

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна



P16 - 6314

М.М.Комочков, Ю.Г.Тетерев

ЛАБОРАТОРИЯ ЯДЕРНЫХ ПРОБЛЕМ

АКТИВАЦИЯ ВОДЫ,

ОХЛАЖДАЮЩЕЙ УЗЛЫ СИНХРОЦИКЛОТРОНА

1972

P16 - 6314

1400/2 кр.

М.М.Комочков, Ю.Г.Тетерев

АКТИВАЦИЯ ВОДЫ,  
ОХЛАЖДАЮЩЕЙ УЗЛЫ СИНХРОЦИКЛОТРОНА

Направлено в АЭ

Объединенный институт  
атомной энергии  
БИБЛИОТЕКА

Усовершенствование синхроциклотрона ( $E_p = 680$  Мэв) Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ с целью увеличения интенсивности пучка протонов и вторичных частиц в несколько десятков раз привело к необходимости более точного установления степени радиационной опасности, обусловленной водой, охлаждающей детали и узлы ускорителя. Кроме того, важно знать при этом закономерности накопления и изменения радиоактивности воды. С целью получения такой информации нами было изучено содержание гамма-радиоактивных изотопов с временем жизни более 20 мин. в воде, охлаждающей узлы синхроциклотрона, которые подвергаются наиболее интенсивному облучению, а также измерено поле гамма-излучения и оценено его энергетическое распределение вблизи труб системы охлаждения. Исследования, наиболее близкие к нашим, были выполнены на линейном ускорителе электронов /1/.

### 1. Система охлаждения

Система охлаждения синхроциклотрона представляет собой замкнутый контур объемом  $\sim 36 \text{ м}^3$ , в котором имеется сообщение с атмосферой.

Ускоритель и система водообеспечения охлаждающего контура размещены в разных зданиях. Нагретая вода из корпуса, где размещен ускоритель, идет в корпус, где находится теплообменник и рециркуляционный насос, по 6 трубам диаметром 130 мм, которые служат одновременно резервным объемом.

Материалом для труб системы охлаждения служит медь, а рециркуляционный насос, компенсаторы длины труб и некоторые вентили сделаны из нержавеющей стали. Внутренняя поверхность медных труб составляет  $\sim 700 \text{ м}^2$ , поверхность стальных частей  $\sim 3 \text{ м}^2$ .

Система заполняется дистиллированной водой. Вследствие испарения воды и незначительной утечки раз в месяц трубы приходится пополнять дистиллированной водой объемом  $12 \text{ м}^3$ . Дистиллированную воду получают путем конденсации пара из котельной. Минимальное удельное сопротивление охлаждающей воды  $- 25 \text{ ком/см}^3$ .

## 2. Спектральный состав и мощность доз вблизи системы охлаждения

С помощью спектрометра с кристаллом  $\text{NaJ(Tl)}$  был измерен энергетический спектр  $\gamma$ -квантов от труб охлаждающего контура при работающем и неработающем ускорителе. Спектр  $\gamma$ -квантов измерялся на расстоянии 200 метров от здания ускорителя с целью избежать влияния фона мгновенных  $\gamma$ -квантов из помещения синхроциклотрона и просчетов спектрометра. Расстояние от места облучения до места измерения вода проходит за 30 мин. При работающем ускорителе в измеренном спектре виден только пик 511 кэв. При неработающем ускорителе через 3,5 часа после его выключения четко удалось обнаружить только пик 480 кэв, который соответствует  ${}^7\text{Be}$ .

С помощью стандартных дозиметров было измерено распределение мощности дозы гамма-излучения вдоль труб контура охлаждения при работающем и неработающем ускорителе. Погрешность измерения приборов  $-20\%$ .

Во время измерений поля  $\gamma$ -излучения от наведенной в системе охлаждения радиоактивности при работающем ускорителе, влияние фона мгновенных  $\gamma$ -квантов, сопутствующих взаимодействиям нуклонов с ядрами, было полностью исключено.

Результаты измерений мощности дозы вдоль труб системы охлаждения представлены на рис. 1.

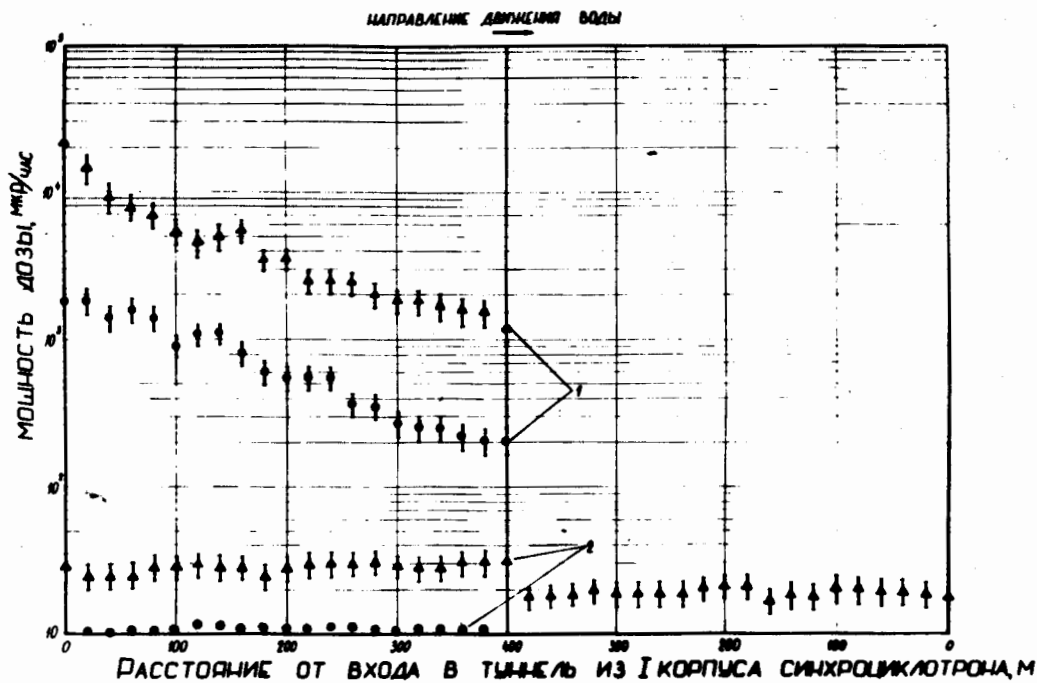


Рис. 1. Распределение мощности дозы вдоль труб контура охлаждения  
 ▲ - вплотную к трубе, ● - на расстоянии 90 см от первой трубы,  
 1 - при работающем ускорителе 2 - при неработающем ускорителе (время после остановки - 3,5 часа).

### 3. Определение гамма-активных изотопов в воде охлаждающего контура

Для определения изотопного состава продуктов наведенной активности в воде охлаждающего контура было взято несколько проб воды и осадка со стенок труб системы.

Пробы воды выпаривались в стеклянном стакане с добавлением нескольких капель соляной кислоты; сухой остаток наносился на подложку. Специальным опытом было установлено, что изотопный состав пробы при данном способе приготовления не меняется; при этом потери активности не превышают 20%.

Регистрация гамма-квантов от проб воды и осадка с целью идентификации  $\gamma$  - радиоактивных изотопов и определения их активностей производилась на спектрометрах, один из которых имел детектор  $NaJ(Tl)$ , другой -  $Ge(Li)$ . Разрешение спектрометра с кристаллом  $NaJ(Tl)$  составляет 16%, а спектрометра с кристаллом  $Ge(Li)$  - 0,5% для энергии  $\gamma$  - квантов 511 кэВ. С помощью данных, полученных на  $Ge(Li)$  - детекторе, идентифицированы <sup>12/</sup> все изотопы, количество  $\gamma$  - квантов которых составляет не менее 1/50 от количества  $\gamma$  - квантов наиболее активного изотопа, присутствующего в пробе. Эта характеристика детектора обусловлена наличием комптоновского эффекта, быстродействием анализатора и разумным временем измерения. Таким образом, мы обнаружили все  $\gamma$  - активные изотопы в воде и осадке, которые могут давать существенный вклад в дозу излучения. Результаты измерений спектра, полученные с помощью  $Ge(Li)$  - детектора, приведены на рис. 2.

Состав и активность изотопов в воде и осадке контура охлаждения синхротрона представлены в таблице 1. Активность изотопов в воде, приведенная в колонке 2, дана как среднее арифметическое из измеренных несколько раз величин.

Таблица I

Изотопы, обнаруженные в контуре охлаждения синхротрона ОИЯИ, и их активность (измеренная и рассчитанная)

Изотоп:	Активность изотопов		
	в воде контура, распадов/сек.л	в осадке, распадов	сек.проба
	: измеренная	: рассчитанная:	
$^{60}\text{Co}$	17(7) *	73	<2
$^{58}\text{Co}$	150(60)	218	<2
$^{57}\text{Co}$	100(40)	133	<2
$^{56}\text{Co}$	35(14)	50	<1
$^{56}\text{Mn}$	<4	1	<2
$^{54}\text{Mn}$	32(12)	42	<3
$^{52}\text{Mn}$	31(12)	33	<1
$^{51}\text{Cr}$	<30	-	50
$^{48}\text{V}$	<4	-	9
$^7\text{Be}$	300(120)	-	1454
$^{12}\text{C} **$	$(3,5 \pm 0,3) \cdot 10^5$	-	-

\* ) в скобках указано отклонение от среднего (по всем пробам) значения активности в воде контура

\*\* ) активность углерода на выходе из зоны облучения.

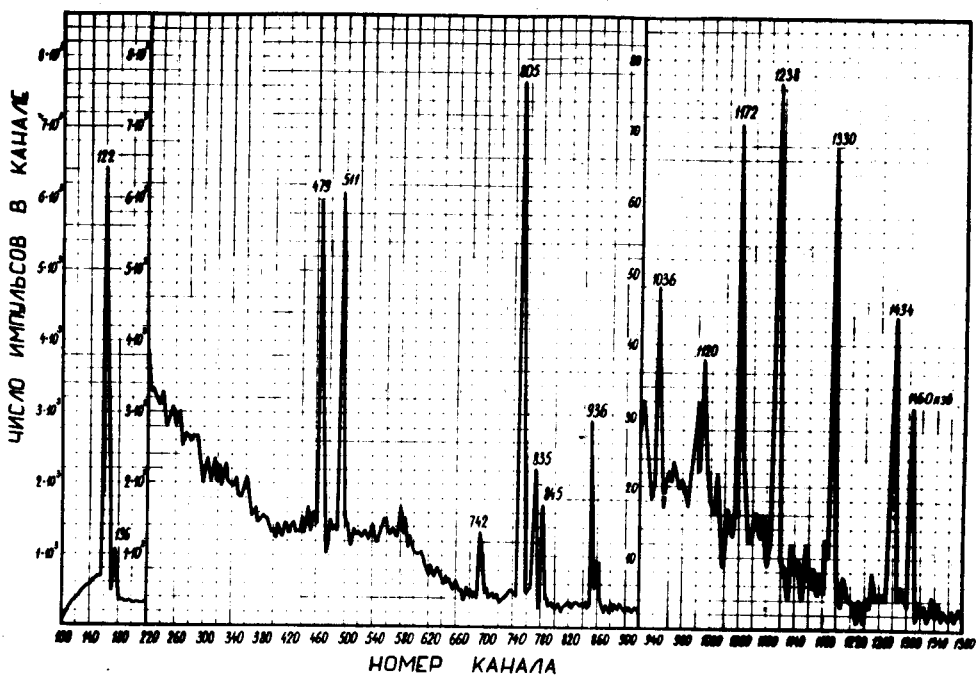


Рис. 2. Гамма-спектр сухого остатка воды из контура охлаждения синхротрона ОИЯИ, измеренный на  $\text{Ge(Li)}$  - детекторе.

Наличие в пробах воды изотопов, отличных от  $^7\text{Be}$  и  $^{11}\text{C}$ , которые, естественно допустить, образуются из кислорода воды, побуждает выяснить возможные пути загрязнения воды изотопами кобальта, марганца, хрома и т.д. С этой целью был установлен состав элементов в пробах активационным методом (табл. 2).



Таблица 2

Содержание химических элементов в пробах,  
взятых в контуре охлаждения синхроциклотрона

Элемент	Вода из контура, г/л	Осадок со стенок контура, г/проба	Дистилли- рованная вода, за- ливаемая в контур, г/л
медь	$2,4 \cdot 10^{-3}$	$7,6 \cdot 10^{-3}$	$< 1 \cdot 10^{-5}$
цинк	$2,4 \cdot 10^{-3}$	$1,9 \cdot 10^{-3}$	$3,1 \cdot 10^{-4}$
железо	$< 5 \cdot 10^{-5}$	$14,8 \cdot 10^{-3}$	$< 5 \cdot 10^{-5}$
натрий	$3,8 \cdot 10^{-3}$	$< 1 \cdot 10^{-5}$	$1,4 \cdot 10^{-3}$

#### 4. Обсуждение результатов измерений

Наличие в контуре системы охлаждения изотопов кобальта, марганца, хрома, ванадия, а также соотношения между активностями изотопов кобальта дают основание предположить, что эти изотопы образовались в результате активации меди, из которой изготовлены трубы системы охлаждения.

Образование указанных изотопов в установленном количестве из цинка исключается в связи с отсутствием в пробах радиоактивного цинка-65 с периодом полураспада 245 дней. Верхний предел активности цинка-65, установленный в измерениях, - 30 распадов/(сек.л), в то время как из соотношения сечений образования различных изотопов из

цинка <sup>/3/</sup> мы должны были бы наблюдать цинк-65 с активностью 300 распадов/(сек.л). Этот факт с учетом того, что меди в воде контура столько же, сколько и цинка (табл. 2), а сечения образования наблюдаемых изотопов из меди и цинка соизмеримы, указывает также и на то, что радиоактивные изотопы образовались не из меди, находящейся в воде системы охлаждения, а из меди, служащей материалом той части труб системы, которая находится под облучением. Наблюдаемые радиоактивные изотопы кобальта, марганца, хрома, ванадия и другие радиоактивные и стабильные изотопы, не наблюдаемые в опыте, переходят в воду в результате коррозии внутренней поверхности активированных медных трубок. Процесс коррозии меди более интенсивно проходит под действием излучения и подробно описан в работе <sup>/4/</sup>.

Измеренная зависимость величин отношения активностей изотопов марганца и кобальта от времени облучения показала, что накопление активности после смены воды в контуре практически прекращается через несколько дней и не зависит от периода полураспада для одного и того же элемента. Это свидетельствует о наличии не только процесса перехода радиоактивных изотопов в воду, но и об обратном процессе, процессе сорбции радиоактивных изотопов на стенках труб и емкостей системы охлаждения. Таким образом, при смене воды в системе вода может загрязняться радиоактивными изотопами не только за счет наведенной в части труб радиоактивности, но также и за счет процесса десорбции.

Важным аргументом в пользу указанного пути загрязнения воды радиоактивными изотопами, образующимися из меди, является тот факт, что активность воды спустя 47 дней после полной ее смены при неработающем ускорителе оказалась соизмерима с активностью проб, взятых после продолжительной работы ускорителя. На основании результатов измерений можно описать накопление радиоактивных изотопов в воде контура охлаждения в аналитической форме.

#### 4.1. Образование радиоактивных изотопов из кислорода воды

Можно показать, что удельная активность  $i$ -го изотопа  $j$ -го элемента  $A_{i,j}$  в воде контура охлаждения на выходе из зоны облучения через  $\nu$  периодов обращения воды в контуре будет:

$$A_{i,j} = I \sigma_i N \frac{\lambda_i}{\lambda_i + a_j} \frac{[1 - e^{-(\lambda_i + a_j) t_0}] [1 - e^{-(\lambda_i + a_j) T \nu}]}{[1 - e^{-(\lambda_i + a_j) T}]}, \quad (1)$$

где:  $I$  - средняя плотность потока частиц в зоне активации;  $\sigma_i$  - сечение образования  $i$ -го изотопа;  $N$  - число ядер элемента, вступающего в ядерную реакцию, в 1 литре (в расчет принимается только один изотоп кислорода -  $^{16}\text{O}$ );  $t_0$  - время прохождения водой зоны облучения;  $\lambda_i$  - постоянная распада  $i$ -го изотопа;  $a_j$  - постоянная выведения образовавшегося  $j$ -го элемента, за счет сорбции, осаждения, испарения и так далее, из воды;  $T$  - время периода обращения воды (в нашем случае  $T = 90$  мин).

Формула (1) справедлива при условии  $(\lambda_i + a_j) t_0 < 1$ . Для долгоживущих изотопов, для которых  $\lambda_i < a_j$  и  $(\lambda_i + a_j) T \ll 1$ , формула (1) приобретает следующий вид:

$$A_{i,j} = I t_0 \sigma_i N \frac{\lambda_i}{(\lambda_i + a_j) T}. \quad (2)$$

Значение величины  $I t_0$  определим, зная активность углерода  $^{14}\text{C}$ . Полагая коэффициент  $\alpha$  малым по сравнению с постоянной распада и имея в виду, что время облучения  $t_0$ , по оценкам, мало по сравнению с периодом полураспада, получим выражение для равновесной активности углерода  $^{14}\text{C}$ :

$$A_0 = \frac{I t_0 \lambda_c \sigma_c N}{0,95}, \quad (3)$$

где  $0,95 = [1 - e^{-(\lambda_c + a_c) T}]$ .

Измерение активности углерода 11 в нашем случае дало величину, равную  $3,48 \cdot 10^5$  распадов/сек.л, откуда  $I t_0 = 1,8 \cdot 10^9$  протон/см<sup>2</sup>.

Зная активность  ${}^7\text{Be}$  в воде контура, легко найти по формуле (2) коэффициент выведения бериллия  $\alpha$ , который оказался равным  $3,4 \cdot 10^{-5}$  сек<sup>-1</sup>, а период полувыведения  $T_{1/2} = 6$  часов. Таким образом, меньше чем за сутки, в воде контура устанавливается равновесная концентрация  ${}^7\text{Be}$ .

С помощью формулы (2) можно определить активность трития в воде контура. Коэффициент выведения трития  $\alpha$  рассчитали, исходя из того, что каждый месяц из системы объемом 36 м<sup>3</sup> испаряется 12 м<sup>3</sup> воды, вместе с водой улетучивается и тритий в составе  $\text{H}_2\text{O}$  или  $\text{H}_2$ . Из расчета имеем  $\alpha = 0,9 \cdot 10^{-7}$  сек<sup>-1</sup>, или период полувыведения  $T_{1/2} = 63$  дня. Равновесная величина активности трития получилась равной  $1,8 \cdot 10^{-7}$  кюри/литр.

С помощью формулы (2) можно рассчитать наведенную активность, обусловленную веществами, которые содержатся в воде и представлены в таблице 2. Оценки показывают, что если даже пренебречь сорбцией образуемых изотопов, то рассчитанная величина активности будет в 500 раз меньше наблюдаемой.

#### 4.2. Загрязнение воды радиоактивными изотопами вследствие коррозии

При коррозии вместе с медью в воду переходят изотопы, образующиеся в ядерных реакциях, в основном вызванных протонами. Дифференциальное уравнение, описывающее накопление радиоактивных ядер в воде, в этом случае можно записать в следующем виде:

$$\frac{dn_{i,l}}{dt} = c_i \beta + c'_i \beta'_i - (\lambda_i + \alpha_i) n_{i,l} \quad (4)$$

где:  $n_{i,j}$  - число ядер  $i$ -го изотопа,  $j$  -го элемента, находящегося в воде контура;  $t$  - время с момента заполнения системы водой;  $c_i$  - концентрация  $i$ -го изотопа в объеме вещества трубок, которые подвергаются коррозии;  $\beta$  - скорость перехода в воду вещества стенок трубок, находящихся под облучением, вследствие коррозии;  $c'_i$  - концентрация  $i$ -го изотопа в веществе, сорбированном на поверхности труб системы;  $\beta'_i$  - скорость перехода вещества  $i$ -го элемента с поверхности труб системы в результате десорбции.

Решение уравнения (4) запишется в виде:

$$n_{i,i} = e^{-(\lambda_i + \alpha_i)t} [ \int (c_i \beta + c'_i \beta'_i) e^{(\lambda_i + \alpha_i)t'} dt' + B ] . \quad (5)$$

При работающем ускорителе

$$c_i = c_{0i} e^{-\lambda_i t_1} + \frac{l \sigma_i}{\lambda_i} (1 - e^{-\lambda_i t_1}) ;$$

при неработающем  $c_i = c_{0i} e^{-\lambda_i t_2}$ , где  $l$  - средняя плотность протонов;  $\sigma_i$  - микроскопическое сечение образования  $i$ -го изотопа из меди;  $c_{0i}$  - начальная концентрация  $i$ -го изотопа в меди;  $t_1$  - время с момента включения ускорителя;  $t_2$  - время с момента выключения ускорителя. Значение коэффициента  $\beta$  можно получить с помощью данных работы /4/. В этой работе экспериментально определялось изменение концентрации ионов меди в макете контура при облучении его протонами. Изменение концентрации ионов меди в воде со временем можно рассматривать как следствие двух процессов: коррозии и сорбции. Рост концентрации меди  $q$  в первый момент, после заливки воды в макет, обусловлен только процессом коррозии, поэтому  $\left. \frac{dq}{dt} \right|_{t \rightarrow 0} = \beta_1$

для макета, описанного в работе <sup>/4/</sup>. Разумно предположить, что для контуров охлаждения ускорителей из одного материала справедливо следующее соотношение:

$$\beta = \beta_1 \frac{S}{S_1} \frac{V_1}{V}, \quad (6)$$

где  $S_1$  и  $V_1$  - соответственно поверхность макета в зоне облучения, омываемая водой, и его объем, указанные в работе <sup>/4/</sup>;  $S$  и  $V$  - поверхность трубок в зоне облучения, омываемая водой, и объем всего контура охлаждения, соответственно. Значение коэффициента  $\beta$ , как видно из данных работы <sup>/4/</sup>, может отличаться примерно в 3 раза в зависимости от того, находится корродирующая поверхность под облучением или нет. Поэтому необходимо делать различие между  $\beta_2$ - и  $\beta_3$  - скоростями перехода в воду вещества стенок трубок при работающем и неработающем ускорителе, соответственно.

Относительно десорбции мы не имеем достаточных данных, чтобы записать произведение  $\alpha' \beta'$  в аналитическом виде в зависимости от времени. Кроме того, у нас нет никаких количественных сведений для процесса десорбции в нашем контуре охлаждения. Поэтому в данной работе мы ограничимся только рассмотрением процесса коррозии как источника загрязнения воды.

Изменение активности долгоживущих изотопов во времени после включения или выключения ускорителя, как следует из формулы 5, обусловлено только выведением радиоактивных изотопов из воды (т.к.  $\lambda_1 \ll \alpha_1$ ). Коэффициенты выведения  $\alpha_1$  были экспериментально оценены по скорости накопления активности изотопов в воде после включения ускорителя. Коэффициент выведения для  $Co \approx 4 \cdot 10^{-6} \text{ сек}^{-1}$ , для  $Mn \approx 1,2 \cdot 10^{-5} \text{ сек}^{-1}$ . Период полувыведения  $T_{1/2}$  для  $Co \approx 2$  дн, для  $Mn \approx 17$  час.

Поток протонов в местах размещения трубок  $I$  и омываемую поверхность  $S$  определяем косвенно по активности  $^{11}\text{C}$  в воде на выходе из зоны облучения. Согласно (3), можно записать:

$$A_c = \frac{I t_0 \lambda_c N \sigma_c}{0,95} = \frac{I \frac{V_{\text{обл}}}{Q} \lambda_c N \sigma_c}{0,95} = \frac{IS}{V} \frac{r \lambda_c \sigma_c NT}{2 \cdot 0,95} \quad (7)$$

где  $V_{\text{обл}} = \frac{Sr}{2}$  - объем воды во всех медных трубках, где происходит облучение;  $Q = \frac{V}{T}$  - расход воды в системе;  $S$  - внутренняя поверхность медных трубок, где происходит облучение;  $r$  - радиус этих трубок.

Из формулы (7) легко определить  $\frac{IS}{V}$ .

Таким образом, параметры выражения (5) определены, и можно в явном виде записать формулу для равновесной активности в воде контура при включенном ускорителе:

$$A_{i,l} = 1,9 A_c \frac{1}{\lambda_c T} \frac{\sigma_l}{\sigma_c} \frac{\beta_l}{N(\lambda_l + a_l)} \frac{V_l}{r S_l} \quad (8)$$

Значения равновесных активностей для изотопов  $\text{Co}$  и  $\text{Mn}$ , вычисленные по формуле (8), приведены в табл. 1. В общем случае  $t_1$ ,  $t_2$ ,  $t$  не являются не зависящими друг от друга величинами, соотношение между которыми в значительной степени случайно. В этой связи отсутствует возможность записать решение (5) в явном виде в общем случае.

Тот факт, что мы не наблюдаем в воде изотопов  $\text{Cr}$  и  $\text{V}$ , которые имеют большое сечение образования из меди, можно объяснить тем, что эти элементы имеют большой коэффициент выведения. Значение

активности, соответствующее пробе, взятой через 47 дней после заполнения контура водой, в течение которых ускоритель не работал, должно определяться значением коэффициента  $\beta_3$ . Хотя  $\beta_3$  в 3 раза меньше  $\beta_2$ , активность первой пробы отличается не более чем в 2 раза от наибольшей активности воды в контуре. Это можно объяснить вкладом десорбции радиоактивных изотопов со стенок охлаждающего контура. Количественное соответствие расчетных и экспериментальных результатов указывает на правильное описание процесса накопления активности в воде системы охлаждения.

### Заключение

В результате исследования радиоактивности воды, охлаждающей узлы синхроциклотрона ОИЯИ, установлено, что в настоящее время удельная радиоактивность не превышает предельно допустимых концентраций в воде, подлежащей сбросу в дренажную систему без предварительного отстоя или очистки. Активность гамма-радиоактивных изотопов достигает равновесной величины не более чем за 6 дней. Мощность дозы гамма-излучения от труб системы охлаждения соизмерима с предельно допустимыми величинами или превышает их на расстояниях < 200 м от синхроциклотрона. При увеличении интенсивности внутреннего пучка усилителя в 25-30 раз потребуется сооружение специальной системы охлаждения, работающей без сброса радиоактивной воды в открытый водоем, как это предусмотрено проектом /5/.

Пользуемся случаем выразить признательность за полезные советы профессору В.П. Джелепову и за оказанную помощь в работе Р. Арльту, Т.И. Каплинской и Е.Л. Журавлевой.



## Литература

1. G.J.Warren, D.D.Busick and R.C.McCall. "Radioactivity produced and released from water at high energies". Second International Conference on Accelerator Dosimetry and Experience. November 5-7, 1969, p.p.99-110.
2. Б.С. Желепов, Л.К. Пекер. Схемы распада радиоактивных ядер. "Наука", М.Л., 1966.
3. Nuclear Data Tables, Section A. v. 7 Nos 1-2, 1969, p.p. 1-232.
4. F.Hoyer, M.Bourges and R.Deltenre. Radiolytic corrosion and related problems in the cooling water circuits of high-energy particle accelerators". CERN-68-2, DI-HP/ MSC, 25 January, 1968.
5. А.А. Глазов и др. "Фазотрон с вариацией магнитного поля (установка "Ф"). Препринт ОИЯИ, 9-3211, Дубна, 1967.

Рукопись поступила в издательский отдел  
3 марта 1972 года.