

УДК 621.039.534

ИНФОРМАТИВНОСТЬ ПАРАМЕТРОВ СОСТОЯНИЯ ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ ТРАНСПОРТНЫХ ЯЭУ

Орлов С.Н., Змитродан А.А., Фоменков Р.В., Мысик С.Г., Епимахов В.Н., Дворянов И.А.
(НИТИ им. А.П. Александрова, г. Сосновый Бор)
e-mail: orlov.s.n.1989@yandex.ru

МЕТОДИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Концепция безопасности ядерных энергетических установок базируется на создании эшелонированной защиты от поступления радионуклидов из облученного топлива в окружающую среду. Одним из барьеров на пути распространения радиоактивных веществ являются оболочки твэлов. Контроль оболочек проводится путем определения в теплоносителе первого контура активности реперных радионуклидов, которые образуются в топливе при его делении, а их поступление в теплоноситель свидетельствует о появлении негерметичных твэлов. Основными критериями при выборе и обосновании реперных радионуклидов являются [1]:

наличие значимого выхода из топлива в теплоноситель при наличии негерметичности и равномерное распределение в теплоносителе;

длительный период полураспада, необходимый для отбора проб, их подготовки и измерения, но достаточно короткий, чтобы в теплоносителе не происходило его накопление.

Этим требованиям в полной мере отвечают изотопы иода, что обуславливает их применение в качестве реперных на энергоблоках типа ВВЭР, транспортных ЯЭУ [2, 3].

Согласно ОСТ [4] основным параметром при контроле состояния активной зоны транспортных ЯЭУ типа КЛТ-40С, применяемых на ледоколах и плавучей атомной тепловой электростанции «Академик Ломоносов», является суммарная удельная активность иода в пробах теплоносителя через 2 ч после отбора.

Целями настоящей работы являлись оценка информативности основного параметра при эксплуатации транспортной ЯЭУ, а также его совершенствование. Исследования позволят повысить эффективность контроля защитных барьеров не только на плавучей атомной станции, но и на атомных станциях малой мощности, поскольку для теплоносителя их первого контура предложен аммиачный водно-химический режим, аналогичный применяемому в первом контуре КЛТ-40С.

Экспериментальные результаты получены в ходе эксплуатации транспортной ЯЭУ типа КЛТ-40С при загрязнении поверхностей первого контура фрагментами топливной композиции. Отсутствие разгерметизации оболочек твэлов в рассматриваемый период работы было подтверждено специальными режимами, проводимыми на остановленном реакторе.

Пробы теплоносителя первого контура для определения активности иода отбирали до штатных ионообменных фильтров, загруженных смесью катионита и анионита ядерного класса в отношении 1:1, при работе реактора на уровне мощности 30% номинальной в течение не менее 9 ч для достижения равновесной активности. Активность измеряли в аликвоте или после выделения на твердом носителе. Изотопы иода выделяли способом экспрессного хроматографического разделения на пористом сорбенте, импрегнированном триоксиламином, или на импрегнированной серебром мембране с предварительным переводом иода из пробы в газовую фазу [5, 6]. Счетные образцы измеряли на полупроводниковом γ -спектрометре «Гамма-1П». Относительная погрешность расчета объемной активности выбранного радионуклида δA при доверительной вероятности 0,95 не превышала 7,2% и включала суммарную неисключенную относительную систематическую погрешность пробоподготовки и измерений 6,9%, а также относительную статистическую идентифицированного изотопа по площади пика полного поглощения 2,2%.

Суммарную удельную активность иода в пробах теплоносителя через 2 ч после отбора ($A \sum I_{2ч}$) рассчитывали по формуле

$$A \sum I_{2ч} = 0,99A(^{131}\text{I}) + 0,55A(^{132}\text{I}) + 0,94A(^{133}\text{I}) + 0,21A(^{134}\text{I}) + 0,81A(^{135}\text{I}),$$

где $A(^{131-135}\text{I})$ — удельная активность изотопов иода, Бк/кг.

Для проверки гипотезы о нормальном распределении значений использовали составной критерий для ограниченного объема выборки ($10 < n < 50$, где n — число значений). Составной критерий представляет собой совокупность двух критериев [7].

Критерий I. На основании значений параметра вычисляли величину d_x по формуле

$$d_x = \frac{1}{S_x \sqrt{n(n-1)}} \sum_{i=1}^n |x_i - x_{cp}|,$$

где x_i — i -е значение; $x_{cp} = 1/n \sum_{i=1}^n x_i$ — среднее арифметическое значение; $S_x = \sqrt{1/n - 1 \sum_{i=1}^n (x_i - x_{cp})^2}$ — среднее квадратичное отклонение параметра.

При $d_{1-q/2} \leq d_x \leq d_{q/2}$, где $d_{1-q/2} = 0,72$, $d_{q/2} = 0,89$ для доверительной вероятности $P_1 = 0,95$ и числа значений параметра $n = 17$, распределение не противоречит нормальному.

Критерий II. Определяют число результатов m , удовлетворяющих условию

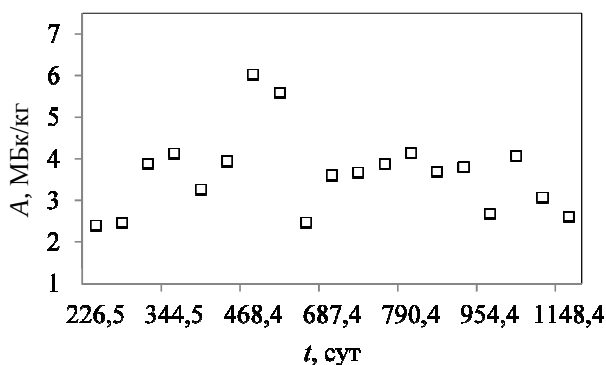
$$|x_i - x_{cp}| > 2,5S_x.$$

Если $m \leq 1$ при $10 \leq n \leq 20$, то с вероятностью $P_2 = 0,98$ распределение не противоречит нормальному.

При выполнении этих критериев с доверительной вероятностью $P_3 = P_1 + P_2 - 1 = 0,93$ распределение является нормальным.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Суммарная удельная активность иода через 2 ч после отбора проб. Как видно на рис. 1, рассматриваемый параметр значительно



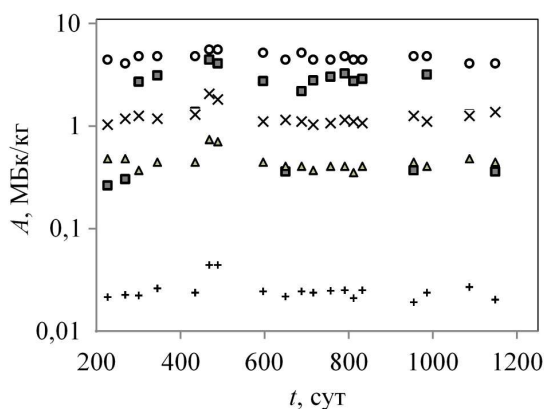
Р и с. 1. Суммарная удельная активность иода в пробах теплоносителя через 2 ч после отбора

изменялся в период наблюдений. Высокая почти в 1,5 раза превышающая средняя суммарная удельная активность иода в пробах № 6 и 7, отобранных через 468 и 488 сут после начала кампании, объясняется нарушением регламента — расход теплоносителя через фильтры при выполнении радиационно-технологического контроля был снижен в 2 раза. Для остальных режимов суммарная удельная активность иода также изменялась в широком диапазоне 2,4—4,1 МБк/кг. При этом закономерности изменения не наблюдалось.

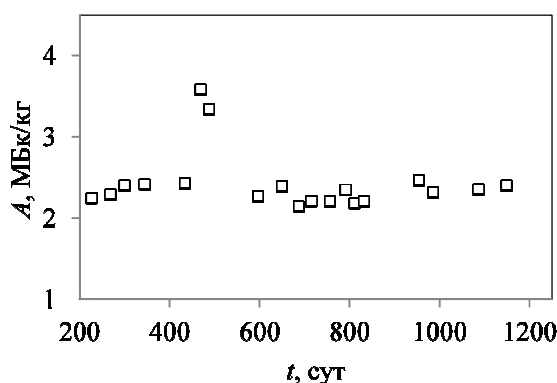
Удельная активность изотопов иода в пробах. Для определения причины нестабильности суммарной удельной активности иода было проанализировано изменение удельной активности $^{131-135}\text{I}$. На рис. 2 видно, что удельная активность изотопов почти не изменялась в рассматриваемый период, за исключением режимов, выполненных через 468 и 488 сут после начала работы. В то же время наблюдается значительное изменение активности ^{132}I .

Суммарная удельная активность $^{131,133,134,135}\text{I}$ в пробах. Для подтверждения влияния активности ^{132}I на колебания основного параметра определим суммарную удельную активность ^{131}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I . Как видно на рис. 3, за исключением режимов, выполненных через 468 и 488 сут после начала эксплуатации, их суммарная удельная активность составляет 2,2—2,5 МБк/кг.

Как видно из таблицы, с доверительной вероятностью 0,93 распределение удельной и суммарной удельной активности ^{131}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I в пробах теплоносителя является нормальным. Число выбросов m для всех параметров равно 0.



Р и с. 2. Удельная активность ^{131}I (+), ^{132}I (■), ^{133}I (▲), ^{134}I (○), ^{135}I (×) в пробах теплоносителя



Р и с. 3. Суммарная удельная активность ^{131}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I в пробах теплоносителя через 2 ч после отбора

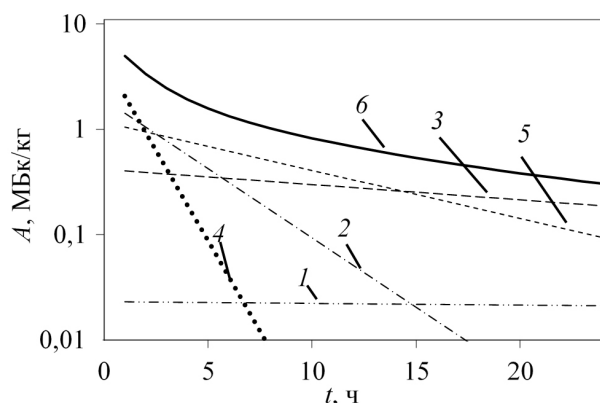
Значения статистических параметров

Параметр	d_x
Удельная активность:	
^{131}I	0,77
^{133}I	0,81
^{134}I	0,74
^{135}I	0,8
Суммарная через 2 ч после отбора	0,8

Вклад изотопов иода в суммарную активность. На рис. 4 показано изменение удельной активности изотопов иода в пробе в течение 24 ч со времени отбора. В качестве исходных использованы среднеарифметические значения. Как видно, через 24 ч после отбора активность ^{132}I снижается в 1000 раз, суммарная активность — в 10 раз.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Экспериментальные результаты показывают существенные колебания суммарной удельной



Р и с. 4. Зависимость изменения активности ^{131}I (1), ^{132}I (2), ^{133}I (3), ^{134}I (4), ^{135}I (5) и их суммарной активности (6) от времени после отбора

активности изотопов иода через 2 ч после отбора проб — фактически в 2 раза, что затрудняет обнаружение изменения состояния активной зоны, особенно на ранних этапах негерметичности оболочек твэлов. Колебания объясняются разницей активности ^{132}I в пробах, которая зависит от предыстории работы установки и определяется его материнским радионуклидом ^{132}Te , содержащимся в теплоносителе в нерастворимой форме. В то же время наблюдается высокая стабильность удельной и суммарной удельной активности ^{131}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I в пробах теплоносителя через 2 ч в режимах радиационно-технологического контроля. Преимущество определения суммарной активности изотопов иода состоит в том, что погрешность ее определения не превышает наибольшую максимальную относительную погрешность слагаемых параметров (удельной активности изотопов иода) [7].

Следует отметить необходимость соблюдения регламента радиационно-технологического контроля для стабильности параметров состояния активной зоны. Экспериментальные данные показывают, что, например, снижение расхода теплоносителя через фильтр в 2 раза приводит к росту показателей состояния активной зоны почти в 1,5 раза.

Распределение удельной активности ^{131}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I и суммарной в пробах теплоносителя через 2 ч после отбора имеет нормальный вид. Таким образом, регистрация значений, лежащих вне границ выбросов, является основанием для увеличения периодичности контроля состояния активной зоны. Обнаружение нескольких последовательных выбросов выше указанной границы свидетельствует о начальном этапе разгерметизации оболочек твэлов. Границы выбросов для уровня значимости $\beta = 0,1$ можно рассчитать по формулам [8]

$$A_{\text{верх}} = x_{\text{ср}} + BS_x;$$

$$A_{\text{низ}} = x_{\text{ср}} - BS_x,$$

где $A_{\text{верх}}$, $A_{\text{низ}}$ — значения параметра, отвечающие верхней и нижней границе соответственно; B — коэффициент, зависящий от числа значений параметра в выборке.

Таким образом, удельную активность ^{131}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I и суммарную удельную в пробах теплоносителя через 2 ч после отбора можно рекомендовать в качестве информативного параметра контроля состояния активной зоны при

измерении проб теплоносителя методом γ -спектрометрии.

При измерении проб теплоносителя методом β -радиометрии можно предложить другой вариант повышения информативности контроля — выделение изотопов иода из водных проб на твердом носителе мембране, импрегнированной серебром. Для этого состав водной пробы корректируют таким образом, чтобы все формы иода перешли в молекулярную. Затем иод в молекулярной форме переводят из водной в газовую фазу путем барботажа пробы воздухом в замкнутом пространстве и сорбируют из газовой фазы на мембране. В результате нелетучие продукты деления, в том числе ^{132}Te остаются в водной пробе, изотопы иода иммобилизуются на счетном образце. Через 24 ч после отбора пробы в отсутствие материнского ^{132}Te активность ^{132}I снизится в 1000 раз и его вклад в суммарную активность уменьшится до 1%. При этом суммарная активность снизится только в 10 раз. Таким образом, при измерении активности методом β -радиометрии для повышения информативности контроля состояния активной зоны можно измерять счетные образцы, изготовленные способом [6], не только через 2, но и через 24 ч после отбора.

ВЫВОДЫ

В ходе работы показано, что нормативный параметр оценки состояния активной зоны транспортных ядерных энергетических установок — суммарная удельная активность изотопов иода в пробах через 2 ч после отбора изменяется в широком диапазоне, что препятствует обнаружению разгерметизации на ранних этапах развития. Изменения определяются колебаниями активности ^{132}I , которая зависит от предистории работы установки и активности материнского радионуклида ^{132}Te .

Для повышения информативности контроля состояния активной зоны при анализе проб теплоносителя методом γ -спектрометрии предлага-

ется использовать в качестве параметров удельную активность ^{131}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I и суммарную удельную в пробах теплоносителя.

При анализе проб теплоносителя методом β -радиометрии для повышения информативности контроля состояния активной зоны можно проводить подготовку счетных образцов способом, позволяющим отделять изотопы иода от нелетучих продуктов деления, и измерять изготовленные образцы не только через 2, но и через 24 ч после отбора.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Tigeras A.** Fuel Failure Detection, Characterization and Modeling Effect of radionuclide behavior in PWR primary coolant. A Dissertation submitted for the Degree Doctor of Philosophy in science by Polytechnic University of Madrid and Paris XI University, 2011. 717 p.
2. **Povarov V.P., Tereshchenko A.B., Kravchenko Yu.N. e.a.** Developing and applying modern methods of leakage monitoring and state estimation of fuel at the Novovoronezh nuclear power plant. — *Thermal Engng*, 2014, v. 61, p. 123—132.
3. **Orlenkov I.S., Moskvina L.N.** Radiochemical monitoring in life tests of fuel for new reactor cores. — *Radiochemistry*, 2010, v. 52, p. 576—580.
4. **Нормы качества** воды первого и третьего контуров реакторной установки судов департамента морского транспорта Российской Федерации с водо-водяными реакторами типа КЛТ-40. Отраслевой стандарт 95 10002—95. М., НИЦ «Курчатовский институт», 1995. 12 с.
5. **Москвин Л.Н., Гусев Б.А., Епи́махов В.Н. и др.** Химические проблемы атомной энергетики. Т. 2. Радиохимический анализ и радиохимические технологии. СПб: Изд-во ВВМ, 2013.
6. **Епи́махов В.Н., Мысик С.Г., Подшибякин Д.С. и др.** Способ контроля содержания радионуклидов иода в теплоносителе водо-водяных ЯЭУ. Патент РФ № 2 759 318. Заявл. 11.03.2021. Оpubл. 11.11.2021. — Бюл. «Изобретения. Полезные модели», 2021, № 32.
7. **Демидович Б.П., Марон И.А.** Основы вычислительной математики. М.: Наука, 1970. 664 с.
8. **Родинков О.В., Бокач Н.А.** Основы метрологии физико-химических измерений и химического анализа. Учебно-методическое пос. СПб: Изд-во ВВМ, 2009. 139 с.

Поступила в Редакцию 29.12.21