

21. Дефекти на обвивките на ТОЕ - видове, ограничения, причини за появата и развитието им. Методи за контрол на херметичността на обвивките

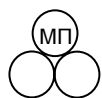
1.Наличие на радиоактивни изотопи в I контур.

Активността на топлоносителя от I контур се дължи на следните процеси:

- Попадане в топлоносителя на продукти на делене и трансурани поради наличието на нехерметични ТОЕ. По този начин в топлоносителя попадат изотопи като ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{90}Sr , ^{239}Np и редица други изотопи;
- Измиване от вътрешната повърхност на I контур на микроколичества метал. Известна част полепва по повърхността на ТОЕ и други ВКУ. Поради поглъщане на неутрони една част от метала се активира. По този начин в топлоносителя попадат т.н. активационни продукти – ^{60}Co , ^{54}Mn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{59}Fe , ^{51}Cr и други. Освен конструкционните материали, източник на активационни продукти са и малки примеси в добавяните вещества в I контур;
- Попадане в топлоносителя на продукти на делене и трансурани поради наличието на т.н. свободен уран, който се намира извън ТОЕ. Микроколичества свободен уран попадат със свежото ядрено гориво поради възможно замърсяване на повърхността. Поради характера на производствения процес и контрола на изходящата продукция, свободният уран по повърхността не може да създаде активност на топлоносителя по йодни изотопи, по-висока от 10^{-8} Ci/l. Основните количества свободен уран попадат в следствие на измиване на таблетки от ТОЕ с директен контакт гориво/топлоносител. Поради наличието на свободен уран активността на топлоносителя след презареждане, когато се предполага, че са отстранени нехерметичните касети, може да достигне високи стойности;
- Активиране на изотопи на кислорода от водата вследствие на (n,p) реакции. Реакцията $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$ е с основен принос за високите стойности на гама-фона около I контур.

В процеса на експлоатация е възможно нарушаване на херметичността на обвивката на топлоотделящите елементи. Дефектите в обвивката се класифицират като микро- и макроенехерметичности. При микропукнатини газови продукти на делене проникват в топлоносителя. При макроенехерметичност е възможен директен контакт на топлоносителя с горивото, при което могат да попаднат във водата от I контур и твърди продукти на делене.

Експлоатационните предели за безопасна и нормална експлоатация за реактори ВВЕР-440 и ВВЕР-1000 са следните:



Дефекти на обвивките на ТОЕ

НФП-
440,1000

ВВЕР-440	ВВЕР-1000
Предела за безопасна експлоатация Ci/l, Bq/l	
Сумарната специфична активност на топлоносителя в I контур по сума от изотопите на йода (I131, I132, I133, I134, I135), трябва да бъде под 1×10^{-2} Ci/l (3.7×10^8 Bq/l)	Сумарната специфична активност на топлоносителя в I контур по сума от изотопите на йода (I131, I132, I133, I134, I135), трябва да бъде под 5×10^{-3} Ci/l (1.85×10^8 Bq/l)
Касетите, използвани отново следващия горивен цикъл трябва да са със специфична активност по I131 под 1×10^{-4} Ci/l (3.7×10^6 Bq/l) (Резултати от КХО, приведени към момента на спиране на реактора)	Касетите, използвани отново следващия горивен цикъл трябва да са със специфична активност по I131 под 1×10^{-4} Ci/l (3.7×10^6 Bq/l) (Резултати от КХО, приведени към момента на спиране на реактора)
Предела за нормална експлоатация Ci/l, Bq/l	
Сумарната специфична активност на топлоносителя в I контур по сума от изотопите на йода (I131, I132, I133, I134, I135) трябва да бъде под 2×10^{-3} Ci/l (7.4×10^7 Bq/l)	Сумарната специфична активност на топлоносителя в I контур по сума от изотопите на йода (I131, I132, I133, I134, I135) трябва да бъде под 1×10^{-3} Ci/l (3.7×10^7 Bq/l)

Уран-двуокисното гориво се използва при водно-водни реактори и високотемпературни реактори поради редица положителни качества:

- висока температура на топене (около 2800 °C при свежо гориво, до 2670 °C при дълбочина на изгаряне 40 MWd/kgU);
- висока радиационна устойчивост до големи дълбочини на изгаряне;
- съвместимост с обвивката на ТОЕ;
- химическа инертност по отношение на вода при работни температури;
- голяма задържаща способност на продуктите на делене. Горивото е първата бариера по отношение на разпространението на радиоактивни вещества.

Основният недостатък на UO_2 е ниската топлопроводност и плътност. Теплопроводността на урановия двуокис е малка и при това намалява повече от два пъти с увеличаване на температурата. Теплопроводността намалява и с увеличаването на дълбочината на изгаряне. Ниската топлопроводност води до високи температури в центъра на ТОЕ.

ТОЕ работят при много високи температурни разлики между централната част и обвивката и високи стойности на интегралния неутронен поток. Интегралният неутронен поток (флуенс) достига до 10^{21} неутрона/ cm^2 . При такъв поток се наблюдава увеличение на обема на горивото (разбухване) и натрупване на газообразни продукти на делене под обвивката на ТОЕ. Измерените работни налягания в ТОЕ са около 1 МРа.

Цирконият с 1 % ниобий (сплав Н-1) има добро съчетание на ядрени и физически характеристики с механични и корозионни свойства:

- изотопите от сплавта се активират в много малка степен;
- при големи интегрални неутронни потоци изменението на дължината на ТОЕ е малко над производствените допуски, и тъй като конструкцията на касетата позволява да се компенсира това увеличение, не са наблюдавани изкривявания на ТОЕ.

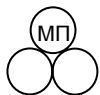
Основен недостатък на циркония е екзотермичното окисление във въздушна среда или среда от въздух и пара при температури над 1200°C .

При продължителна експлоатация сплавта Н-1 се окислява незначително - оксидният слой на повърхността е не повече от $5\text{ }\mu\text{m}$ и съдържанието на водород е около 0.003 % при дълбочина на изгаряне около 20 MWd/kgU .

2. Причини за повреждане на ТОЕ по време на експлоатация

- Производствени дефекти;
- Чужди тела в топлоносителя (например стружки);
- Триене между дистанциониращата решетка и топлоотделящите елементи при вибрации (фретинг);
- Взаимодействие таблетка/циркониева обвивка

Към производствените дефекти с най-голям принос към повреждане на ядреното гориво се отнасят некачествени заварки на долните и горни крайници на ТОЕ. Некачествената заварка може да доведе до загуба на хелия от ТОЕ и влошаване на топлопредаването, проникване на вода в ТОЕ. Наличие на вода в ТОЕ освен от нехерметичност може да има поради навлажняване на таблетките. Дори 1 mg вода на ТОЕ е достатъчно, за да предизвика хидратация на вътрешната част на циркониевата обвивка. Образува се ZrH_4 , който е с по-



малка плътност от Zr и се получават набъбвания с пукнатини, развива се вторичен дефект. Тези набъбвания могат да доведат до образуване на големи дупки в обвивката, в англоезичната техническа литература това са т.н. “слънчеви избухвания”.

Чуждите тела са една основна причина за повреждане на ТОЕ. Известни са в миналото редица серии от откази на ядрено гориво в централи, дължащи се на стружки, появили се след ремонт на парогенератори. Някои производители на ядрено гориво поставят решетки против чужди тела в долната част на касетите. Това е една мярка, която може да бъде полезна, но може и да доведе до значително повреди на горивото при блокиране на решетката от някакъв предмет. Решетките са особено неприложими за гориво за ВВЕР-440 с чохли, при които не е възможно охлаждане от съседни касети в случай на блокиране на входа на касетата.

При интензивните потоци от топлоносител в активната зона от порядъка на 5 m/s са възможни вибрации на дистанциониращите решетки около едно средно положение и триене с натиск между решетка и ТОЕ (фретинг). Изтриването може значително да се ускори след спиране на реактор и изключване на почистването на водата. За кратко време в топлоносителя се натрупват корозионни продукти – микрочастици магнетит, които играят ролята на абразив.

При дълбочина на изгаряне около 20-25 MWd/kgU настъпва контакт между таблетката и циркониевата обвивка. При значителни напрежения на разтягане от порядъка на 200 MPa/m са възможни повреди на обвивката. Основно тези напрежения възникват поради разликата в коефициентите на топлинно разширение. Урановият двуокис е с два пъти по-голям коефициент на топлинно разширение, отколкото циркониевите сплави. Поради тази причина са възможни интензивни взаимодействия таблетка/обвивка особено при бързи преходни процеси, при които пластичните деформации са затруднени. Освен това горивният стълб от таблетки си изменя височината с температурата и дълбочината на изгаряне със сантиметри. При спиране и намаляване на температурата горивният стълб намалява височината си, но при наличие на отчупени парченца от таблетки, които засядат между таблетката и обвивката, стълбът може да не се върне до първоначалното си положение. При наличие на междина между таблетките, външното налягане свива циркониевата обвивка и се получава т.н. бамбуков ефект. В местата, където циркониевата обвивка е с намален диаметър и има междина между таблетките има повишено взаимодействие обвивка/таблетка.

Увеличението на обема на горивото е съпроводено с натрошаване на уран-двуокисните таблетки радиално и напречно, което е още една причина за увеличаване на взаимодействието таблетка/обвивка.

С цел намаляване на взаимодействието таблетка/обвивка повечето производители на ядрено гориво поставят ограничения за:

- Линеината мощност като функция на дълбочината на изгаряне;
- Големината и скоростта на увеличение на мощността на реактора.

3. Радиохимични методи за диагностика на активната зона

Целите на РХ методи за диагностика на АЗ са следните:

- Контрол на състоянието на горивото по активност на йодните изотопи и сравнение с експлоатационните предели за безопасна и нормална експлоатация;
- Диагностика на състоянието на горивото в АЗ - брой ТОЕ с газови неплътности, брой ТОЕ с директен контакт на горивото с топлоносителя; количество на свободния уран в АЗ, състояние на системите за почистване на I контур, състояние пред развитие на вторичен дефект;
- Прогнози за развитието на дефектите в АЗ и рекомендации към режима на експлоатация;
- Ограничаване на броя на касетите, подлежащи на КХО при непълен обем на КХО;
- Обосноваване на връщането на статистически нехерметични касети в АЗ, които не са достигнали критерия за отказ;
- Идентифициране на причините за отказите на ЯГ.

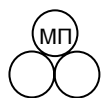
4. Диагностика на състоянието на активната зона по време на работа на реактора

Чрез радиохимия и гама-спектрометрия се определя специфичната концентрация (най-често в Ci/l) на изотопи на йод, цезий, стронций и много други. ^{239}Np се оценява чрез алфа-броене или алфа-спектрометрия.

Освен по специфична активност (Ci/l , Bq/l), за характера на нехерметичността се съди по следните характеристики, определени чрез гама- и алфа-спектрометрия:

- Наличието само на изотопи на летливи елементи или инертни газове (Xe , Kr) показва наличието на газови неплътности и липсата на пряк контакт на гориво с топлоносител;
- Наличието на изотопи на елементи като Ba , Sr , Np показва наличието на пряк контакт.

За степента на нехерметичност (брой нехерметични ТОЕ, размери на неплътността) се съди по отношението между активностите на изотопи на един и същ елемент. В Таблица 21.1 са показани периодите на полуразпадане на изотопите на йода.



Първата стъпка при оценка на степента на нехерметичност е измерените активности да се нормират към активността за съответния изотоп в ядреното гориво. Най-често се нормира към активността в един ТОЕ. Ако, например, характерното време на излизане на йод от ТОЕ е около 1 ден, то в топлоносителя нормираната активност по краткоживущите изотопи ^{134}I и ^{132}I ще бъде много малка. Ако активността по ^{134}I е значителна, то характерната скорост на излизане от ТОЕ тогава е от порядъка на минути, или това означава, че има директен контакт с топлоносителя. Освен от директен контакт с топлоносителя, ^{134}I може да се дължи и на значителни количества свободен уран в активната зона. Много от методиките оценяват свободния уран в зоната въз основа на активността по ^{134}I , като за да се избегне възможната грешка поради директен контакт, се анализира историята на експлоатацията – състоянието в края на миналата кампания се сравнява със състоянието в началото на кампанията, когато се предполага, че основната активност по ^{134}I се дължи на свободния уран.

Методиката, наречена “Надеждност на ядрено гориво”, дава активността на ^{131}I в I контур в $\mu\text{Ci/l}$ или Bq/l , като се изважда активността на ^{131}I , дължаща се на свободния уран. Свободният уран от своя страна се оценява чрез ^{134}I . Най-добра “надеждност” има при малки активности.

Таблица 21.1. Характеристики на изотопи, използвани за диагностика на състоянието на горивото

ИЗОТОП	$T_{1/2}$
^{131}I	8.04 d
$^{132}\text{I}^{(*)}$	2.30 h
^{133}I	20.8 h
^{134}I	52.6 min
^{135}I	6.61 h
^{91}Sr	9.75 h
^{92}Sr	2.71 h
^{139}Ba	84.9 min

(*) ^{132}I се получава от ^{132}Te , периодът на полуразпадане на който е 2.91 d.

Приблизителната активност на всички изотопи на йода при значителна разхерметизация и директен контакт с топлоносителя на горивото от един теплоотделящ елемент и работещо СВО е около 10^{-4} Ci/l .

При наличие на разхерметизирани ТОЕ се наблюдава т.н. “спайк ефект” (изхвърляне, пик) при промяна на мощността. При промяна на мощността, независимо от посоката, се наблюдава силно пиково увеличение на активността по изотопи на йода и на цезия поради измиване от областта на дефектите. Същият ефект се наблюдава след спиране на блока. За оценка на степента на излизане на йод в топлоносителя при спиране може да се използват наблюденията за наличие на спайкове и за големината им по време на работа.

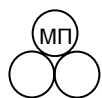
За намаляване на обема на КХО по време на ППР е необходимо да се определят кои касети са съмнителни за разхерметизация. Това се прави като се определи дълбочината на изгаряне на разхерметизираните касети. Дълбочината на изгаряне се определя по отношението $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$. Това отношение се определя чрез спектрометрия на топлоносител по време на “спайк”, тъй като през останалото време отношението се усреднява от разхерметизирани касети и от свободен уран.

Световната практика по отношение на диагностиката на горивото в активната зона по време на работа е пробоотбор и анализ на топлоносител в лабораторни условия, съчетано с он-лайн гама-спектрометрия директно до тръба с вода от I контур. Най-важният резултат на директната гама-спектроскопия е моментът на повишение на активността, който може да бъде съпоставен с някое технологично събитие.

Силно пречеща реакция, която създава основния гама-фон около I контур, е реакцията с бърз неутрон $^{16}\text{O}(\text{n},\text{p})^{16}\text{N}$ с период на полуразпадане 7.1 s, при което се излъчват гама-кванти с много висока енергия - 6.13 MeV (75 %), 7.1 MeV (7 %). В 18 % от случаите бета-преходът е до основно състояние и не се излъчва гама-квант. Прагът на реакцията е 11 MeV, сечението на реакцията, усреднено по спектъра на делене на неутроните, е $0.19 \cdot 10^{-4}$ b. Тази пречеща реакция се преодолява като се създава закъснение от поне няколко минути от пробоотбора до спектрометъра.

Реакцията $^{16}\text{O}(\text{n},\text{p})^{16}\text{N}$ е пречеща за директната гама-спектроскопия, но в същото време е и полезна, защото се използва за контрол на възможни протечки от I във II контур. Ако чрез гама-спектроскопия на пара от II контур се докаже наличието на ^{16}N във II контур, то това може да се дължи единствено на протечки в парогенераторите.

Ако продукти на делене попадат в топлоносителя веднага след акта на делене (секунди), е възможна *регистрацията на закъсняващи неутрони непосредствено до тръбопроводите от I контур*. Пречеща реакция с излъчване на неутрони е избиването на протон от бърз неутрон от изотоп на кислорода по реакцията $^{17}\text{O}(\text{n},\text{p})^{17}\text{N}$. При разпадането на ^{17}N чрез бета-преход до ^{17}O , ядрото на ^{17}O е в във възбудено състояние с голяма енергия,



сравнима с енергията на връзка на един неутрон, при което е възможно излъчването на неутрон. В естествената изотопна смес ^{17}O е 0.037 %, сечението за реакцията, усреднено по спектъра на неутроните на делене, е $5.2 \cdot 10^{-6} \text{ b}$, прагът на реакцията е 8 MeV.

Закъснението по време се определя от периода на полуразпадане на ^{17}O , който е 4.174 s. За да се отличат закъсняващите неутрони от продуктите на делене, които са с по-голям период на полуразпадане, фонът от ^{17}O се потиска чрез изкуствено увеличаване на времето на протичане на топлоносителя чрез допълнителен тръбопровод, водещ до детектора на неутрони.

В топлоносителя на I контур попадат освен продукти на делене и трансурани, които са главно алфа-емитери: ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu (само бета-емитер), ^{241}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm . Трансураниите се натрупват по повърхността на стоманени детайли от I контур. Оказва се, че железните хидроокиси по повърхността абсорбират и концентрират трансурани. Това трябва да се има в предвид при ремонти и обработка на ВКУ и повърхности от I контур, тъй като съществува опасност от вдишване на частици прах съдържащи алфа-емитери.

За някои типове реактори в възможно определянето на положението на касетата с разгерметизиран ТОЕ чрез внасяне на локални смущения в АЗ. При внасяне на локални смущения в близост до касета с разгерметизиран ТОЕ се наблюдава увеличение на активността на топлоносителя.

В кипящите корпусни реактори този метод се използва рутинно, тъй като компенсацията на реактивността се извършва по два начина: чрез изгарящ поглътител (ИП) в началото на кампанията и чрез извличане на компенсиращи органи за регулиране след изгарянето на ИП.

Недостатък на метода е създаване на локални смущения и промяна енергоразпределението, което може да доведе до разгерметизация на гориво.

5. Диагностика на състоянието на активната зона при спрял реактор

При спрял реактор ТОЕ се контролират за херметичност в специален контейнер (пенал) в басейна за отлежаване на касетите. Една по една касетите се поставят в този контейнер, контейнерът се уплътнява и се създава над и подналягане с цел извеждане на продукти на делене във водата от пенала. Проби от водата се анализират чрез гама-спектрометрия. Възможно е прилагането и на филтри.

Чрез пеналния метод може да се съди за състоянието на горивото по активността на ^{131}I , ^{137}Cs , ^{134}Cs . Ако е изминало много време от спирането на реактора до прилагането на пеналния метод, то поради разпадането на ^{131}I се използват изотопите ^{137}Cs , ^{134}Cs .

Недостатъците на метода са:

- Много време е необходимо за изследването на една касета;
- Тъй като контейнерът за изпитания се намира в БОК, необходимо е да се транспортира касета от АЗ до пенала, или от АЗ до БОК и от БОК до пенала. Извършват се премествания във вертикална посока и премествания в хоризонтална посока;
- Налага се пробоотбор и спектрометрия в лабораторни условия. Резултатите не се получават в момента на хидравличните изпитания.

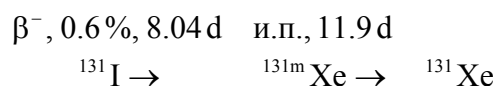
В последните години поради повишаване на изискванията за качество на горивото се изисква контрол, който да обхваща за къс период (няколко дни, седмица) 100 % от касетите. Тези методи, известни като “сипинг тест”, са количествени и качествени. Предимството им е, че за около 1 денонощие може да се изследват 100 % от горивото.

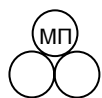
КХО може да се извършва без преместване на касета и с преместване на касета във вертикална посока.

КХО в АЗ без преместване на касета се извършва като върху една или няколко касети (3, 5, 7) се постави устройство, което прекратява за известно време естествената циркулация на водата и поради това се повишава температурата на касетите под устройството. От водата над всяка касета се взима проба за последващ анализ в лаборатория. Този метод вече не се използва.

КХО с преместване на касета във вертикална посока се извършва като касета се повдигне от АЗ поне на 3 m над АЗ, в следствие на което се понижава външното налягане. При наличие на дефект, продукти на делене постъпват в топлоносителя. Възможен е пробоотбор за анализ в устойтсво върху машината за презареждане или барботиране с газ (въздух) и on-line анализ на газообразни продукти на делене.

Детектират се гама-линии или бета-часици. При детектиране на ^{133}Xe ($T_{1/2} = 5.24$ дни, $E_{\gamma} = 81 \text{ keV} - 38 \%$) или ^{131}Xe за времена след спирането почвече от 20 дни ($T_{1/2} = 11.9$ дни, $E_{\gamma} = 164 \text{ keV} - 1.96 \%$). При ^{131}Xe има едно допълнително закъснение по време, тъй като веригата на получаване е следната:





Поради ниските енергии на двете линии е необходим само сцинтилационен детектор с тънък кристал NaI(Tl). Използува се и пластмасов сцинтилатор.

Сипинг тест е възможен и в БОК като се използва изотопът ^{85}Kr поради дългия период на полуразпад – 10.7 г, ^{85}Kr е чист бета-емитер.

Развитието на методиките след 1990 г. показва, че при повдигане на касета се постига много по-голяма чувствителност. Повдигане с 3 m е приблизително еквивалентно на загряване на касета с около 100 градуса, поради което нагряването като методика е изоставено.

Отстраняването на касета от по-нататъшна експлоатация води до замяна с нееквивалентна касета и асиметрия на активната зона в продължение на много кампании.

Касетите с дефекти се съхраняват в херметични пенали в БОК. В хранилището за отработено гориво дефектни касети се съхраняват в херметични контейнери.

ВЪПРОСИ И ЗАДАЧИ:

1. На какво се дължи активността на I контур по време на работа на реактора?
2. На какво се дължи активността на I контур при спрял реактор?
3. Ако в I контур се наблюдават само ^{60}Co , ^{54}Mn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{59}Fe , ^{51}Cr има ли разхерметизирани ТОЕ?
4. Кои изотопи са наблюдават при директен контакт на горивото с топлоносителя?
5. Ако в топлоносителя не се наблюдава ^{134}I , има ли свободен уран в активната зона?
6. Ако в топлоносителя не се наблюдава ^{134}I , има ли ТОЕ с директен контакт?
7. Какво е това “спайк ефект”?
8. Кой метод е по-експресен – сипинг тест или пенален метод?
9. Може ли да се определят касетите с възможна разхерметизация по отношението $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$?
10. Избройте възможните причини за разхерметизация на горивото.