

Выход газовых продуктов деления из дефектных твэлов реактора БОР-60

КРАСНОЯРОВ Н. В., КОНЯШОВ В. В., ПОЛЯКОВ В. И., ЧЕЧЕТКИН Ю. В.

УДК 621.039.548.8

Быстрые реакторы с натриевым теплоносителем могут эксплуатироваться при значительном числе дефектных твэлов в активной зоне, допустимое число последних зависит от возможной степени очистки контура и определяется доступностью оборудования во время ремонтных работ. Для предварительной оценки радиационной обстановки после работы реактора с дефектными твэлами необходимо знать их число в каждый период эксплуатации.

Экспериментальное изучение характера и определение доли выхода газовых продуктов деления (ГПД) при образовании дефекта в твэле и дальнейшей эксплуатации необходимо не только для оценки числа дефектных твэлов, но и для изучения механизма их разрушения. Известные оценки выхода ГПД проводились на основе единичных экспериментов, некоторые — на искусственных дефектах; полученные результаты отличаются в десятки раз. Вследствие этого при проектировании реакторов и разработке твэлов используются завышенные оценки выхода ГПД из горючего и из-под оболочки (табл. 1).

Эксплуатация реактора БОР-60 при высоких тепловых нагрузках и высоком выгорании позволила выявить и проанализировать большое число случаев образования дефектов с выбросами газовых продуктов деления.

Условия облучения. Методика измерений

Штатные пакеты реактора БОР-60 имеют по 37 твэлов диаметром 6 мм с горючим из спеченной UO_2 и газовыми сборниками объемом $\sim 12 \text{ см}^3$. Средний вес ^{235}U в одном твэле 56 г. Предельная температура оболочки твэлов толщиной 0,3 мм из стали ОХ16Н15МЗБ составляла $700^\circ C$. Температура натрия на выходе из реактора при мощности 60 Мвт достигала $530-550^\circ C$, максимальная тепловая нагрузка 1100 квт/л (500 вт/см). В твэлах достигнуто выгорание до 10,7%.

Определение радиоактивности ГПД в газовых полостях реактора и насоса проводили детекторами NaI(Tl) размером $70 \times 70 \text{ мм}$ и Ge(Li) объемом 11 см^3 в защите с коллиматорами, установленными над участком газо-

Сравнение результатов определения выхода ^{133}Xe и ^{135}Xe из дефектных твэлов

Таблица 1

Реактор	Горючее	Выгорание, %	Удельное тепловыделение, вт/см	Характер дефекта	Выход, %		Литература
					^{133}Xe	^{135}Xe	
ЕВР-II	$(UPu)O_2$	0,88	390	Искусственный, диаметр 0,012 см Значительное разрушение	0,62	0,30	[1]
ЕВР-II	$(UPu)O_2$	0,38—7,9	220—520		2—3	0,4—2,1	[2]
Натриевая петля БР-5	$(UPu)O_2$	0,39	490	Искусственный, диаметр 0,075 см 5 твэлов потеряли газ, 5 твэлов значительно разрушились	16	0,7—1,6	[3]
	PuO_2	6,7			1,8	0,14	[4]
БОР-60 (расчет)	UO_2	10	500	Значительное разрушение	40	14,5	[5]

вой линии. Время доставки газа 2—5 мин. Эффективность регистрации детекторов определяли по данным работы [6]. Погрешность измерения радиоактивности газа не превышала 30%, что было подтверждено анализом газовых проб.

Изменение радиоактивности в газовой полости реактора

Характер изменения удельной активности ^{133}Xe и ^{135}Xe в газовой полости реактора в некоторые периоды эксплуатации показан на рис. 1. (Радиоактивность в газовых полостях насосов значительно ниже, чем в реакторе, и может не учитываться при анализе.) Выявлены следующие основные закономерности:

1. Наличие значительных и быстрых выбросов радиоактивности. В выбросе величина радиоактивности ^{133}Xe выше, чем ^{135}Xe . Сразу после выброса радиоактивность ГПД падает со скоростью, определяемой периодом полураспада.

2. Перед некоторыми выбросами, в частности перед первым (23.II.1972 г.), происходит постепенное увеличение удельной активности ГПД с возрастанием доли более короткоживущего изотопа ^{135}Xe .

3. Показания системы контроля герметичности оболочек твэлов (КГО) по запаздывающим нейтронам в большинстве случаев не изменяются в моменты газовых выбросов. Увеличение показаний системы КГО происходит через несколько недель после газовых выбросов и сопровождается возрастанием радиоактивности ^{135}Xe .

4. Выбросы радиоактивности ГПД происходят при стационарной мощности или в момент остановки реактора системой медленной аварийной защиты (МАЗ).

Анализ выбросов радиоактивности

Первый газовый выброс, превышающий наблюдавшиеся ранее при работе с пакетом твэлов специальной негерметичной конструкции в 10—50 раз и характеризующийся значитель-

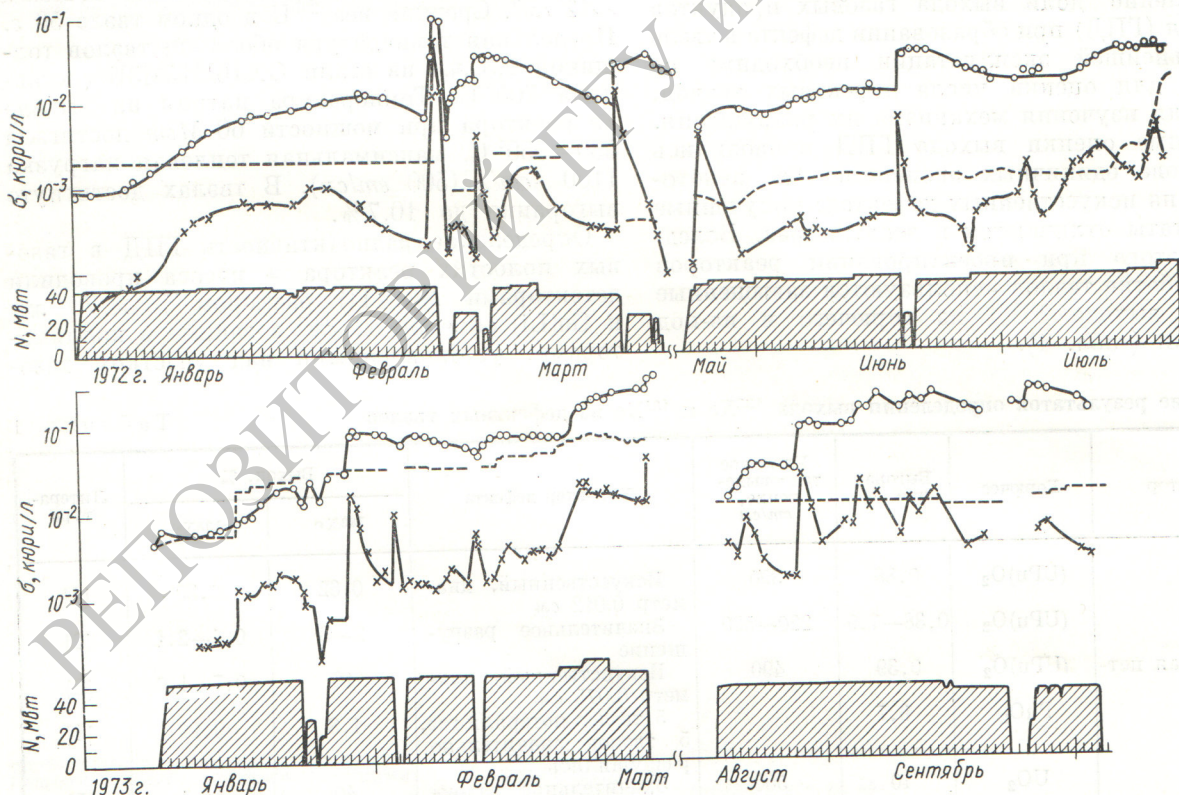


Рис. 1. Изменение радиоактивности ^{133}Xe и ^{135}Xe в газовой полости реактора BOR-60 (σ — удельная активность газа):

○ — ^{133}Xe ; - - - - - показания системы КГО, отн. ед.; × — ^{135}Xe .

ным выбросом короткоживущих ГПД, произошел 23.II.1972 г. при достижении выгорания в штатных твэлах свыше 7%. Величина этого выброса и последующих аналогичных не зависит от времени облучения и числа пакетов негерметичной конструкции в активной зоне, и, следовательно, эти выбросы не могут быть связаны с их работой. Анализ наблюдавшихся выбросов радиоактивности в газовой полости реактора дан в табл. 2.

Выбросы радиоактивности ГПД происходят при различных режимах работы реактора, не имеют тенденции к увеличению в конце микрокампаний и, следовательно, не могут быть объяснены выходом газов через ранее образовавшиеся дефекты.

При выгорании свыше 7% количество стабильного газа под оболочкой превышает 100 н.см^3 . Раскрытие микродефекта при перепаде давления более 20—30 *ата* должно сопровождаться практически полным выбросом накопленных газов из-под оболочки. Так как появление дефектных твэлов при выгорании в них ниже 5% маловероятно, давления в твэлах, а следовательно, и количества выброшенных газов должны отличаться от средних не более чем в полтора раза. Действительно, в семи случаях из проанализированных семнадцати

выход ^{133}Xe отличается от средней величины 5,3% не более чем на 35%, а в остальных случаях кратен этой величине со степенью кратности 2—4. Это позволяет заключить, что наименьшие выбросы газовых продуктов деления соответствуют разгерметизации одного твэла.

Статистическая оценка погрешности экспериментального определения величины выброса невозможна вследствие физического разброса, обусловленного разницей условий облучения, выгораний и т. д. В качестве первого приближения погрешности принят среднеарифметический разброс экспериментально определенных величин. Минимальные значения доли выброса (3,6 и 3,4%) соответствуют случаям разгерметизации, происшедшим вскоре после подъема мощности. При этом выход радиоактивности ^{133}Xe под оболочку твэла может не достигать равновесной скорости и такие выбросы не типичны.

Таким образом, при разгерметизации одного штатного твэла БОР-60 выброс в газовую систему ^{133}Xe составляет $(5,3 \pm 1,0)\%$, а ^{135}Xe — $(1,3 \pm 0,6)\%$ радиоактивности, накопленной в твэле. В табл. 2 приведена также оценка по радиоактивности ^{133}Xe числа образовавшихся дефектных твэлов при каждом выбросе.

Выбросы радиоактивности в газовую полость реактора

Таблица 2

Дата	Режим работы	^{133}Xe			^{135}Xe			Предполагаемое число дефектов
		Выброс, кюри	Радиоактивность в твэле, кюри	Выход, %	Выброс, кюри	Радиоактивность в твэле, кюри	Выход, %	
23.II.72 г.	40,5 <i>Мет</i> (стац.)	48	680	6,8	16	740	2,2	1
23.II.72 г.	МАЗ на 40,5 <i>Мет</i>	104	680	15,3	18	740	2,8	3
28.II.72 г.	МАЗ на 25 <i>Мет</i>	26	490	5,2	5,8	370	1,5	1
17.III.72 г.	МАЗ на 35 <i>Мет</i>	30	560	5,4	6,1	640	0,95	1
25.V.72 г.	42 <i>Мет</i> (стац.)	7,6	310	3,6	7,6	770	1,0	1
19.VI.72 г.	МАЗ на 44 <i>Мет</i>	32	690	4,6	8	810	1,0	1
24.VIII.72 г.	МАЗ на 44 <i>Мет</i>	100	720	13,9	44	750	6,0	2—3
29.I.73 г.	50 <i>Мет</i> (стац.)	80	660	12,3	24	830	2,9	2—3
26.II.73 г.	55 <i>Мет</i> (стац.)	160	770	21	26	920	2,8	3—4
6.III.73 г.	МАЗ на 31 <i>Мет</i>	130	850	15,1	42	800	5,2	3
22.VIII.73 г.	42 <i>Мет</i> (стац.)	15	425	3,4	8	770	1,0	1
29.VIII.73 г.	43 <i>Мет</i> (стац.)	95	620	15,2	32	790	4,0	3
3.IX.73 г.	43 <i>Мет</i> (стац.)	32	670	4,7	—	—	—	1
5.IX.73 г.	43 <i>Мет</i> (стац.)	96	700	13,7	—	—	—	2—3
7.IX.73 г.	43 <i>Мет</i> (стац.)	96	710	13,5	—	—	—	2—3
14.IX.73 г.	43 <i>Мет</i> (стац.)	75	720	10,5	—	—	—	2
14.IX.73 г.	43 <i>Мет</i> (стац.)	64	725	8,8	—	—	—	2

Примечания: 1. Величину выброса определяли по приросту удельной активности в газовой полости реактора (объем $1,6 \cdot 10^3 \text{ л}$, давление 1,3 *ата*).
 2. Радиоактивность в твэле рассчитывали на момент разгерметизации для твэла с максимальной энергонапряженностью.
 3. В период 3—14 сентября 1973 г. вследствие неопределенности момента выброса его величина по ^{135}Xe не могла быть определена.

После выброса радиоактивность ^{133}Xe и ^{135}Xe в газовых полостях спадает примерно в соответствии с периодом их полураспада. Подобный характер изменения радиоактивности ^{133}Xe и ^{135}Xe с выбросом и спадом после разгерметизации твэлов отмечен также на реакторах «Рапсодия» [7], EBR-II [1,2], БР-5 при работе с PuO_2 [8] и в петлевых экспериментах [3].

Естественно предположить, что после сброса избыточного давления выход ГПД из дефектного твэла происходит с задержкой, определяемой величиной газового объема в твэле и скоростью утечки газа через дефект. Расчеты в таком предположении показывают, что при выходе из горючего 50—100% стабильного газа радиоактивность ^{133}Xe в газовой полости реактора уменьшится после выброса не менее чем в 6 раз, а ^{135}Xe — более чем в 70 раз. В действительности, при небольшом числе дефектных твэлов радиоактивность в газовой полости уменьшается примерно в 10 раз по ^{133}Xe и более чем в 100 раз по ^{135}Xe .

Следовательно, при работе реактора даже с 10% дефектных твэлов радиоактивность в газовой полости не превысит 1500 кюри. Радиоактивность газовой системы быстрого реактора не может ограничивать допустимое число дефектных твэлов в активной зоне.

Выход твердых продуктов деления из твэла в момент разгерметизации незначителен. Это подтверждается отсутствием показаний системы КГО по запаздывающим нейтронам и радиоактивности ^{137}Cs в натриевом теплоносителе сразу после выбросов. Увеличение показаний системы КГО не могло быть однозначно связано с определенными газовыми выбросами из твэлов.

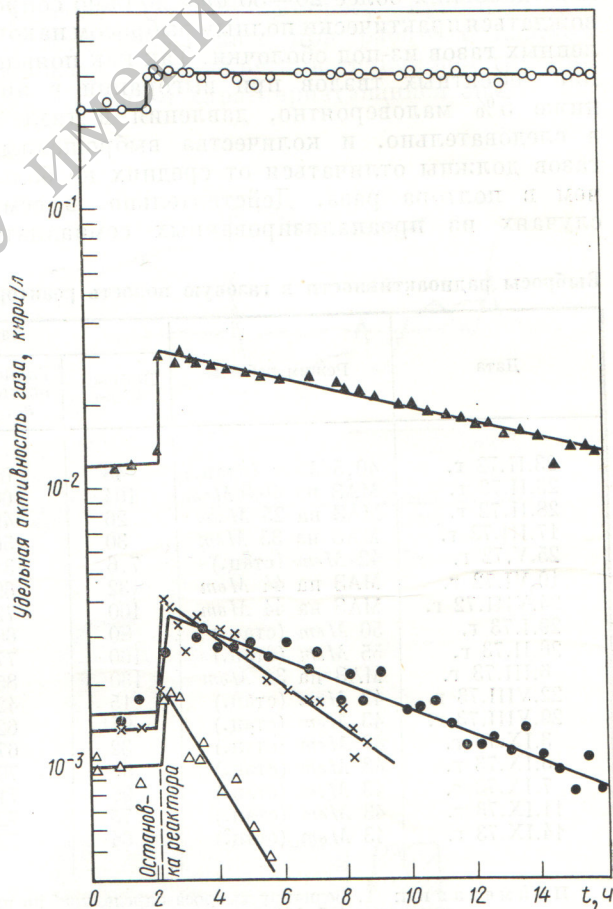
Такое увеличение, вероятно, может рассматриваться как начало значительного выхода твердых продуктов деления через дефект и в наблюдавшихся случаях происходило через 10—40 суток после выброса газов.

Постепенный характер развития дефектов подтверждается также результатами, полученными на EBR-II [2] и в петлевых экспериментах с искусственным дефектом [1] (малый выход ^{131}I и отсутствие выхода во время выбросов ^{137}Cs).

В то же время эти результаты отличаются от полученных на БР-5, где не было обнаружено газовых течей, а повышение показаний системы контроля герметичности по запаздывающим нейтронам всегда совпадало с выбросом газов [8].

Оценка доли выхода ГПД из горючего

Измерения при образовании дефектов в твэлах в период остановки реактора системой МАЗ показали, что в течение 5—10 мин после остановки удельная активность ГПД достигает максимального значения, после чего спадает в соответствии с собственными постоянными распада (рис. 2). Это означает, что распадом в теплоносителе для всех ГПД с периодом полураспада более 10 мин можно пренебречь и выход ГПД в газовую полость равен выходу из твэлов. Учитывая, что все ГПД, кроме ^{85}Kr , после длительного периода работы на мощности находятся под оболочкой твэла в равновесии, найденные величины выхода ГПД в газовую систему реактора могут рассматриваться как выход ^{133}Xe и ^{135}Xe из горючего под облучением.



Р и с. 2. Выход радиоактивности газов в газовую полость реактора после остановки реактора и образования дефектов в оболочках твэлов:

○ — ^{133}Xe ; ▲ — ^{135}Xe ; ● — ^{85m}Kr ; × — ^{88}Kr ; △ — ^{87}Kr .

Выход радиоактивности ГПД из горючего

Таблица 3

Характеристики	^{133}Xe	^{133m}Xe	^{135}Xe	^{85m}Kr	^{88}Kr	^{87}Kr
Период полураспада T_i , ч	127	54,3	9,14	4,4	2,8	1,27
Абсолютный выход, % (23.II.72 г.)	6,8	4,7	2,2	0,9	0,6	0,3
Выход по отношению к ^{133}Xe (23.II.72 г.)	1	0,69	0,31	0,13	0,085	0,043
Выход по отношению к ^{133}Xe (6.III.73 г.)	1	Нет свед.	0,27	0,12	0,05	0,02
Отношение $(T_i/T_{^{133}\text{Xe}})^{1/2}$	1	0,65	0,27	0,19	0,15	0,1

Оценка доли выхода из горючего короткоживущих изотопов инертных газов была проведена в двух экспериментах, когда измерения удалось осуществить сразу после появления дефектного твэла. Величина выброса при разгерметизации одного твэла составляла по изотопам ^{133}Xe , ^{133m}Xe , ^{135}Xe , ^{85m}Kr , ^{88}Kr и ^{87}Kr соответственно 48; 0,79; 16; 1,4; 2,3 и 1,4 *кюри*. В табл. 3 приведены доли выхода изотопов из горючего, отнесенные к доле выхода ^{133}Xe .

Решение уравнений диффузии под облучением [9] приводит к обратно пропорциональной зависимости выходов от корня квадратного из постоянной распада. Хорошее согласие экспериментальных значений относительного выхода радиоактивных инертных газов с таким расчетом приводит к заключению, что у твэлов БОР-60 выход газов из горючего во время облучения происходит в соответствии с закономерностями диффузионной модели. Отклонение для изотопов с малым периодом полураспада может быть, вероятно, объяснено неточностью в определении момента разгерметизации и дополнительными задержками (выход из натрия, перемешивание в газовом объеме, доставка проб и т. п.).

Выводы

1. В реакторе БОР-60 образование дефектов в оболочке твэлов сопровождается выбросом радиоактивных газовых продуктов деления. Величина выброса при выгорании свыше 5% равна доле выхода из горючего и составляет $(5,3 \pm 1,0)\%$ для ^{133}Xe . Выход остальных ГПД примерно пропорционален корню квадратному из периода полураспада, что соответствует закономерностям диффузионного выхода под оболочку. Выход твердых продуктов деления непосредственно после образования дефекта незначителен.

2. Вследствие малого выхода ГПД в момент образования дефекта и значительно меньшего их выхода при дальнейшем облучении радиоактивность в газовой системе реактора не ограничивает допустимое число дефектных твэлов в активной зоне. При разработке твэлов с выпуском ГПД в теплоноситель важно обеспечить удержание твердых продуктов деления (^{131}I , ^{137}Cs , ^{95}Zr — ^{95}Nb , ^{140}Ba — ^{140}La); время задержки газов под оболочкой может быть минимальным.

3. Система КГО по запаздывающим нейтронам не позволяет контролировать появление дефектов в твэлах, но ее показания могут служить свидетельством значительного раскрытия оболочки.

Постоянный γ -спектрометрический контроль радиоактивности газов позволяет оценивать число дефектных твэлов в активной зоне реактора на каждый момент времени.

Поступила в Редакцию 1/IV 1974 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Koenig J. e.a. Trans. Amer. Nucl. Soc., 1972, v. 15, N 1, p. 194.
2. Smith R. e.a. Ibid., p. 194.
3. Regimbal J. e. a. Ibid., p. 197.
4. Багдасаров Ю. Е. и др. Технические проблемы реакторов на быстрых нейтронах. Под ред. Ю. Е. Багдасарова. М., Атомиздат, 1969.
5. Лейпунский А. И. и др. Препринт ФЭИ-187, Обнинск, 1969.
6. Поляков В. И., Четкин Ю. В. «Атомная энергия», 1971, т. 31, вып. 2, с. 139.
7. Fremont R. In.: Specialists Meeting on Fission and Corrosion Product Behaviour in Primary Systems of LMFBR's. Bensberg, FGR, 20—22 Sept. 1971, Summary Report, Paper 1.
8. Ефимов И. А., Мамаев Л. И., Филонов В. С. «Атомная энергия», 1971, т. 31, вып. 6, с. 567.
9. Ластман Б. Радиационные явления в двуокиси урана. М., Атомиздат, 1964.