамма-спектр, показывающий набор газообразных продуктов, зафиксированных в ходе пусковых работ на исследовательском реакторе.

В результате проведенных работ на примере реактора ИВГ.1М в ходе пусковых работ зафиксированы короткоживущие благородные радиоактивные газы: <sup>41</sup>Ar (до 9 300 Бк/м<sup>3</sup>), <sup>85m</sup>Kr (360 Бк/м<sup>3</sup>), <sup>87</sup>Kr  $(800 \text{ Бκ/m}^3)$ ,  $^{88}$ Kr  $(1320 \text{ Бκ/m}^3)$ ,  $^{135}$ Xe  $(120 \text{ Бκ/m}^3)$ . Προисхождение <sup>41</sup>Ar объясняется наличием в воздухе изотопов природного <sup>40</sup>Ar, который вследствие нейтронной активации преобразуется в <sup>41</sup>Ar. Радиоактивные газы <sup>85m</sup>Kr, <sup>87</sup>Kr, <sup>88</sup>Kr, <sup>135</sup>Хе являются продуктами деления <sup>238</sup>U, используемого в качестве реакторного топлива. 88 Rb образуется в результате распада 88 Кг. Первоначально образующейся 88 Кг, проникающий через стенки реактора в подреакторное помещение, распадается с образованием <sup>88</sup>Rb. В определенный момент времени после начала пуска содержание <sup>88</sup>Rb начинает увеличиваться до тех пор, пока происходит накопление <sup>88</sup>Kr. Его содержание остается постоянным еще некоторое время после завершения пуска, пока  $^{88}$ Kr полностью не распадется.  $^{\hat{1}38}$ Cs является продуктом распада <sup>138</sup>Хе. Радионуклиды <sup>214</sup>Рb и <sup>214</sup>Вi являются продуктами распада естественного радионуклида <sup>222</sup>Rn, содержащегося в воздухе рабочей зоны. Радионуклид <sup>40</sup>К входит в состав измерительной стеклянной колбы и в состав стен зданий объекта КИР «Байкал-1». Так же в ходе исследований зафиксированы соединения трития (HTO – 20 Бк/м<sup>3</sup> и  $HT - 3 \text{ Бк/м}^3$ ). Источником образования трития могла являться нейтронная активация ряда легких элементов, присутствующих в компонентах топлива и других реакторных материалах.

Полученные результаты экспериментальных исследований дают основание считать, что выбранное и подготовленное аппаратурно-методическое обеспечение может успешно использоваться для оценки эманации радиоактивных газов в месте хранения ОЯТ реактора БН-350.

# Экспериментальные работы на территории долговременного хранения ОЯТ реактора БН-350

Для контроля возможного выхода продуктов деления с контейнеров в окружающую среду проведены исследования радиоактивного загрязнения воздуха на площадке ДКХОЯТ БН-350. Исследовательские участки располагались между контейнерами, содержащими ОЯТ.

На каждом участке проводился отбор проб воздуха с последующим проведением лабораторных анализов на определение содержания радиоактивных газообразных продуктов. Выбор участков отбора проб проведен с учетом расположения контейнеров и расстояния между ними для возможности охвата всей исследуемой территории. Всего выбрано и исследовано 15 участков. Из них 1 участок являлся мониторинговым, на котором отбор проб воздуха производился в ходе пусковых работ реактора ИВГ.1М с целью оценки возможного вклада выбросов от реактора в воздух. На остальных 14 участках отбор проб производился вне пуска реактора. В связи с конструкцией пробоотборных устройств отбор проб воздуха производился на отметке 0,5 м от бетонного основания площадки.

Все пробы воздуха передавались на качественный и количественный анализ на содержание основных радиоактивных газов. Во избежание распада короткоживущих радиоактивных элементов пробы воздуха,

отобранные устройством «Пурга», анализировались γ-спектрометрическим методом анализа в течение 30 мин. после завершения отбора. Проведение γ-спектрометрического измерения осуществлялось на объекте КИР «Байкал-1». Время экспозиции для всех образцов составляло 1 ч.

#### Результаты экспериментальных работ

Перед проведением экспериментальных работ на территории хранения ОЯТ, для оценки вклада фона в помещении расположения  $\gamma$ -спектрометра проведены фоновые измерения воздуха во время пуска реактора и в межпусковой период. Для этого был произведен отбор проб воздуха устройством *«Пурга»* и проведены измерения в стеклянной колбе с сжиженным воздухом на  $\gamma$ -спектрометре.

По результатам  $\gamma$ -спектрометрического анализа видно, что в спектре наблюдаются гамма-линии, принадлежащим продукту распада  $^{222}$ Rn, а также линия, принадлежащая изотопу  $^{40}$ K (рисунок 4).

В ходе изучения фоновых образцов, отобранных в пусковой период, кроме указанных радионуклидов, также зафиксировано присутствие следов <sup>41</sup>Ar в воздухе (рисунок 5), который образуется в воздухе рабочей зоны в ходе пуска реактора.

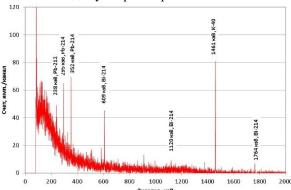


Рисунок 4. Гамма-спектр измерения фона (межпусковой период)

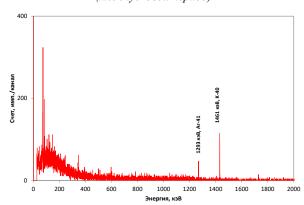


Рисунок 5. Гамма-спектр измерения фона (пусковой период)

По результатам измеренных фоновых проб с сжиженным воздухом рассчитаны и представлены в таблице средние значения МДА для радиоактивных газов и продуктов распада <sup>222</sup>Rn.

Таблица. Результаты расчета МДА для радиоактивных газов и продуктов распада <sup>222</sup>Rn

Радионуклид	Энергия ү-кванта, кэВ	Квантовый выход, %	МДА, Бк/м³
<sup>41</sup> Ar	1293,6	99,0	0,015
85m <b>Kr</b>	151,2	75,4	0,005
<sup>87</sup> Kr	402,6	49,6	0,390
<sup>88</sup> Kr	2392,1	34,6	0,580
<sup>135</sup> Xe	249,8	90,0	0,024
88Rb	1836,0	21,4	0,140
<sup>138</sup> Cs	1435	76,0	0,032
<sup>214</sup> Bi	609,3	46,3	0,014
<sup>214</sup> Pb	351,0	37,2	0,018

На территории хранения ОЯТ для исследований радиоактивных газов в воздухе как в ходе пуска, так и вне пуска реактора ИВГ.1М всего отобрано и проанализировано 39 проб воздуха. Из них отобрано криогенным устройством «Пурга» — 20 проб, коллектором трития «OS1700» — 19 проб.

На рисунках 6 и 7 представлен вид гамма-спектров, полученных при измерении проб воздуха, отобранных в пусковой и межпусковой период.

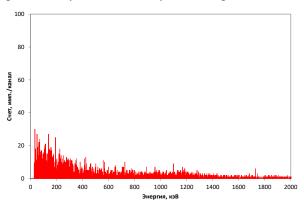


Рисунок 6. Гамма-спектр пробы воздуха (межпусковой период)

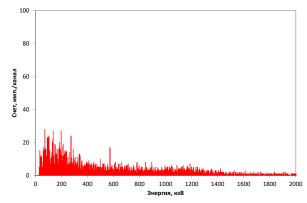


Рисунок 7. Гамма-спектр пробы воздуха (пусковой период)

В результате исследований, проведенных вблизи контейнеров, содержащих ОЯТ, численных значений объемной активности радиоактивных газов и соединений трития в воздушной среде не зафиксировано.

#### Выводы

В результате проведенных работ выявлено, что объемная активность радионуклидов в воздушной среде составила менее предела обнаружения используемого аппаратурно-методического обеспечения. Это говорит о том, что радиационное состояние вокруг контейнеров на отметке 0,5 м от бетонного основания площадки стабильное. Таким образом, на данный момент, можно сказать об отсутствии формирования радиоактивного загрязнения на исследуемой территории площадки ДКХОЯТ БН-350 и герметичности контейнеров за весь период эксплуатации.

Работы по оценке целостности защитных барьеров долговременного хранилища ОЯТ реактора БН-350 выполнены в рамках РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018—2020 гг., этап 04.03. «Разработка методики оценки эманации газов на площадке хранения ОЯТ реактора БН-350»

### Литература

- 1. Брылева В.А., Кузьмина Н.Д., Нарейко Л.М. Радиоактивные отходы АЭС //Информационный бюллетень. Серия: Атомная энергетика. -2010. -№ 10–11. С. 5. Режим доступа: http://sosny.bas-net.by/wp-content/uploads/2012/09/bul\_2010\_10\_11.pdf.
- 2. Брылева В.А., Войтецкая Е.Ф., Нарейко Л.М. Хранение отработавшего ядерного топлива на АЭС // Информационный бюллетень. Серия: Атомная энергетика. 2012. № 7–8. 8 с. Режим доступа: http://sosny.bas-net.by/wp-content/uploads/2012/12/bul\_2012\_7-8.pdf.
- 3. Teller M. О современном методе хранения отработавшего ядерного топлива. 2017. Режим доступа: https://habr.com/post/400511/.
- 4. Сергеев В.Ю., Ляхова О.Н. Применение криогенного пробоотборника «ПУРГА-К» для определения радиоактивных выбросов в атмосферу // Вестник НЯЦ РК. 2004. Вып.1. С. 69–74.
- 5. Тимонова Л.В., Ляхова О.Н., Турченко Д.В., Лукашенко С.Н. Оптимизация методики определения газообразного трития в воздушной среде // Семипалатинский испытательный полигон. Радиационное наследие и перспективы: тез. докл. VI Междунар. науч.-практ. конф., 24–26 сентября, 2014. Курчатов. С. 94–95. ISBN 978-601-7112-85-1.

# ЖН-350 РЕАКТОРЫНЫҢ ЯОҚ ҰЗАҚ МЕРЗІМДЕ САҚТАУ ҚОЙМАСЫНЫҢ ҚОРҒАНЫШ ТОСҚАУЫЛДАРЫНЫҢ БҮТІНДІГІН БАҒАЛАУ

Л.В. Тимонова, О.Н. Ляхова, А.О. Айдарханов, Б.А. Абдигамитов

КР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

ЯОҚ қолданудың бір түрі, пайдаланылған ядролық отынды ұзақ мерзімде контейнерде сақтау болып табылады. Кешенді радиациялық іске асыру мақсатында және ЯОҚ сақтау аумағындағы радиациялық ахуалға ұзақмерзімді болжамды бағалау жүргізу үшін радиоактивті газдардың атмосфераға эманациялануын бақылау қажет. Газ тәріздес қалдықтар, бұл атом энергетикасы мен өнеркәсіптің жұмысы нәтижесінде пайда болатын радиоактивті қалдықтардың бір түрі. Ауада олардың құрамынан асып кетуі, атом электр станцияларынан немесе медициналық мекемелерден, ядролық апаттар мен жарылыстардан, сонымен қатар ЯОҚ сақтайтын контейнерлердің герметизацияларының жойылуына қатысты радиациялық апаттардан кейін шығатын радиоактивті шығарындылардың орын алуын көрсетуі мүмкін. Газ тәрізді радиоактивті қалдықтарға құрамында келесі радионуклидтері бар газдар жатады: <sup>41</sup> Аг, <sup>135</sup> Хе, <sup>85</sup> Кг, <sup>131</sup> І, <sup>3</sup> Н, <sup>14</sup> С және басқалары, олар көп жағдайда радиациялық қауіпсіздік нормаларымен белгіленген деңгейден асатын мөлшерде ауаға түсіп, түзіле алады. Бұл мақалада, ЖН-350 реакторының ЯОҚ ұзақ мерзімде сақтау аумағындағы ауада орын алған радиоактивті газдардың көлемдік белсенділігінің нәтижелері келтірілген.

# ASSESSMNET OF INTEGRITY OF PROTECTIVE BARRIERS OF LONG-TERM STORAGE FACILITY OF BN -350 REACTOR FACILITY

L.V. Timonova, O.N. Lyakhova, A.O. Aidarkhanov, B.A. Abdigamitov

Branch «Institute of Radiation Safety and Ecology» RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

One of the ways of long-term handling spent nuclear fuel is storage of spent nuclear fuel in containers. For the purpose of complex radiological assessment and to make long-term prediction estimates of radiological situation possible at the territory of spent nuclear fuel storage facility the control over emanation of radioactive gases into atmosphere should be provided.

# ОЦЕНКА ЦЕЛОСТНОСТИ ЗАЩИТНЫХ БАРЬЕРОВ ДОЛГОВРЕМЕННОГО ХРАНИЛИЩА ОЯТ РЕАКТОРА БН-350

Gaseous wastes are one a kind of radioactive wastes resulting from operation of nuclear energy and industry facilities. And increase in their concentration in the air indicate radioactive wastes from nuclear power plants or medical institutions, nuclear accidents and explosions and also of radiation accidents, that can include seal failure of spent nuclear fuel storage containers. Gaseous radioactive wastes include gases, containing <sup>41</sup>Ar, <sup>135</sup>Xe, <sup>85</sup>Kr, <sup>131</sup>I, <sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C and other radionuclides, that can often be formed and enter air environment in amounts, exceeding the levels determined by the norms of radiation safety.

This paper provides results of researches of volumetric activity of gases in the air at the territory of spent nuclear fuel long-term storage facility of BN-350 reactor facility.