

На правах рукописи



ФОМЕНКОВ Роман Викторович

**Метод дефектации ОТВС ЯЭУ транспортного назначения с топливом
дисперсионного типа**

Специальность: 2.4.9. Ядерные энергетические установки,
топливный цикл, радиационная безопасность

А В Т О Р Е Ф Е Р А Т
диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Сосновый Бор – 2024

Работа выполнена в Федеральном государственном унитарном предприятии «Научно-исследовательский технологический институт имени А.П. Александрова».

Научный руководитель:

Зинатуллин Рустем Эдуардович
кандидат технических наук,
старший научный сотрудник отдела
нейтронно-физических исследований ФГУП
«НИТИ им. А.П. Александрова»,
г. Сосновый Бор.

Официальные оппоненты:

Гусев Леонид Борисович
доктор технических наук, профессор, заведующий
кафедрой физики Военно-морского
политехнического института ВУНЦ ВМФ «Военно-
морская академия», г. Санкт-Петербург г. Пушкин;

Кудинович Игорь Владиславович
доктор технических наук, доцент, заместитель
начальника 4 отделения - начальник отдела 42
ФГУП «Крыловский государственный научный
центр», г. Санкт-Петербург.

Ведущая организация:

Акционерное общество «Ордена Ленина Научно-
исследовательский и конструкторский институт
энерготехники имени Н.А. Доллежала»
(АО «НИКИЭТ»), г. Москва.

Защита диссертации состоится 24 сентября 2024 г., начало в 15:30, на заседании диссертационного совета 02.1.003.04 на базе Национального исследовательского центра «Курчатовский институт» по адресу: 123182, г. Москва, пл. Академика Курчатова, д.1.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Национального исследовательского центра «Курчатовский институт» и на сайте www.nrcki.ru

Автореферат разослан « ___ » _____ 2024 г.

Ученый секретарь диссертационного
совета 02.1.003.04, к.ф.-м.н.



Д.А. Шкаровский

Общая характеристика работы

Актуальность темы исследований

Диссертационная работа посвящена решению задачи, важной для обеспечения целостности защитных барьеров безопасности ядерных энергетических установок (ЯЭУ) транспортного назначения. Она заключается в совершенствовании метода обнаружения отработавших (облучённых) тепловыделяющих сборок (ОТВС) с топливом дисперсионного типа, в составе которых присутствуют негерметичные ТВЭЛы (далее – негерметичные ОТВС).

Реальные размеры трещин (сквозных отверстий) в оболочках ТВЭЛов могут варьироваться в достаточно широком диапазоне: от нескольких десятков микрон до сотен миллиметров. В то же время, даже при использовании современных методов дефектации, негерметичные ОТВС с топливом дисперсионного типа могут быть идентифицированы лишь в случае, когда линейные размеры дефектов превышают несколько десятых миллиметра.

Для активных зон (а.з.) ЯЭУ нового типа достоверное выявление негерметичных сборок на стадии образования микродефектов (трещины, размеры которых исчисляются микронами) является крайне важным. Это связано, прежде всего, с необходимостью выбора ОТВС для последующих материаловедческих исследований, цель которых заключается в установлении причин разгерметизации на начальных стадиях её образования. Также поиск негерметичных ОТВС необходим для обеспечения их отдельного хранения от герметичных.

С целью идентификации микродефектов оболочек ТВЭЛов было необходимо исследовать процессы выхода реперного радионуклида ^{85}Kr из топлива дисперсионного типа в зависимости от температуры нагрева и давления при вне реакторной дефектации ОТВС реальных ЯЭУ.

Цель работы: Разработка нового метода обнаружения дефектов на ранних стадиях разгерметизации оболочек ТВЭЛов с топливом дисперсионного типа, характеризующегося повышенной достоверностью.

Для достижения намеченной цели **поставлены следующие задачи:**

1. Разработать аналитические соотношения, позволяющие связать объёмную активность ^{85}Kr в контуре стенда дефектации с площадью открытой поверхности топлива дисперсионного типа.

2. Выявить факторы, снижающие достоверность определения активности ^{85}Kr в контуре стенда дефектации с применением средств системы радиационного контроля (СРК). Определить способ устранения данных факторов и провести его экспериментальную проверку.

3. Разработать методику обнаружения ОТВС с микродефектами в оболочках ТВЭЛов дисперсионного типа.

4. Апробировать методику по результатам экспериментов с реальными ОТВС.

Научная новизна работы

1. Впервые разработаны аналитические соотношения, позволившие связать объёмную активность ^{85}Kr в контуре стенда внереакторной дефектации с площадью открытой поверхности топлива негерметичной ОТВС. Вместо реальных времени и температуры дефектации в данных соотношениях используются эффективные параметры.

2. Впервые предложено для отбраковки ложных результатов дефектации использовать такую характеристику ОТВС, как «мера дефекта», которая косвенно связана с размером суммарной площади открытой поверхности топлива в области трещин оболочек твэлов и остаётся неизменной при повторных нагревах сборок до одной и той же температуры.

3. Установлено, что при нагреве стенда дефектации с ОТВС до температуры 300°C в измерительный контур поступает нуклид ^{14}C , что снижает достоверность определения активности ^{85}Kr с использованием средств СРК.

Практическая значимость работы

1. Разработана методика обнаружения ОТВС с микродефектами в оболочках твэлов дисперсионного типа, включающая последовательность проведения самой дефектации, а также алгоритмы обработки экспериментальных данных и отбраковки ложных результатов с использованием математической модели выхода ^{85}Kr из негерметичных твэлов. Алгоритмы, заложенные в данную методику, предназначены для анализа результатов дефектации ОТВС ЯЭУ транспортного назначения, прошедших испытания во ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова».

2. Разработана система удаления нуклида ^{14}C из контура стенда дефектации, которая позволяет идентифицировать ОТВС с микродефектами оболочек твэлов без привлечения трудоёмких гамма-спектрометрических исследований.

Методы исследования

При решении поставленных в работе задач использовались:

– экспериментальные методы, включающие универсальный стенд внереакторной дефектации, позволяющий определять герметичности ОТВС за счёт контроля активности радионуклида ^{85}Kr , выходящего при различных температурах нагрева в контур стенда дефектации;

– расчётные методы, включающие: математический аппарат с применением решений уравнения диффузии для разработки расчётной модели описания выхода ^{85}Kr из негерметичных твэлов в процессе дефектации ОТВС ЯЭУ транспортного назначения; математическое моделирование на ЭВМ алгоритмов расчётной модели выхода ^{85}Kr из негерметичных твэлов.

Положения, выносимые на защиту

1. Аналитические соотношения, позволяющие связать объёмную активность ^{85}Kr в контуре стенда дефектации с площадью открытой поверхности топлива и временем нагрева ОТВС за счёт использования «эффективных» параметров.

2. Методика обнаружения ОТВС с микродефектами в оболочках твэлов дисперсионного типа при внереакторной дефектации «сухим» методом.

3. Результаты экспериментальных исследований по влиянию выхода радионуклида ^{14}C в измерительный контур при нагреве стенда дефектации с ОТВС до температуры 300°C на точность метода обнаружения негерметичных твэлов с использованием установки УДГ-1Б.

4. Результаты апробации методики обнаружения ОТВС с микродефектами оболочек твэлов дисперсионного типа.

Достоверность представленных результатов, выводов и рекомендаций обеспечена использованием аттестованных методик, поверенных средств измерения, а также согласованием результатов расчёта с экспериментальными данными, полученных при дефектации негерметичных сборок.

Реализация и внедрение результатов работы

Система очистки универсального стенда дефектации была модернизирована в соответствии с предложенным способом КГО твэлов (патент № 2 622 107, G21C 17/00; акт №РБ-17-392 А от 05.09.2017 «Об использовании изобретения по патенту № 2 622 107»). Представленные в диссертационной работе алгоритмы, соотношения и критерии, а также предложения по порядку проведения нагрева ОТВС и очистке газа от «мешающих» примесей формализованы в виде «Методики обнаружения ОТВС с микродефектами в оболочках твэлов дисперсионного типа» (уч. №05-23-755/1 М от 28.11.2023). Алгоритмы, заложенные в методику, предназначены для анализа результатов дефектации ОТВС ЯЭУ транспортного назначения, прошедших дефектацию во ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова».

Апробация результатов

Результаты и основные положения работы докладывались и обсуждались на межотраслевых научно-технических совещаниях: «Проблемы и перспективы развития химического и радиохимического контроля в атомной энергетике «Атомэнергоаналитика-2005», «Атомэнергоаналитика-2007», «Атомэнергоаналитика-2017», (2005, 2007 и 2017 годы) г. Сосновый Бор Ленинградской области; IX Российской конференции с международным участием «Радиохимия 2018» (2018 год), г. Санкт-Петербург; XXVI и XXVII международных семинарах «Спектрометрический анализ. Аппаратура и обработка данных» (2019 и 2021 годы) г. Обнинск; межотраслевой научно-технической конференции «Реакторные материалы атомной энергетике» (2021 год), г. Екатеринбург.

Публикации: По теме диссертации опубликовано 12 работ, из них 4 статьи в научно-технических рецензируемых журналах, включенных в перечень ВАК; 7 материалов конференций и семинаров; 1 патент Российской Федерации. Кроме того, результаты, которые включены в диссертацию, содержатся в 15 отчётах о НИР, выпущенных во ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова».

Соответствие паспорту специальности

Содержание диссертационного исследования соответствует направлениям исследований п.1,2 паспорта научной специальности 2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность.

Личный вклад автора в совместных исследованиях и работах, которые выполнялись для разработки рассматриваемой методики дефектации, заключается в следующем:

1. Анализ теоретических зависимостей, описывающих выход продуктов деления из облучённого топлива. Разработка на основании данного анализа аналитических соотношений, позволяющих связать скорость выхода ^{85}Kr при дефектации с размерами открытой поверхности топлива и временем дефектации, а также критерия отбраковки экспериментальных данных.

2. Обобщение результатов дефектации и их анализ с применением разработанных критериев, аналитических соотношений и алгоритмов расчёта.

3. Обнаружение выхода с поверхностей ОТВС бета-излучающих примесей в контур стенда дефектации при его нагреве до 300°C . Обоснование необходимости поиска и устранения данных примесей. Определение эффективности очистки газа от ^{14}C при использовании различных методов очистки.

4. Организация и выполнение анализа проб газа со стенда дефектации с применением гамма-спектрометрических методов. Участие в организации экспериментов по исследованию ОТВС, включая разработку программ данных исследований. Обобщение и анализ результатов экспериментов, поставленных на стенде дефектации с герметичными и негерметичными ОТВС.

Структура и объём работы

Диссертационная работа состоит из введения, пяти глав, основных результатов и выводов, библиографии, включающей 84 наименования, и приложений. Работа изложена на 113 страницах машинописного текста (209 страниц вместе с приложениями), включая 26 рисунков, 8 таблиц и 8 приложений (40 рисунков и 42 таблицы).

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

В первой главе приведён литературный обзор, в котором рассмотрены особенности эксплуатации, а также порядок проведения испытаний на надёжность твэлов ЯЭУ транспортного назначения, включающих материаловедческие исследования ОТВС; проведён анализ существующих методов дефектации ОТВС после облучения в реакторе. Показано, что штатные методы дефектации, используемые на стационарных ЯЭУ большой мощности (с керамическим топливом), малоинформативны для твэлов активных зон транспортного назначения. Обоснован выбор стенда дефектации ОТВС, обеспечивающего возможность обнаружения микродефектов в оболочках твэлов с рассматриваемым типом топлива за счёт контроля объёмной активности ^{85}Kr , поступающего из негерметичных ОТВС [1].

Принципиальная схема универсального стенда дефектации (УСД) представлена на рисунке 1. Стенд позволяет осуществлять нагрев герметичного испытательного контейнера (ГИК) с ОТВС до 60-300°C. Для перемешивания газа по объёму контура многократной циркуляции газа (КМЦГ) используется газодувка (расход 0,02÷0,06 м³/мин). Устройство УДГ-1Б обеспечивает проведение измерений объёмной активности газа в измерительном контуре (ИК) по бета-излучению на протяжении всего эксперимента в непрерывном режиме. Экспозиция измерений составляла 10 с. При реализации периодической процедуры измерений объёмной активности газа (длительностью 5-30 минут) с использованием УДГ-1Б выполняется 30-180 определений активности газа.

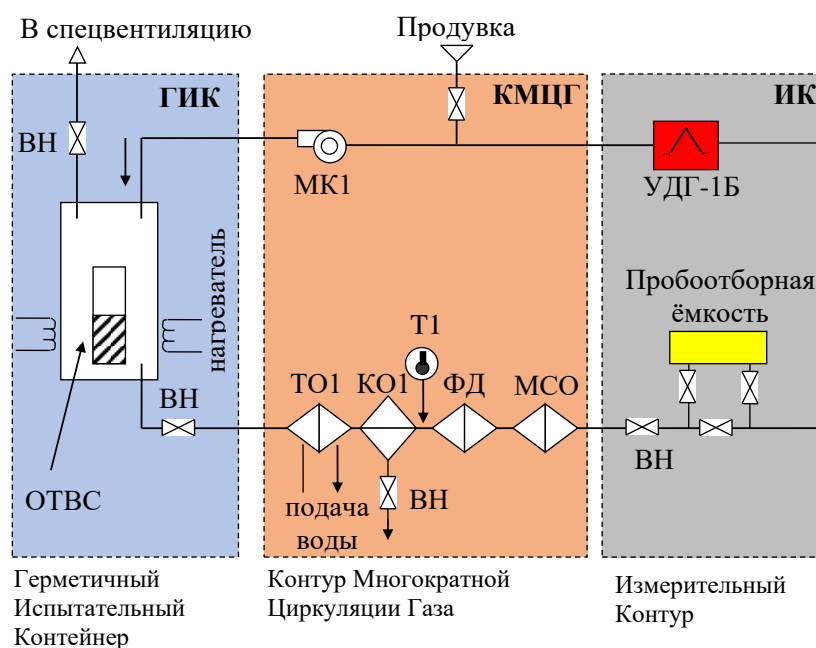


Рисунок 1 – Принципиальная схема УСД

На основании полученных данных выполнялся расчёт усреднённой объёмной активности газа за время одной процедуры измерений (a_i). Полученное значение a_i приписывалось времени начала процедуры измерений t_i . Нижний предел измеряемой активности с использованием УДГ-1Б, при этом, составлял $1,0 \cdot 10^4$ Бк/м³ [1].

В связи с ростом коэффициента диффузии по мере повышения температуры скорость миграции ⁸⁵Kr в топливе должна возрастать. Анализ результатов экспериментов с негерметичными ОТВС показал, что повышение температуры нагрева ГИК с 60 до 200°C увеличивает скорость выхода активности ⁸⁵Kr в 30 раз, а с 60 до 300°C - на четыре порядка (рисунок 2).

В связи с этим, для поиска ОТВС с микродефектами в оболочках твэлов ЯЭУ транспортного назначения была выбрана вне реакторная дефектация «сухим» методом с нагревом до 300°C.

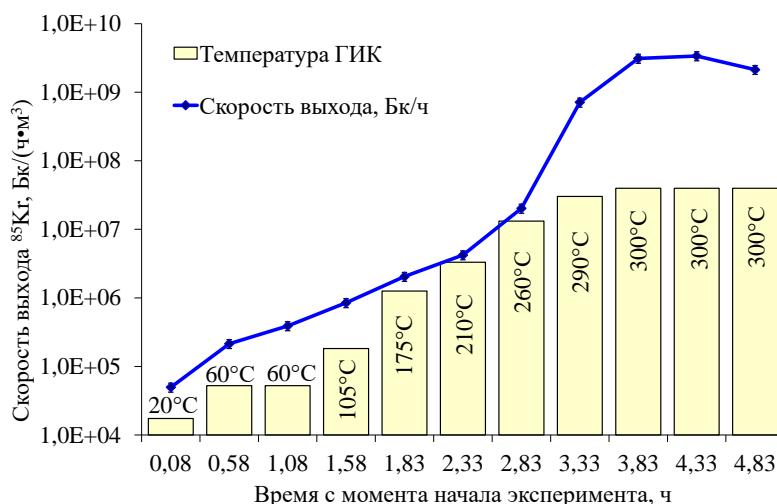


Рисунок 2 – Изменение скорости выхода ⁸⁵Kr при нагреве ГИК с ОТВС до 300°C

В то же время было обнаружено, что при нагреве ГИК с ОТВС до указанной температуры в явном виде проявляются эффекты, на которые ранее (при нагреве до 150°C) не обращали внимания. К их числу, во-первых, относится факт снижения скорости выхода нуклида ⁸⁵Kr из топлива с течением времени при стационарной температуре нагрева (рисунок 2).

Во-вторых, при повторных нагревах ОТВС было обнаружено многократное снижение объёмной активности ⁸⁵Kr по сравнению с первым нагревом, представленное на рисунке 3. Это приводило к неоднозначной трактовке получаемых результатов – были весомые аргументы считать рассмотренные сборки герметичными, поскольку наблюдаемый при первом нагреве ОТВС рост активности мог быть связан, например, с «помехами» в работе аппаратуры.

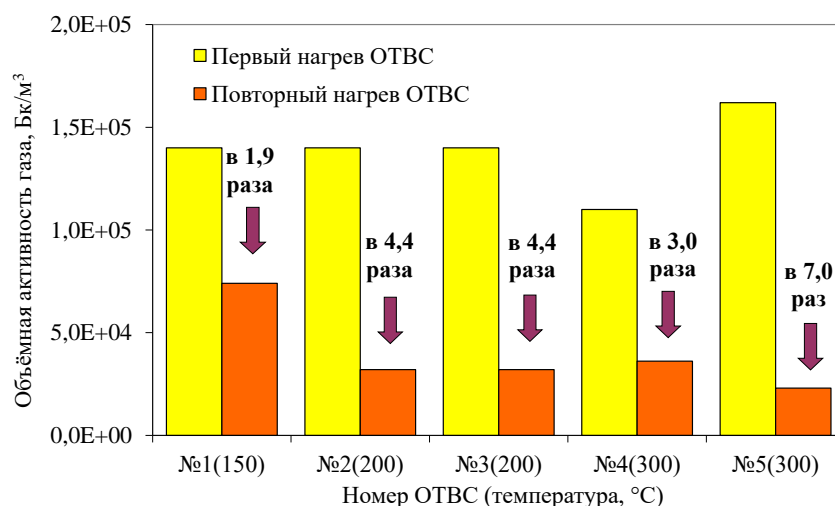


Рисунок 3 – Данные по объёмной активности радионуклида ⁸⁵Kr при первом и повторном нагревах ОТВС

Для сопоставления результатов дефектации между собой потребовалась разработка аналитических соотношений, позволяющих связать объёмную активность ⁸⁵Kr в контуре стенда дефектации с площадью открытой поверхности топлива.

К новому эффекту, который был обнаружен при нагреве ГИК с ОТВС до 300°C, следует отнести расхождение результатов измерений объёмной активности⁸⁵Kr в газовой среде УСД, полученных с применением УДГ-1Б и спектрометра гамма-излучения (ГАММА-1П). Данного расхождения не наблюдалось при нагреве до более низких температур (150 и 200°C), что потребовало проведения дополнительных исследований.

Во второй главе проведён анализ математических зависимостей, позволяющих описать динамику выхода ГПД из облучённого ядерного топлива в процессе дефектации.

Для математического описания процессов миграции ГПД в топливе используется приближение, согласно которому все атомы диффундирующего нуклида участвуют в диффузионном процессе. В этом случае изменение концентрации его ядер в среде с течением времени описывается дифференциальным уравнением диффузии

$$\frac{\partial C(\vec{r}, t)}{\partial t} = \nabla [D(\vec{r}, t) \cdot \nabla C(\vec{r}, t)] - \lambda C(\vec{r}, t), \quad (1)$$

где $C(\vec{r}, t)$ – концентрация нуклида от времени в единице объёма, ядер/см³; $D(\vec{r}, T)$ – коэффициент диффузии нуклида в топливе, см²/с; λ – постоянная распада нуклида, с⁻¹.

Решения уравнения диффузии (1) с учётом изменения температуры топлива T и, соответственно, коэффициента диффузии $D(\vec{r}, T)$ имеют громоздкий вид. По этой причине большинство экспериментов с облучённым топливом исследователи стараются проводить при условиях, максимально приближенных к изотермическим. В этом случае количество ядер нуклида, диффундирующих из топлива в контролируемую среду (N) вдоль оси x (экстраполированная граница твёрдого тела при $x = 0$) к моменту времени t после окончания облучения при начальном условии: $C(x = x, t = 0) = C_0$ и граничном условии: $C(x = 0, t = t) = 0$ можно оценить с использованием аппроксимирующего выражения (полагая $D(\vec{r}, T) = const.$)

$$N = 2N_0 \frac{S}{V} \sqrt{\frac{Dt}{\pi}}, \text{ ядер} \quad (2)$$

где S – площадь открытой поверхности топлива, включая открытые поры, см²; V – объём топлива, см³; N_0 – количество ядер нуклида в топливном образце на момент окончания облучения, ядер.

Для учёта процессов, протекающих в облучённом твэле и влияющих на миграцию ГПД, вместо реального коэффициента диффузии (D) выполняется переход к «эффективному» («кажущемуся») коэффициенту диффузии D^* . В этом случае из выражения (2) вытекает формула для описания изменения активности радионуклида ($A(t)$, Бк), выходящего из облучённого топлива за время наблюдений [2]

$$A = 2a_v S \sqrt{\frac{D^*}{\pi}} \cdot \sqrt{t}, \text{ Бк} \quad (3)$$

где a_V - объемная активность радионуклида в топливе на момент окончания облучения, Бк/см³; D^* - «эффективный» коэффициент диффузии, см²/с.

Использование выражения (3) возможно только в случае, когда условия эксперимента близки к изотермическим. При дефектации же температура ОТВС в ходе нагрева ГИК изменяется: монотонно возрастает до достижения заданной температурной уставки нагревателей.

В подобных условиях решение уравнения (1) может быть получено только после достижения постоянной температуры ОТВС. Так, для случая односторонней десорбции радионуклидов из полубесконечного твёрдого тела в полубесконечное пространство решение уравнения (1), учитывающее произвольное начальное распределение концентрации долгоживущего нуклида по глубине топлива, записывается в следующем виде (при граничном условии $C(0, t) = 0$)

$$C(x, t) = \frac{I}{2\sqrt{\pi \cdot Dt}} \int_0^{\infty} C(y, 0) \left[\exp\left(-\frac{(y-x)^2}{4Dt}\right) - \exp\left(-\frac{(y+x)^2}{4Dt}\right) \right] dy \quad (4)$$

где $C(y, 0)$ ядер/см³ - начальное распределение концентрации долгоживущего нуклида по глубине топливных частиц (контактирующих с дефектом), достигнутое на момент установления стационарных условий ($D = const$, начиная с момента $t = 0$); x - расстояние до открытой поверхности топлива, см.

В качестве примера на рисунке 4 приведена зависимость концентрации диффундирующего нуклида от расстояния до открытой поверхности топлива (его экстраполированной границы) для моментов времени $t_1 < t_2 < t_3$ при начальной концентрации $C(x, 0) = C_0$.

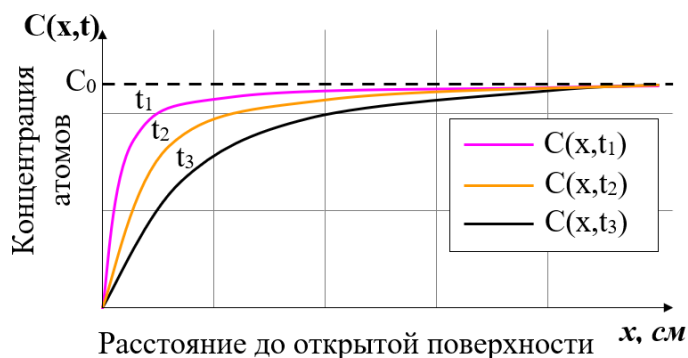


Рисунок 4 – Изменение концентрации диффундирующего нуклида по глубине топлива ($x, \text{ см}$) с течением времени ($t_1 < t_2 < t_3$)

Из рисунка 4 видно, что вблизи открытой поверхности топлива (при $x \rightarrow 0$) концентрация нуклида ниже, чем в глубине. С течением времени ($t_1 \rightarrow t_2 \rightarrow t_3$) значение концентрации атомов криптона снижается относительно начального уровня C_0 - происходит «обеднение» поверхностных слоёв топлива.

Для упрощения математического описания процессов, протекающих при хранении ОТВС, операциях транспортировки и нагрева, а также выдержке с постоянной температурой предлагается рассматривать два этапа:

– первый этап («нестационарный»), включающий период времени с момента окончания облучения ОТВС до начала дефектации и время её нагрева до заданной температуры;

– второй этап («стационарный»), который начинается с момента достижения стационарной температуры нагрева ОТВС и заканчивается с завершением дефектации.

При данном разделении на этапы, для описания миграции ^{85}Kr по глубине топлива при достижении стационарных условий (второй этап дефектации) может быть использовано выражение (3). Для удобства практического применения был осуществлён переход от реальных параметров эксперимента (времени и температуры) к, так называемым, «эффективным» параметрам времени и температуры.

Для осуществления данного перехода полагается, что коэффициент D зависит не от координат, а только от температуры (которая зависит от времени). Это позволяет ввести в уравнение (1) эффективное время ξ , такое, что: $\partial \xi = \frac{D(T(t))}{D(T_{\text{эфф}})} dt$. В этом случае,

после деления уравнения (1) на $\frac{D(T(t))}{D(T_{\text{эфф}})}$ и замены переменных (t на ξ), получаем

уравнение диффузии с постоянным коэффициентом диффузии при некоторой выбранной температуре (дефектации)

$$\frac{\partial C(\vec{r}, \xi)}{\partial \xi} = D(T_{\text{эфф}}) \cdot \nabla^2 C(\vec{r}, \xi) - \lambda C(\vec{r}, \xi) \cdot \frac{D(T_{\text{эфф}})}{D(T(t))}. \quad (5)$$

Если пренебречь вторым слагаемым уравнения (5), что справедливо для долгоживущих нуклидов и, в частности, для нуклида ^{85}Kr , то изменение концентрации ГПД в топливе можно представить в виде зависимости от эффективного времени (ξ). Значение ξ можно при этом вычислить по формуле

$$\xi = \int_0^t \frac{D(T(t'))}{D(T_{\text{эфф}})} dt' \approx \sum_i \frac{D(T_i) \cdot \Delta t_i}{D(T_{\text{эфф}})} = \sum_i \xi_i. \quad (6)$$

Таким образом, появляется возможность замены реальной зависимости изменения температуры ОТВС на первом этапе дефектации кусочно-постоянной функцией [3]: каждому участку с температурой T_i и длительностью t_i приписывается одна выбранная температура $T_{\text{эфф}}$, равная температуре второго этапа. Чтобы распределение концентрации ^{85}Kr по глубине топлива при $T_{\text{эфф}}$ было таким же, как и при реальной температуре (T_i), длительность каждого i -го участка (t_i) заменяется эффективным временем (ξ_i).

Переход к эффективному времени позволяет представить миграцию ядер ^{85}Kr в топливе после окончания облучения при меняющихся температуре $T(t)$ и коэффициенте диффузии $D(t)$ в виде процесса, протекающего при выбранной температуре $T_{\text{эфф}}$ за соответствующее эффективное время при постоянном коэффициенте диффузии $D(T_{\text{эфф}})$.

В результате преобразования выражения (3) были получены аналитические

соотношения, позволяющие рассчитать выход ^{85}Kr из ОТВС за время первого этапа дефектации (A_I), а также за время первого и второго этапов (A_{I+2})

$$A_I = 2a_V S \sqrt{\frac{D(T_{эфф})}{\pi}} \cdot \exp(-\lambda t) \cdot \sqrt{\xi}, \text{ Бк} \quad (7.1)$$

$$A_{I+2} = 2a_V S \sqrt{\frac{D(T_{эфф})}{\pi}} \cdot \exp(-\lambda t) \cdot \sqrt{\xi + \tau}, \text{ Бк} \quad (7.2)$$

где t – время выдержки ОТВС после облучения до начала дефектации, с; τ – время дефектации при $T_{эфф}$, с; λ – постоянная распада реперного нуклида, с^{-1} .

Для практического использования соотношений (7.1) и (7.2) в них осуществлён переход исчисления времени от секунд к часам, а объёма от см^3 к м^3 . Такие параметры, как объёмная активность криптона в топливе a_V , площадь открытой поверхности топлива S и значение эффективного коэффициента диффузии $D(T_{эфф})$, в данных выражениях были объединены в один эффективный коэффициент пропорциональности G (или «мера дефекта»)

$$G = \frac{120}{V_G} a_V S \sqrt{\frac{D(T_{эфф})}{\pi}} \exp(-\lambda t), \text{ Бк}/(\text{ч}^{1/2} \cdot \text{м}^3) \quad (8)$$

где V_G – объём газа в контуре стенда дефектации, м^3 .

При выполнении дефектации одной и той же ОТВС ($S = \text{const}$), на одном и том же стенде ($V_G = \text{const}$), через незначительные промежутки времени (для первичной и повторной дефектации выполняется: $a_V, \lambda t = \text{const}$) значение «меры дефекта» G будет косвенно определять размер суммарной площади открытой поверхности топлива в области дефекта.

Разница между A_{I+2} и A_I определяет активность ^{85}Kr , поступающего в контур стенда за время проведения второго этапа дефектации к моменту времени τ . Это позволяет получить аналитическое соотношение [3], которое связывает объёмную активность ^{85}Kr в контуре стенда дефектации с «мерой дефекта»:

$$a_{\text{exp}} = G \cdot (\sqrt{\xi + \tau} - \sqrt{\xi}) + a_f, \text{ Бк}/\text{м}^3 \quad (9)$$

где G – «мера дефекта», $\text{Бк}/(\text{ч}^{1/2} \cdot \text{м}^3)$; a_{exp} – значение объёмной активности ^{85}Kr в контуре стенда дефектации при постоянной температуре ОТВС, Бк; a_f – объёмная активность ^{85}Kr в контуре на момент достижения стационарной температуры ОТВС, $\text{Бк}/\text{м}^3$; ξ – эффективное время достижения «стационарного» этапа дефектации, ч; τ – время дефектации при постоянной температуре ОТВС, ч.

Отметим, что температура ГИК в процессе дефектации возрастает монотонно, а после достижения постоянного значения не снижается до окончания эксперимента. Таким образом, если равновесная температура в топливе была достигнута в момент t_{max} , за время дефектации должен найтись момент времени $t_k > t_{\text{max}}$, для которого будет выполняться условие

$$\psi = \frac{U_{\text{max}} - U_k}{\sqrt{(\Delta U_k)^2 + (\Delta U_{\text{max}})^2}} > 1.96, \quad (10)$$

где ψ – критерий выхода на равновесие; v_{max} – максимальная скорость выхода ^{85}Kr из топлива в процессе дефектации (достигается в момент времени t_{max}), Бк/ч; v_k – скорость выхода ^{85}Kr из топлива в момент времени t_k , Бк/ч; Δv_k и Δv_{max} – погрешности определения скоростей v_k и v_{max} , соответственно, Бк/ч.

Условие (10) означает, что скорость выхода ^{85}Kr из топлива v_k должна уменьшиться на величину, превышающую суммарную погрешность её определения в 1,96 раз. Если критерий выхода на равновесие ниже 1,96, нельзя утверждать, что равновесная температура в топливе была достигнута.

Исходя из выражения (8), для одной и той же ОТВС коэффициент G не должен зависеть ни от условий нагрева, ни от времени его проведения. Поэтому коэффициенты G_1 и G_2 , определённые по результатам первичного и повторного нагревов сборки, не должны различаться в пределах погрешности их определения. В связи с этим, для сопоставления результатов двух нагревов предложено использовать критерий ω , который вытекает из выражения (10)

$$\omega = \frac{|G_1 - G_2|}{\sqrt{(\Delta G_1)^2 + (\Delta G_2)^2}} < 1.96, \quad (11)$$

где G_1 и G_2 – коэффициенты пропорциональности, определённые по результатам первичного и повторного нагревов сборки, соответственно, Бк/с^{1/2}; ΔG_1 и ΔG_2 – погрешности расчёта коэффициентов пропорциональности G_1 и G_2 соответственно, Бк/с^{1/2}.

В третьей главе представлены результаты экспериментальной проверки аналитического соотношения (9).

Скорость накопления активности ^{85}Kr (v_i) в объёме стенда дефектации определяется с использованием следующего выражения

$$v_i = \frac{a_{i+1} - a_i}{t_{i+1} - t_i}, \quad \text{Бк}/(\text{ч} \cdot \text{м}^3) \quad (12)$$

где a_i и a_{i+1} – усреднённые значения объёмных активностей ^{85}Kr в контуре стенда дефектации, определённые в процессе выполнения измерений в моменты времени t_i и t_{i+1} , соответственно, Бк/м³; t_i и t_{i+1} – время выполнения i -го и $(i+1)$ -го измерения объёмной активности ^{85}Kr в контуре стенда дефектации с момента начала работ, ч.

Сопоставляя между собой выражения (9) и (12), было получено выражение, описывающее скорость накопления активности ^{85}Kr в контуре стенда дефектации после достижения стационарных условий (при $T = const$)

$$v(\tau_1, \tau_2) = \frac{G}{\sqrt{\xi + \tau_2} + \sqrt{\xi + \tau_1}}, \quad \text{Бк}/(\text{ч} \cdot \text{м}^3) \quad (13)$$

где $v(\tau_1, \tau_2)$ – скорость накопления активности ^{85}Kr в контуре стенда дефектации при постоянной температуре, Бк/(ч·м³); τ_1, τ_2 – время замеров объёмной активности ^{85}Kr ($\tau_1 < \tau_2$), ч.

Важным следствием аналитического соотношения (13) является снижение скорости выхода ^{85}Kr с течением времени при постоянной температуре нагрева. Для

определения значимости данного эффекта на результаты дефектации был проведён анализ экспериментов, поставленных с негерметичными ОТВС.

Сборки размещались в ГИК, уже нагретый до 200°C. Давление газа (воздуха) в контуре УСД было атмосферным. С периодичностью 1 раз в 45 минут проводилось измерение объёмной активности газа в ИК, которое включало: перемешивание газа по контуру за счёт включения на 15 минут газодувки с расходом порядка 20 дм³/мин; ожидание завершения переходных процессов в контуре, вызванных работой газодувки, длительностью 5 минут; процедуру измерений объёмной активности газа длительностью 5 минут.

Типичные результаты экспериментов приведены на рисунке 5 [4].

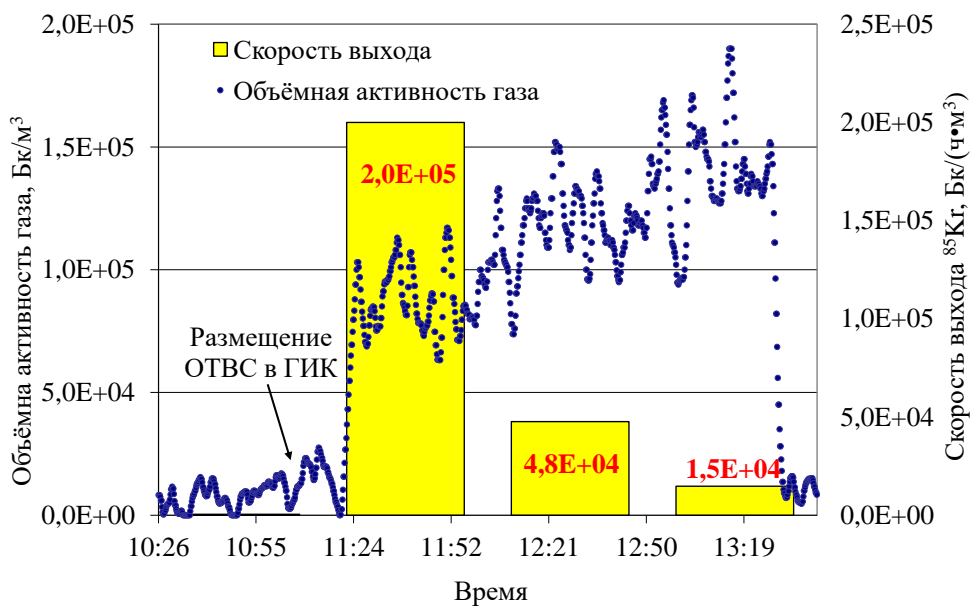


Рисунок 5 – Изменение активности газа при дефектации негерметичной ОТВС и изменение скорости выхода ⁸⁵Kr

Анализ экспериментальных данных, полученных при нагреве ГИК с негерметичными ОТВС до температуры 200°C, показал, что скорость выхода ⁸⁵Kr значительно снижается с течением времени (более чем в 10 раз всего за несколько часов). Следовательно, эффект обеднения поверхностных слоёв топлива действительно оказывает существенное влияние на результаты дефектации ОТВС с топливом дисперсионного типа.

Отдельный интерес представляла возможность численного предсказания экспериментальных данных с применением аналитического соотношения (9). Для этой цели в работе рассмотрены результаты, полученные в ходе дополнительных исследований ОТВС с нагревом ГИК до 200°C [4].

Регламент выполнения измерений в ходе экспериментов совпадал с рассмотренным ранее. Отличие второй части эксперимента от первой заключалось в продувке ИК с целью удаления активности ⁸⁵Kr, накопленной в ходе первой части эксперимента. Между первой и второй частями экспериментов ОТВС из ГИК не извлекалась, температура ГИК не менялась.

Типичное изменение объёмной активности ^{85}Kr (объёмной активности газа) в ИК УСД при экспериментах с негерметичными ОТВС приведено на рисунке 6 [4]. Дополнительно на рисунке приведены этапы эксперимента, время размещения ОТВС в ГИК и время измерений объёмной активности ^{85}Kr (измерения №1-№6).

По результатам первой части экспериментов определялись параметры аналитического соотношения (9). Значения параметра a_f для второй части эксперимента определялись по результатам измерений объёмной активности газа после продувки ИК. На основании известных параметров соотношения (9) был выполнен прогнозный расчёт изменения объёмной активности ^{85}Kr в ИК при второй части эксперимента. Результаты расчёта сравнивались с усреднённой активностью ^{85}Kr (a_i), определённой в ходе измерений №4-№6 (рисунок 7) [4].



Рисунок 6 – Изменение объёмной активности газа в ИК при экспериментах с ОТВС

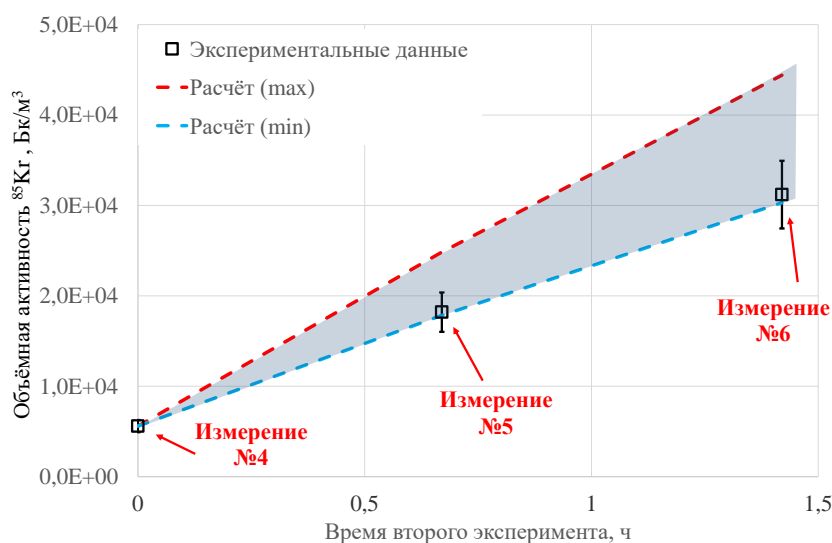


Рисунок 7 – Сопоставление экспериментальных (\square) и расчётных данных в ходе второй части эксперимента с ОТВС

Результаты, представленные на рисунке 7, указывают на согласование прогнозных расчётов с экспериментом в пределах имеющейся погрешности измерений. Это позволило сделать заключение о правильности заложенных в аналитические соотношения (7.1), (7.2) и (9) теоретических зависимостей.

В четвёртой главе представлены результаты исследования причин расхождения показаний УДГ-1Б и ГАММА-1П при нагреве ГИК с ОТВС до температуры 300°C, а также определения эффективности очистки газа от «мешающих» примесей.

Сопоставление показаний УДГ-1Б и ГАММА-1П приведено на рисунке 8. Из него следует, что активность ^{85}Kr в пробах газа (показания ГАММА-1П) была ниже предела обнаружения ($<5 \cdot 10^5 \text{ Бк/м}^3$) во всех экспериментах, кроме ОТВС №2. Показания же УДГ-1Б во всех случаях были выше $3 \cdot 10^6 \text{ Бк/м}^3$. Только по ОТВС №2 данные УДГ-1Б и ГАММА-1П согласуются друг с другом.

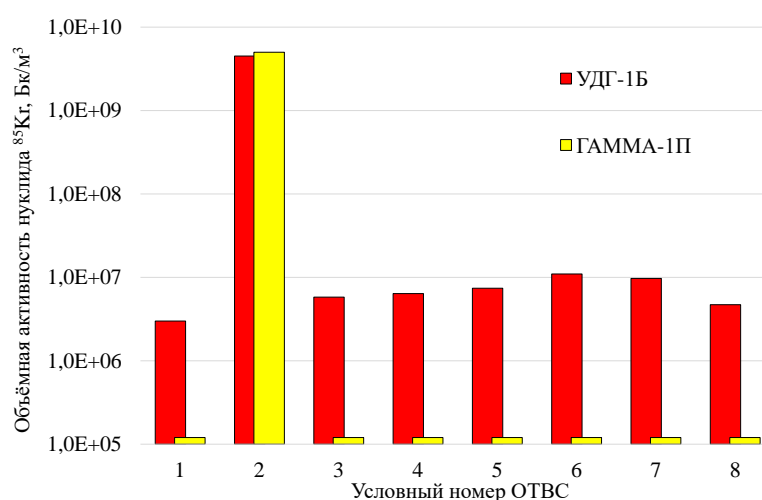


Рисунок 8 – Расхождение результатов измерений объёмной активности ^{85}Kr с использованием УДГ-1Б и ГАММА-1П

Для определения причин наблюдаемых расхождений был выполнен анализ динамики изменения показаний УДГ-1Б в процессе экспериментов с нагревом в ГИК герметичных ОТВС [5]. На рисунке 9 приведён типичный график изменения показаний УДГ-1Б в ходе нагрева ГИК с герметичной ОТВС до температуры 300°C. Также на рисунке приведены график изменения температуры ГИК и момент размещения ОТВС в ГИК.

Из полученных данных следует, что объёмная активность газа в ИК УСД находится на уровне фоновых показаний УДГ-1Б ($\sim 2,0 \cdot 10^4 \text{ Бк/м}^3$) до тех пор, пока температура ГИК не повышается до 280-300°C. Затем активность начинает возрастать и достигает $3,5 \cdot 10^6 \text{ Бк/м}^3$ к моменту завершения эксперимента.

На основании температурной калибровки УСД определено, что различие температур ОТВС и ГИК в процессе нагрева составляет 30 - 50°C. Таким образом, температуру ОТВС, при которой «мешающие» примеси начинают поступать в объём ИК, можно оценить на уровне 230-270°C.

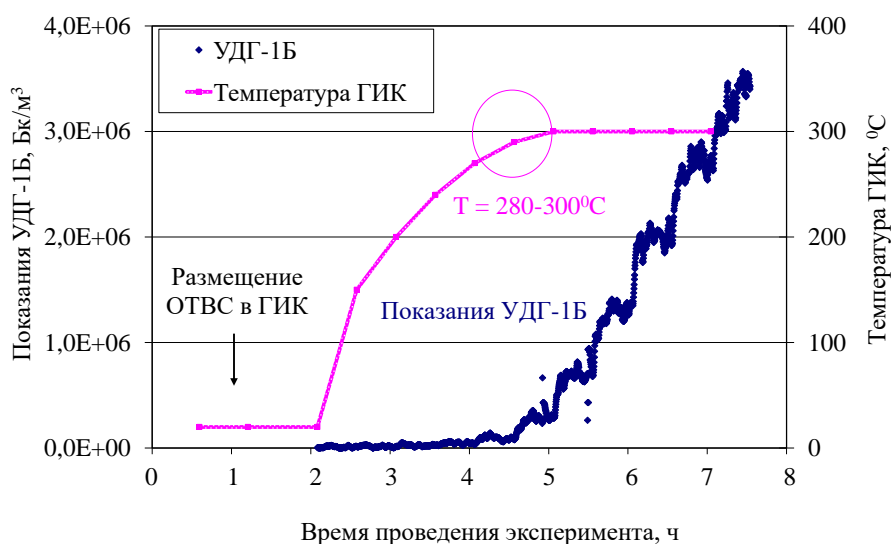


Рисунок 9 - Изменение показаний УДГ-1Б в ходе экспериментов с герметичной ОТВС при нагреве ГИК до температуры 300°C

Анализ дополнительных экспериментов, поставленных с герметичными ОТВС при нагреве до температуры 150°C, показал, что объёмная активность газа в контуре УСД во всех случаях не превышает $1 \cdot 10^5$ Бк/м³. Это подтверждает вывод о том, что выход «мешающих» примесей в газовый контур УСД начинается с температуры ОТВС выше 230°C.

По результатам лабораторного анализа проб газа со стенда дефектации, гамма-излучающих радионуклидов, влияющих на показания УДГ-1Б, обнаружено не было. По этой причине были рассмотрены бета-излучающие радионуклиды, которые могут образовываться при эксплуатации ЯЭУ (см. рисунок 10а). Также на рисунке для каждого нуклида приведено значение граничной энергии его бета-спектра.

Анализ проб газа с использованием методов спектрометрии бета-частиц показал, что граничная энергия бета-спектра «мешающих» радионуклидов находится на уровне 150 кэВ (рисунок 10б). Сопоставление граничных энергий бета-спектра нуклидов, представленных на рисунках 10а и 10б, показало, что к числу «мешающих» примесей могут относиться ^{129}I , ^{14}C и ^{35}S .

По результатам анализа ядерно-физических характеристик данных нуклидов было получено, что ^{35}S следует исключить из рассмотрения по причине его полного распада к моменту проведения эксперимента. Также следует исключить нуклид ^{129}I , поскольку для достижения наблюдаемой в эксперименте активности требовалась работа с открытым топливом, а «мешающие» примеси выходили при нагреве герметичных ОТВС. Таким образом, при дефектации ОТВС в ГИК, нагретом до 300°C, в ИК мог поступать только радионуклид ^{14}C [6, 7].

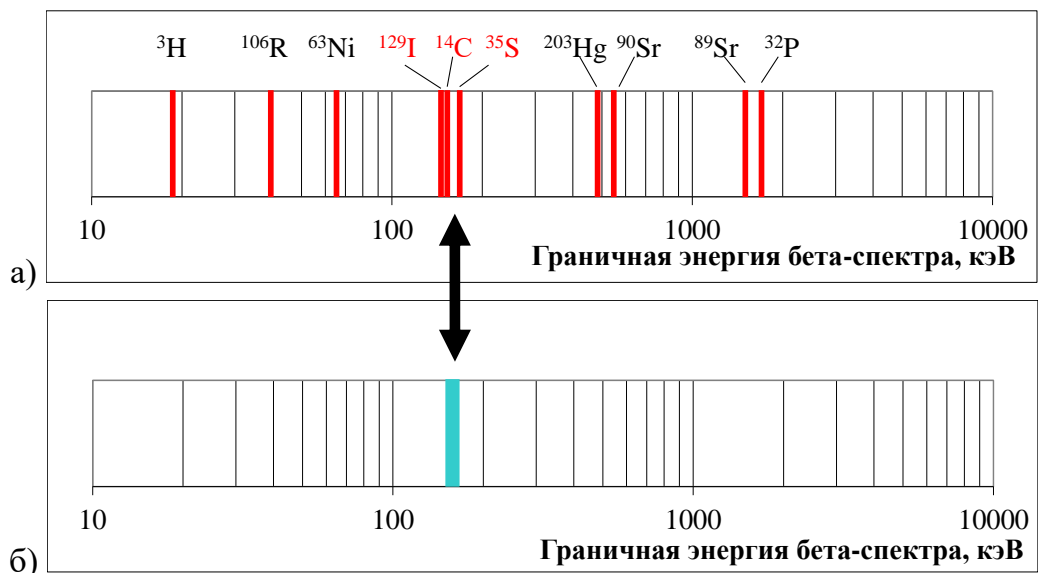


Рисунок 10. Граничная энергия бета-спектра для нуклидов, образующихся при эксплуатации ЯЭУ - (а) и идентифицированных при дефектации с нагревом ГИК до температуры 300°C - (б)

Экспериментальная проверка эффективности различных способов очистки газа от ^{14}C была выполнена с герметичными и негерметичными ОТВС на УСД при нагреве ГИК до 300°C. После нагрева ГИК к КМЦГ подключали систему очистки с разными типами сорбентов. На основании выполненных исследований была выполнена модернизация система очистки УСД. После проведения предложенной модернизации были выполнены дополнительные эксперименты с нагревом ОТВС в ГИК (см. рисунок 11). Показано, что показания УДГ-1Б и результаты лабораторных измерений (ГАММА-1П) согласуются друг с другом в пределах погрешности измерений (не более 30%).

По результатам модернизации системы очистки УСД был получен патент [8]. Модернизация позволила снизить объёмную активность радионуклида ^{14}C в газовом контуре стенда до уровня фоновых значений. Это обеспечило достоверное определение активности ^{85}Kr с применением штатной СРК (устройства УДГ-1Б).

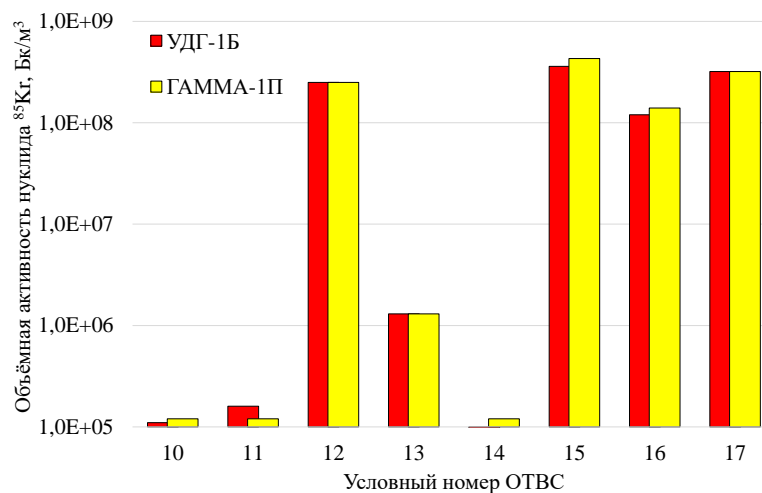


Рисунок 11 – Сопоставление результатов измерений объёмной активности ^{85}Kr с использованием УДГ-1Б и ГАММА-1П после модернизации

В пятой главе представлена методика обнаружения ОТВС с микродефектами в оболочках ТВЭЛОВ с топливом дисперсионного типа при вне реакторной дефектации «сухим» методом. Приведены результаты апробации данной методики с использованием специальных экспериментов, выполненных во ФГУП «НИТИ им. А.П. Александрова» с негерметичными ОТВС.

Существующие регламенты и программы дефектации сборок ЯЭУ транспортного назначения, предусматривающие использование УСД, были адаптированы к поиску ОТВС с микродефектами в оболочках ТВЭЛОВ. Помимо операций по дефектации сборок, в методику [9] вошли алгоритмы статистической обработки массивов экспериментальных данных, расчёта параметров аналитического соотношения (9) и отбраковки «ложных» результатов. Также в методику вошли средства и алгоритмы очистки газа (воздуха) в ИК УСД от ^{14}C , поступающего при нагреве ГИК с ОТВС до температуры 300°C .

Апробация разработанной методики была проведена по результатам рассмотренных ранее (рисунок 4) экспериментов с негерметичными ОТВС [9]. На рисунке 12 приведены данные по отношению коэффициентов G (G_1/G_2), рассчитанных для первого (G_1) и повторного (G_2) нагревов. Для сравнения, на рисунке также приведены данные по отношению объёмных активностей (^{85}Kr), полученных в ходе первого и повторного нагревов.

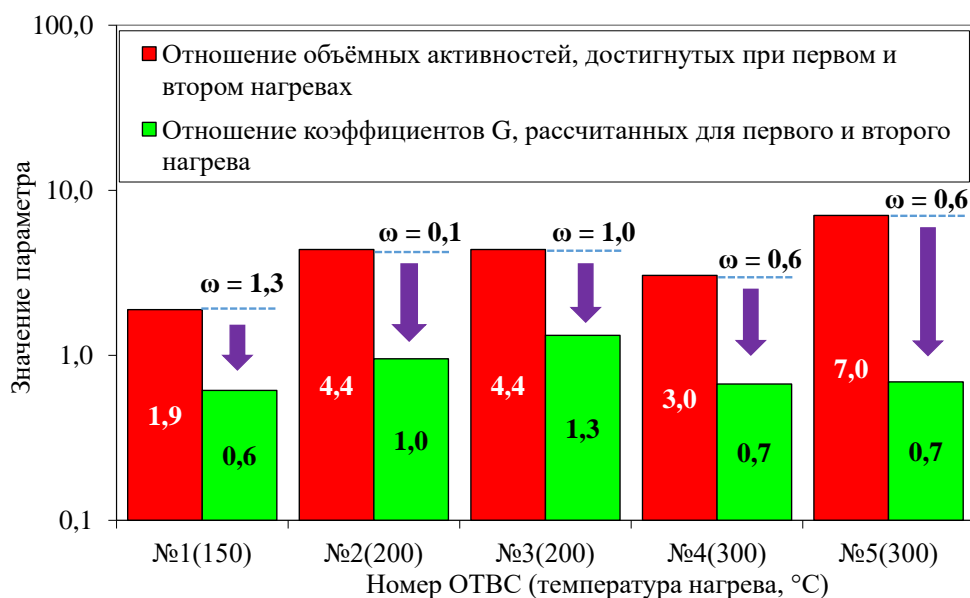


Рисунок 12 – Отношения объёмных активностей радионуклида ^{85}Kr и коэффициентов G при первичном и втором нагревах ОТВС. Значения критерия ω

Из рисунка следует, что повторный нагрев ОТВС приводит к существенному (от 1,9 до 7,0 раз) снижению объёмной активности ^{85}Kr в ИК по сравнению с первым нагревом. Это не позволяет однозначно трактовать результаты дефектации при их первичной обработке (без привлечения разработанных алгоритмов).

Повторная обработка экспериментальных данных с применением представленных в методике алгоритмов обработки (использующих аналитические

соотношения и критерии) показала, что «меры дефекта» G_1 и G_2 равны в пределах погрешности их расчёта (для всех рассмотренных ОТВС критерий ω меньше 1,96). Это позволяет с уверенностью говорить о наличии в составе рассмотренных ОТВС твэлов с микродефектами, а наблюдаемое при повторном нагреве снижение скорости выхода ^{85}Kr связано с эффектом «обеднения» поверхностных слоёв топлива.

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ И РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

1. Разработаны аналитические соотношения, позволившие связать объёмную активность ^{85}Kr в контуре стенда внереакторной дефектации с площадью открытой поверхности топлива негерметичной ОТВС. В данных соотношениях реальное время и температура заменены эффективными параметрами (эффективным временем и эффективной температурой). Суммарная площадь открытой поверхности топлива негерметичной ОТВС, объёмная активность ^{85}Kr в твэле и коэффициент диффузии свёрнуты в «меру дефекта» (G). Теоретически обоснованы алгоритмы расчёта G по результатам дефектации ОТВС. Переход от коэффициента диффузии D к «мере дефекта» G позволяет отказаться от проведения дополнительных дорогостоящих экспериментов по определению коэффициента диффузии.

2. При дефектации ОТВС в ГИК, нагретом до температуры 300°C , обнаружено поступление в ИК УСД радионуклида ^{14}C . Показано, что его присутствие повышает погрешность определения активности ^{85}Kr в контуре стенда дефектации с применением УДГ-1Б. Для поиска ОТВС с микродефектами оболочек твэлов в подобных условиях необходима организация трудоёмкого гамма-спектрометрического контроля с привлечением дорогостоящего оборудования. Для очистки газа (воздуха) в контуре УСД от радионуклида ^{14}C предложена модернизация системы очистки. После её включения в состав стенда объёмная активность ^{14}C была снижена до уровня фоновых значений. По результатам модернизации получен патент №2622107.

3. Разработанные алгоритмы, соотношения и критерии, а также предложения по порядку проведения нагрева ОТВС и очистке газа от «мешающих» примесей формализованы в виде методики обнаружения ОТВС с микродефектами в оболочках твэлов. Сопоставление «мер дефекта», рассчитанных по результатам первичного и повторного нагрева (G_1 и G_2), позволяет идентифицировать негерметичные ОТВС и отбраковать «ложные» результаты. Таким образом, удалось получить самостоятельную, замкнутую методику обнаружения сборок с микродефектами.

4. Экспериментально показано, что уже при температуре нагрева ГИК до 200°C происходит многократное снижение скорости выхода ^{85}Kr за время дефектации, что указывает на существенное влияние эффекта «обеднения» поверхностных слоёв топлива на получаемые результаты. Обработка результатов дефектации с использованием разработанных алгоритмов показала, что значения «мер дефекта», рассчитанных по результатам первичного и повторного нагрева негерметичных

ОТВС (G_1 и G_2), совпадают в пределах погрешности их определения. Прогнозные расчёты, выполненные с использованием разработанных аналитических соотношений, согласуются с результатами экспериментов в пределах погрешности измерений.

ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. Внереакторный контроль герметичности оболочек твэлов ОТВС ТЯЭУ / В.Г. Ильин, В.Н. Епимахов, В.В. Четвериков [и др.] // Проблемы и перспективы развития химического и радиохимического контроля в атомной энергетике (Атомэнергоаналитика-2017): восьмая научно-техническая конференция: материалы конференции; 30 мая – 01 июня 2017 г. / ред. Ю.В. Цапко. – СПб.: Изд-во ВВМ, 2017. – С. 391-394.

2. Краснопёров В.М. Основные закономерности развития негерметичности интерметаллических твэлов на остановленном реакторе / В.М. Краснопёров, Р.В. Фоменков, И.С. Орлёнков // Технологии и системы обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок: материалы IV-го научно-технического совещания «Атомэнергоаналитика-2007»: Вып. 6. - СПб.: Изд.-во «Менделеев», 2007. - С. 214 – 218.

3. Фоменков Р.В. Математическая модель выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных ОТВС с топливом дисперсионного типа / Р.В. Фоменков, А.В. Ельшин, Р.Э. Зинатуллин // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок: научно-технический сборник. - 2023. - N 1(31). - С. 16-30.58.

4. Фоменков Р.В. Апробация математической модели выхода долгоживущих газообразных продуктов деления из негерметичных облучённых тепловыделяющих сборок с топливом дисперсионного типа / Р.В. Фоменков, А.А. Ефимов, Р.Э. Зинатуллин // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок: научно-технический сборник. - 2023. - N 3(33). - С. 25-37.

5. Фоменков Р.В. Модернизация стенда дефектации ОТВС ЯЭУ транспортного назначения для идентификации микродефектов оболочек дисперсионных твэлов / Р.В. Фоменков, В.Н. Епимахов, Р.Э. Зинатуллин, А.А. Ефимов // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок: научно-технический сборник. - 2022. - N 4 (30). - С. 31-40.

6. Внереакторный контроль герметичности оболочек твэлов транспортных ЯЭУ / В.Н. Епимахов, В.В. Четвериков, В.Г. Ильин [и др.] // Радиохимия 2018: IX Российская конференция с международным участием: сборник тезисов докладов, г. Санкт-Петербург, 17-21 сентября 2018 г. – Санкт-Петербург, 2018 – С. 180.

7. Leak detection of irradiated fuel assemblies in naval marine plants / Vitalii Epimakhov, V.G. Ilyin, V.V. Chetverikov [et al.] // 18th Radiochemical Conference: Czech Chemical Society Symposium Series 16 (2). 49-268 (2018). - ISSN 2336-7202. -

<http://www.ccsss.cz>. - P. 172-173.

8. Патент № 2622107 Российская Федерация, G21C 17/00. Способ контроля герметичности оболочек твэлов отработавших тепловыделяющих сборок транспортных ядерных энергетических установок: опубликовано 13.06.2017 / В.Н. Епимахов, В.В. Четвериков, В.Г. Ильин [и др.].

9. Фоменков Р.В. Методика обнаружения ОТВС с микродефектами оболочек твэлов и результаты апробации заложенных в неё алгоритмов / Р.В. Фоменков, Р.Э. Зинатуллин // Технологии обеспечения жизненного цикла ядерных энергетических установок: научно-технический сборник. - 2023. - N 2(32). - С. 41-53.