

О дрейфе градуировочных характеристик термоэлектрических преобразователей в реакторных условиях.

Приймак С.В., Конотопов А.Н., Ляхов Д.М., Олейников П.П.,
НПО «Луч», г.Подольск
Логинов В.Н., Серов Н.С.
ОКБМ, Нижний Новгород

Повышение требований к безопасности АЭС и ядерных энергетических установок (ЯЭУ) других назначений, находящее отражение в новых редакциях российских и зарубежных нормативных документов, современные требования эксплуатирующих организаций и зарубежных заказчиков обострили проблему достоверности информации о поведении контрольно-измерительного оборудования ЯЭУ, непосредственно связанного с системами защиты.

В последнее время особенно актуальным стало тематическое направление научных работ в обоснование возможности продления срока эксплуатации средств внутриреакторного контроля режимов энергоблоков АЭС в рамках программ модернизации действующих и строительства новых атомных станций в России и других странах. Аналогичная ситуация сложилась и в отношении ЯЭУ других назначений.

В этом аспекте актуальна информация о поведении характеристик термоэлектрических преобразователей (ТЭП) в процессе длительной эксплуатации в реакторных условиях, поскольку высокая стоимость материалов, оборудования, технологий изготовления, испытаний и монтажа побуждают обосновывать продление сроков их эксплуатации, а неучет дрейфа характеристик представляет риск для экономичности ЯЭУ и их безопасности.

Дрейф градуировочных характеристик ТЭП в реакторных условиях определен в литературе как необратимая составляющая ($\Delta E_{\text{но}} \sim \Delta T_{\text{но}}$) их изменений, монотонно накапливающаяся по мере роста флюенсов излучений и не исчезающая с прекращением облучения [1].

Необратимые изменения являются следствием:

- 1) радиационного легирования термоэлектродных сплавов под действием тепловых нейтронов;
- 2) накопления дефектов кристаллической структуры термоэлектродов под действием быстрых нейтронов.

Дополнительными факторами, влияющими на величину $\Delta E_{\text{но}}$, являются неравномерности этих изменений по длине термоэлектродов, обусловленные неравномерностями потоков нейтронов и температуры в активной зоне [2], а также температурный отжиг дефектов структуры термоэлектродов [3].

По данным многочисленных экспериментов [1], необратимые изменения ТЭП ХА и ХК исследованы при флюенсах нейтронов до $\sim 10^{22}$ н/см² и находятся в диапазоне $-7 \div +4\text{К}$, в то время как погрешность

измерения температуры теплоносителя ВВЭР нормирована и не должна превышать 1К для ТЭП ХА с индивидуальной градуировкой. В этой связи, согласно закону РФ «Об обеспечении единства измерений» ТЭП, используемые в ядерных реакторах, должны подвергаться периодической поверке.

Внешне наиболее приемлемым представляется «метод встроенных калибраторов» [4]. Фактически это есть метод градуировки ТЭП по точкам МТШ, воспроизводимым в реакторных условиях плавлением навесок «реперных» металлов (калибраторов). Однако он требует специального режима работы реактора, что усложняет его применение [5]. С другой стороны, оснащение каждого ТЭП некоторой реперной точкой пока находится в стадии лабораторных исследований [6]. Следует отметить, что радиационное легирование калибратора может влиять на температуру его фазового перехода, что потребует дополнительных исследований.

Подход в оценках устойчивости ТЭП к необратимым изменениям $\Delta T_{но}$ по результатам расчета радиационных превращений термоэлектродов используется лишь для качественного сравнения стабильности характеристик ТЭП [2].

В последние годы широкое применение на энергоблоках АЭС нашел метод бездемонтажной поверки ТЭП посредством квазиизотермического режима теплоносителя [7]. Этому методу, однако, кроме его громоздкости, присущ принципиальный недостаток. Действительно, специально организованная изотермичность по водяному контуру исключает учет градиента температуры вдоль измерительного канала в реакторах повышенной безопасности, генерирующего $\Delta T_{но}$ на участке радиационного перерождения термоэлектродов и имеющего место в рабочем режиме реактора. Отсутствие при калибровке градиента температуры приводит к «потере» самого $\Delta T_{но}$. Последний восстановится в эксплуатационных условиях, реализующих этот продольный вдоль ТЭП градиент.

В итоге наиболее приемлемым представляется учет текущих, в процессе эксплуатации ТЭП, значений $\Delta T_{но}$ с помощью расчетной модели, построенной на основе экспериментальных данных. Впервые такой подход был реализован Н.В.Маркиной по результатам исследований $\Delta T_{но}$ (в ее редакции «интегральных эффектов») ТЭП ХА и ХК на реакторе СМ [8]. В этой работе необратимые изменения представлены степенной функцией

$$\Delta T_{но} = a\Phi^k, \quad (1)$$

где Φ – флюенс тепловых нейтронов; a , k – аппроксимационные коэффициенты.

Таблица 1

Значения коэффициентов аппроксимации $\Delta T_{но}$

ТЭП	a	k
ХА	$8,04 \cdot 10^{-3}$	0,1483

BP5/20	$3,93 \cdot 10^{-5}$	0,2824
ПП	$1,53 \cdot 10^{-13}$	0,6839

Согласно (1), в конце первого месяца облучения в потоках тепловых нейтронов на ВВЭР при $\varphi = 4 \cdot 10^{11} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ $\Delta T_{\text{но}}$ достигает -4К , а в течении трех лет $-6,5\text{К}$, т.е. имеет место уменьшение чувствительности (насыщение) ТЭП к одному и тому же приращению флюенса нейтронов.

Выражение (1), очевидно, имеет ограниченное применение, поскольку результат влияния на $\Delta T_{\text{но}}$ многих факторов характеризуется только одним из них – флюенсом тепловых нейтронов. Для учета влияния тепловых, быстрых нейтронов и температуры при облучении в качестве исходной прием расчетную модель, разработанную для оценки необратимых изменений градуировочных характеристик ТЭП BP5/20:

$$\Delta T_{\text{но}} = a_1 \Phi_{\text{т}} + a_2 \Phi_{\text{б}} \exp(a_3 T_{\text{обл}}), \quad (2)$$

где $\Phi_{\text{т}}$, $\Phi_{\text{б}}$ – флюенс тепловых и быстрых нейтронов соответственно; $T_{\text{обл}}$ – температура облучаемого ТЭП; a_1 , a_2 и a_3 – неизвестные коэффициенты [9].

Учитывая модель (1), возможный вариант уточнения модели (2) должен, по-видимому, отразить, во-первых, уменьшение чувствительности ТЭП к некоторому, одному и тому же на последовательных этапах облучения, изменению химического состава термоэлектродов за счет радиационного превращения элементов под действием тепловых нейтронов и накоплению в них дефектов структуры под действием быстрых нейтронов, а также влияние температурного отжига дефектов в процессе облучения. Во-вторых, в качестве искомой функции следует определить $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$, где $\Delta T_{\text{гр}}$ – перепад температуры на облучаемом участке ТЭП в процессе его послереакторной градуировки. Переход в трактовке внутриреакторного дрейфа градуировочной характеристики ТЭП от $\Delta T_{\text{но}}$ к $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ определен следующими обстоятельствами. Значение $\Delta T_{\text{но}}$ получают в результате послереакторной градуировки ТЭП в условиях, когда его облученный участок находится в зоне некоторого конкретного градиента температуры. При измерениях в зоне другого градиента температур значение $\Delta T_{\text{но}}$ будет другим, поскольку влияние изменения состава и структуры термоэлектродов на градуировку ТЭП определяется расположением облученного участка относительно температурного градиента и величиной последнего [2]. Точнее, изменение градуировки линейно зависит от перепада температуры, где коэффициентом пропорциональности является $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$, поскольку изменения состава и структуры термоэлектродов образуют практически другой ТЭП. Таким образом, отклонения от термоэлектрической однородности, вызванные радиационным облучением, не могут влиять на сигнал ТЭП, если он находится в изотермической области.

Следовательно, искомая модель должна иметь вид:

$$\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}} = a_1 \Phi_T^{\alpha_1} + a_2 \Phi_6^{\alpha_2} \exp(\alpha_3 T_{\text{обл}}). \quad (3)$$

В таком случае величина неопределенности результата измерений $\Delta E_{\text{др}}$, вызванная дрейфом градуировочной характеристики ТЭП в реакторных условиях, будет иметь вид:

$$\Delta E_{\text{др}} = (\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}) \cdot \Delta T_{\text{изм}}, \quad (4)$$

где $\Delta T_{\text{изм}}$ – перепад температуры на облученном участке ТЭП в процессе измерений.

Эксперимент по исследованию $\Delta T_{\text{но}}$ ТЭП ХА и ХК был проведен на реакторе ИВВ-2. Температура ТЭП в процессе облучения не превышала 200°C. Согласно данным работы [3], при такой температуре отжиг радиационных дефектов в процессе облучения незначительный. Флюенсы нейтронов по каждой партии приведены в табл. 2.

Таблица 2

Флюенсы нейтронов при исследовании $\Delta T_{\text{но}}$

№ партии ТЭП	Длительность облучения, дН	Флюенс тепловых нейтронов, нейтр.·см ⁻²	Флюенс быстрых нейтронов, нейтр.·см ⁻²
1	28	$8,46 \cdot 10^{20}$	$1,06 \cdot 10^{20}$
2	224	$6,78 \cdot 10^{21}$	$8,51 \cdot 10^{20}$

Исследования $\Delta T_{\text{но}}$ проведены градуировкой облученных ТЭП методом сличения с ТЭП – свидетелями, изготовленными из того же термопарного кабеля, что и облученные. Для оценки влияния отжига радиационных дефектов термоэлектродов на $\Delta T_{\text{но}}$ градуировка ТЭП ХА проводилась в диапазоне ~ 170-770°C, ТЭП ХК – в диапазоне ~ 240 - 460°C с выдержкой на каждом уровне температуры примерно по одному часу. Результаты приведены в табл. 3.

Таблица 3

Результаты исследования $\Delta T_{\text{но}}$ ТЭП ХА

Температура градуировки, °С	ТЭП 1 ^{ой} партии		ТЭП 2 ^{ой} партии	
	$T_1 - T_{\text{КОНТР}}$, К	$\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$, мкВ/К	$T_1 - T_{\text{КОНТР}}$, К	$\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$, мкВ/К

175	-1,2	-0,27	-2,2	-0,50
259	-1,3	-0,20	-1,8	-0,28
368	-3,7	-0,40	-7,6	-0,83
546	-4,6	-0,34	-7,5	-0,55
681	-4,1	-0,24	-8,1	-0,48
710	-4,7	-0,26	-6,5	-0,37
770	-5,0	-0,26	-6,9	-0,36

Из вида модели (3) следует, что для нахождения ее коэффициентов требуется не менее пяти экспериментальных данных по $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$. Следовательно, полученные авторами результаты необходимо дополнить литературными данными. Их тщательный анализ показал, что для решения поставленной задачи могут быть использованы только данные, представленные в работах [3] и [10]. Совокупность экспериментальных данных, использованных для нахождения коэффициентов модели (3), приведена в табл. 4.

Таблица 4

Условия и результаты исследований $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ ТЭП ХА к модели (3)

№ п/п	$\Phi_{\text{м}}$, нейтр./см ²	$\Phi_{\text{б}}$, нейтр./см ²	$T_{\text{обл}}$, К	$\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$, мкВ/К	Источник информации
1	$2 \cdot 10^{18}$	$\sim 10^{18}$	600	-0,06	[10]
2	$1,5 \cdot 10^{20}$	$1 \cdot 10^{20}$	593	-0,11	[3]
3	$8,46 \cdot 10^{20}$	$1,06 \cdot 10^{20}$	532	-0,20	авторы
4	$6,78 \cdot 10^{21}$	$8,51 \cdot 10^{20}$	532	-0,28	авторы
5	$8,46 \cdot 10^{20}$	$1,06 \cdot 10^{20}$	1043	-0,26	авторы
6	$6,78 \cdot 10^{21}$	$8,51 \cdot 10^{20}$	1043	-0,36	авторы

Методом регрессионного анализа вычислены коэффициенты модели (3) и в результате модель приняла вид:

$$\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}} = -0,151(\Phi_{\text{т}} \cdot 10^{-18})^{0,152} + 0,156(\Phi_{\text{б}} \cdot 10^{-18})^{0,144} \cdot \exp(-6,13 \cdot 10^{-4} T_{\text{обл}}), \quad (5)$$

причем ее абсолютная погрешность составляет $8 \cdot 10^{-3}$ мкВ/К.

Из выражения (5) следует, что для температурного диапазона 532 ÷ 1043К облучение ТЭП тепловыми нейтронами снижает его термо-э.д.с., а быстрыми – вызывает ее увеличение. При этом весовые характеристики влияния тепловых нейтронов на изменение термо-э.д.с. практически такие же, как и весовые характеристики влияния быстрых.

Учитывая, что в энергетических реакторах ВВЭР потоки тепловых нейтронов в ~ 1,3раза превышают потоки быстрых, для экспресс-оценки дрейфа градуировочных характеристик ТЭП ХА приведем полученную по формуле (5) зависимость $\Delta E_{но}/\Delta T_{гр}$ от флюенса тепловых нейтронов при температуре $T_{обл} = 600K$.

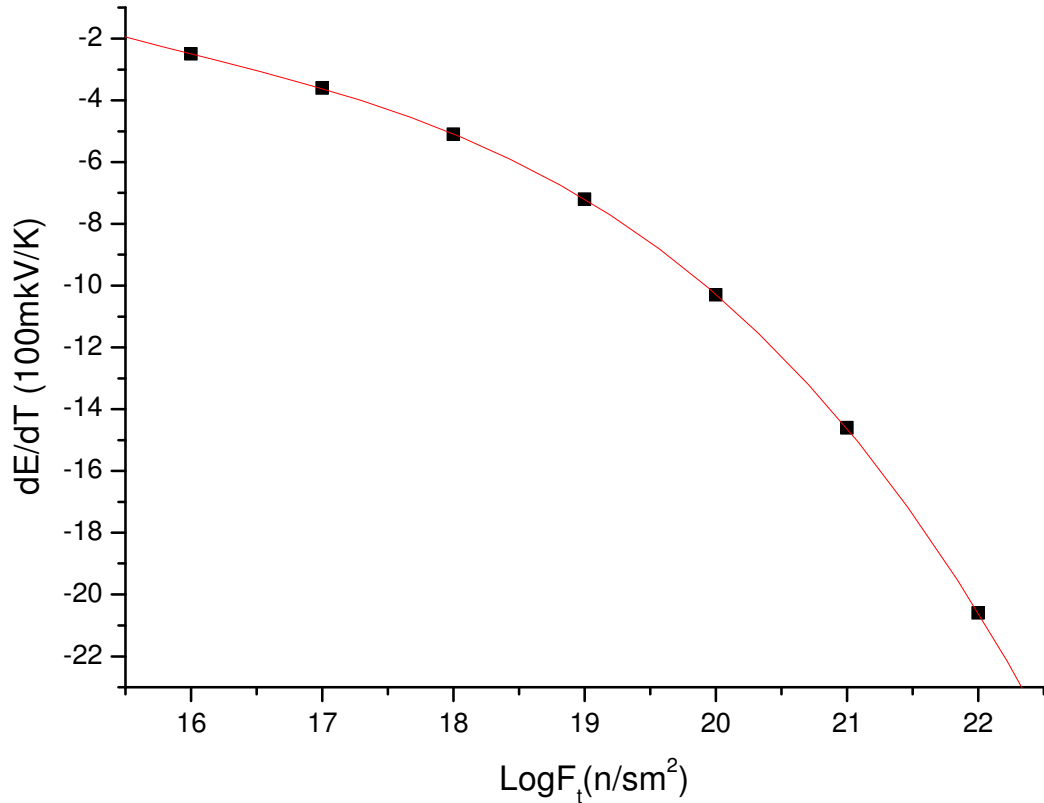


Рис. 1 Зависимость $\Delta E_{но}/\Delta T_{гр}$ ТЭП ХА от флюенса тепловых нейтронов

С учетом анализа данных исследований $\Delta T_{но}$ ТЭП ХА рассмотрим приведенные в табл. 5 результаты исследований $\Delta T_{но}$ ТЭП ХК, применяемых для измерений температуры на входе и на выходе из активной зоны ВВЭР паропроизводящих установок кораблей.

Таблица 5

Результаты исследований $\Delta T_{но}$ ТЭП ХК

Температура градуировки, °С	ТЭП 1 ^{ой} партии		ТЭП 2 ^{ой} партии	
	$T_1 - T_{КОНТР}, K$	$\Delta E_{но}/\Delta T_{гр},$ мкВ/К	$T_1 - T_{КОНТР}, K$	$\Delta E_{но}/\Delta T_{гр},$ мкВ/К
236	-3,0	-1,05	-3,0	-1,05
328	-4,1	-1,06	-3,7	-0,96

440	-4,1	-0,82	-3,6	-0,72
517	-4,3	-0,73	-3,9	-0,66
593	-4,0	-0,59	-3,8	-0,56
650	-4,3	-0,58	-4,1	-0,55
617	-4,2	-0,60	-4,0	-0,57
463	-3,3	-0,63	-3,1	-0,59

Отметим две особенности экспериментальных данных по ХК:

- 1) слабую зависимость $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ от температуры отжига и последующей градуировки, характерную также для результатов исследований $\Delta T_{\text{но}}$ ТЭП ХК в работе [11];
- 2) снижение по абсолютной величине $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ ТЭП второй партии, облученных флюенсами нейтронов, в ~ 8 раз превышающими флюенсы первой партии, причем эта особенность встречается в работе [3]. В этой связи механизм возникновения $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ ТЭП ХК следует представить не зависящей от температуры моделью вида

$$\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}} = a_1 \Phi_{\text{т}}^{a_2} + a_3 \Phi_{\text{б}}^{a_4} \quad (6)$$

Экспериментальные данные для нахождения коэффициентов модели (6) приведены в табл. 6.

Таблица 6

Условия и результаты исследований $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ ТЭП ХК к модели (6)

№ п/п	$\Phi_{\text{м}}$, нейтр./см ²	$\Phi_{\text{б}}$, нейтр./см ²	$\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$, мкВ/К	Источник информации
1	$1,43 \cdot 10^{20}$	$1,1 \cdot 10^{20}$	-0,45	[3]
2	$3,60 \cdot 10^{20}$	$1,5 \cdot 10^{20}$	-0,63	[11]
3	$8,46 \cdot 10^{20}$	$1,06 \cdot 10^{20}$	-0,76	авторы
4	$6,78 \cdot 10^{21}$	$8,51 \cdot 10^{20}$	-0,71	авторы

Методом регрессионного анализа вычислены коэффициенты модели (6), которая теперь приняла вид:

$$\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}} = -0,436(\Phi_{\text{т}} \cdot 10^{-20})^{0,273} + 8,525 \cdot 10^{-3}(\Phi_{\text{б}} \cdot 10^{-20})^{2,035}, \quad (7)$$

а ее абсолютная погрешность составляет 0,039 мкВ/К.

По аналогии с ТЭП ХА, приняв $\Phi_{\text{б}} = 0,75\Phi_{\text{т}}$, приведем зависимость $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ ТЭП ХК от флюенса тепловых нейтронов.

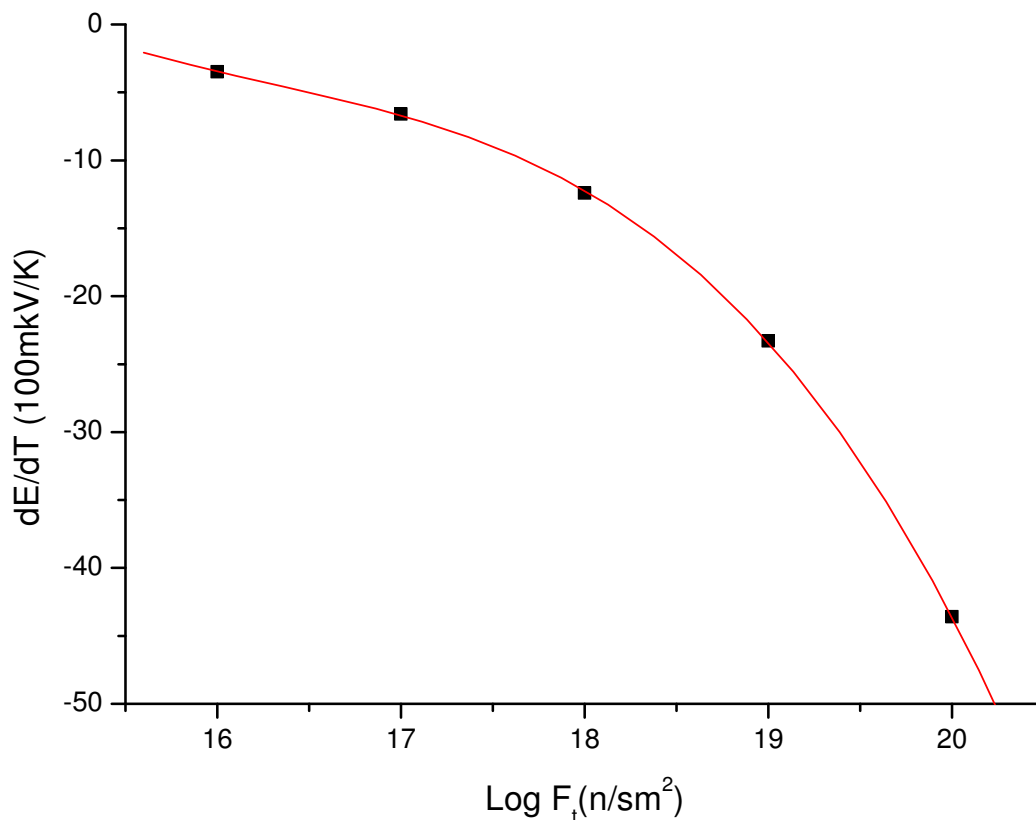


Рис. 2. Зависимость $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ ТЭП ХК от флюенса тепловых нейтронов

Анализируя перспективу приложений полученных результатов, следует отметить следующее.

Направленность настоящей работы соответствует целям и задачам европейской программы MAGIC по исследованию и прогнозированию старения контрольно-измерительного оборудования (КИО) реактора АЭС, непосредственно связанного с системами его защиты. Объединяя ученых и эксплуатационников АЭС в прогнозировании старения КИО, программа включает создание европейской сети партнеров с целью обмена научными и практическими данными о механизме, показателях и методах измерения старения, создания и развития общей базы данных, методических указаний для операторов КИО и обслуживающего персонала.

Полученные в настоящей работе результаты позволяют в дальнейшем сформулировать предложения по взаимовыгодной координации и сотрудничеству в рамках MAGIC, поскольку модель дрейфа градуировочной характеристики ТЭП в реакторных условиях в целом отражает процессы дрейфа других характеристик и старения других элементов и блоков КИО АЭС, работающих в полях излучений и температуры. Информация об этих процессах необходима для контроля уровня надежности КИО в течение времени жизни системы безопасности АЭС.

Выводы.

1. Проведен анализ методов контроля и прогнозирования дрейфа градуировочных характеристик ТЭП в реакторных условиях. Показано, что наиболее приемлемым следует считать учет и прогнозирование необратимых изменений градуировочных характеристик ТЭП с помощью расчетной модели, построенной по экспериментальным данным.
2. Обоснован переход в представлении дрейфа градуировочных характеристик ТЭП от традиционного, в виде общего значения необратимого изменения ($\Delta T_{\text{но}}, K$), к удельному ($\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}, \text{мкВ/К}$), на 1К перепада температуры на облученном участке ТЭП в процессе его послереакторной градуировки.
3. На основании совокупности литературных данных и экспериментальных данных авторов построена расчетная модель необратимых изменений $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ ТЭП ХА, учитывающая влияние флюенсов тепловых, быстрых нейтронов и температуры при облучении.
4. Построена модель необратимых изменений $\Delta E_{\text{но}}/\Delta T_{\text{гр}}$ ТЭП ХК, учитывающая влияние флюенсов тепловых и быстрых нейтронов.

Литература.

1. Фрактовникова А.А., Редченко М.И. Влияние реакторного облучения на показания термоэлектрических преобразователей: Обзорная информация ОБ-156. Обнинск, ФЭИ, 1983, 30 с.
2. Браунинг У.Е., Миллер К.Е. Вычисление изменения состава термодпар под действием излучения. – В кн. Измерение температур в объектах новой техники. М., Мир, 1965, с.53-65.
3. Правдюк Н.Ф., Иванов А.Н., Дубровин К.П. Влияние реакторного облучения на термодпарные материалы. – Атомная энергия, 1968, т.25, вып.3, с.233.
4. Саченко А.А. и др. Измерение температуры датчиками со встроенными калибраторами. М.: Энергоатомиздат, 1986, 96 с.
5. Арнольдов М.Н., Колесников М.Н. (ГНЦ ФЭИ), Шевченко В.М. О проблемах реакторной термометрии. – С. «Управление качеством», ЦНИИАтоминформ, М., 1997, вып. 1(14), с.22-28.
6. Тимонин А.С. Проблемы эксплуатации термодпар в реакторах ВВЭР.- "Управление качеством", ЦНИИАтоминформ, М., 1997, вып.1(14), с. 49-57.
7. Брагин В.А. Батенин И.В., Голованов М.Н. и др. Системы внутриреакторного контроля АЭС с реакторами типа ВВЭР/Под ред. Г.Л. Левина. М.: Энергоатомиздат, 1987, 125 с.
8. Маркина Н.В. Особенности измерения температуры в ядерных установках с высокой плотностью потоков излучений. Диссертация на

соискание ученой степени кандидата технических наук.-
Димитровград.: НИИАР, 1974, 156 с.

9. Ляхов Д.М., Приймак С.В. Расчетная модель для оценки интегральных эффектов термоэлектрических преобразователей в реакторных условиях. – Атомная энергия, 1987, т.63, вып.5, с.360.
- 10.Madsen P.E. The Calibration on Thermocouples under Irradiation in BERO. – UKAEA Rep. AERE-MR, 1950, p.649.
- 11.Коротенко М.Н., Слесаревский С.О., Стельмах С.С. Влияние реакторного облучения на термо-э.д.с. хромель-алюмелевых и хромель-копелевых термопар. – Атомная энергия, 1975, т.38, вып.5, с.336.