УДК 541.15:621.039.5

# ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ ФОРМЫ ИОДА В ТЕПЛОНОСИТЕЛЕ ПЕРВОГО КОНТУРА ЯЭУ С АММИАЧНЫМ ВОДНО-ХИМИЧЕСКИМ РЕЖИМОМ

© 2022 г. Л. Н. Москвин<sup>*a*</sup>, В. Н. Епимахов<sup>*б*</sup>, \*, С. Н. Орлов<sup>*б*</sup>, С. Г. Мысик<sup>*б*</sup>, Р. В. Фоменков<sup>*б*</sup>, Д. С. Подшибякин<sup>*б*</sup>

<sup>а</sup> Санкт-Петербургский государственный университет, 199034, Санкт-Петербург, Университетская наб., д. 7–9 <sup>6</sup> Научно-исследовательский технологический институт им. А.П. Александрова, 188540, Сосновый Бор Ленинградской обл. \*e-mail: evn@niti.ru

Поступила в редакцию 04.03.2021, после доработки 13.04.2021, принята к публикации 20.04.2021

Статья посвящена определению физико-химических форм радионуклидов иода в теплоносителе первого контура транспортных ядерных энергетических установок (ТЯЭУ) водо-водяного типа с аммиачным водно-химическим режимом. Основной формой существования радионуклидов иода <sup>131</sup>I–<sup>135</sup>I в теплоносителе является иодидная форма. Содержание иодат-ионов составляет 1–2% при концентрации аммиака от 18 до 79 мг/кг. Доля летучих органических и неорганических форм радионуклидов иода, переходящих в газовую фазу из теплоносителя, не превышает 3.3 × 10<sup>-2</sup> и 2.5 × 10<sup>-4</sup> % соответственно.

**Ключевые слова:** водо-водяной реактор, теплоноситель первого контура, физико-химические формы радионуклидов иода, летучие, органические, неорганические, иодат, иодид, коэффициент очистки теплоносителя.

DOI: 10.31857/S0033831122020058, EDN: FOGWTG

#### ВВЕДЕНИЕ

Радионуклиды иода являются одними из важнейших продуктов деления, во многом определяющими радиационную опасность ЯЭУ в условиях аварийных ситуаций, связанных с потерей теплоносителя. Повышенная опасность радионуклидов иода объясняется их значительным радиобиологическим воздействием на человеческий организм [1–3] и летучестью ряда физико-химических форм иода, в первую очередь органических (метилиодидной CH<sub>3</sub>I и других) [4].

При решении проблемы локализации аварийных выбросов радиоиода необходимо учитывать разную эффективность улавливания отдельных физико-химических форм его существования, что и определяет необходимость получения априорной информации по их распределению в теплоносителе.

Помимо этого изменение доли окисленных форм иода косвенно характеризует эффективность под-

держания водно-химического режима теплоносителя первого контура.

На распределение физико-химических форм радионуклидов иода в теплоносителе первого контура влияют [5, 6]: водородный показатель и окислительно-восстановительный потенциал среды; концентрация в теплоносителе примесей; радиационное поле (мощность работы) реактора.

Необходимо отметить, что большинство существующих исследовательских работ по химии иода в основном контуре ядерно-энергетических установок относятся к кислотному либо нейтральному значению водородного показателя среды [7–10].

В данной работе изучено распределение физико-химических форм радионуклидов иода в теплоносителе в условиях аммиачного водно-химического режима (щелочная среда). Исследована зависимость форм радионуклидов иода как от режимов работы ЯЭУ, так и от содержания примесей теплоносителя.

# ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Изучение физико-химических форм радионуклидов иода в теплоносителе первых контуров проводили с применением специально разработанных методик. В период исследований ТЯЭУ работала на различных уровнях мощности и режимах работы ионообменных фильтров смешанного действия (ФСД), рН теплоносителя поддерживали в пределах нормируемых значений 9.5-10.5. Эксперименты проводили при концентрации аммиака в пробах от 36 до 79 г/кг, на уровнях мощности 10, 30 и 60% от номинальной ( $P, \ \ P_{\rm H}$ ), а также на остановленном реакторе. Удельная активность радионуклидов иода находилась в диапазоне от  $1 \times 10^2$  до  $1 \times 10^6$  Бк/дм<sup>3</sup> при времени работы реактора на заданном уровне мощности от 2 до 210 ч и до момента отбора пробы от 1.1 до 50 ч.

Отбор водных проб теплоносителя, выделение всех форм радионуклидов иода и гамма-спектрометрический анализ. Пробы теплоносителя первых контуров отбирали после их проливки для стабилизации состава пробы. Гаммаспектрометрические и радиометрические измерения отобранных проб теплоносителя первого контура выполняли с использованием полупроводникового спектрометра гамма-излучения Гамма-1П и бета-радиометра РКС-02. Погрешность определения не превышала 10%.

Для определения суммарной объемной активности изотопов иода ( $\Sigma A_{I}$ ) без учета их форм существования использовали две методики. Первой методикой является экспрессный хроматографический радиохимический метод анализа с использованием блочных сорбентов [11]. На блочном сорбенте, импрегнированном триоктиламином, выделяли радионуклиды, присутствующие в теплоносителе в анионной форме (<sup>131–135</sup>I, <sup>51</sup>Cr, <sup>99</sup>Мо и <sup>187</sup>W). Вторая методика определения иода основана на переводе всех химических форм иода, находящихся в пробе теплоносителя, в форму иодид-ионов с последующим их селективным извлечением на ацетилцеллюлозной микропористой мембране, импрегнированной серебром [12]. В качестве подкисляющего и одновременно восстанавливающего реагента используется аскорбиновая кислота.

РАДИОХИМИЯ том 64 № 2 2022

Выделение иодат-ионов из водных проб теплоносителя. Разделение физико-химических форм радионуклидов иода, содержащихся в пробах теплоносителя первого контура, проводили методом фронтальной хроматографии с использованием неорганического ионообменника – оксида висмута(III), нанесенного на гранулированный политетрафторэтилен с размером гранул 0.16-0.25 мм [13]. Для хроматографического разделения проб теплоносителя использовали стеклянную колонку с внутренним диаметром 8 мм, которую заполняли ацетоном и вносили в колонку оксид висмута(III) на политетрафторэтилене с таким расчетом, чтобы высота слоя сорбента составляла около 100 мм. Далее сливали из колонки ацетон, не допуская попадания воздуха в слой сорбента, и промывали колонку 500 см<sup>3</sup> дистиллированной воды с расходом 5-10 см<sup>3</sup>/мин. После данной пробоподготовки через колонку пропускали пробу теплоносителя, подкисленную до pH 3 0.1 М соляной кислотой, при этом на колонке происходило выделение радионуклидов иода, находившихся в теплоносителе в форме иодат-ионов. Данную колонку после окончания разделения передавали на гамма-спектрометрический анализ.

Определение доли иодид-ионов. Объемную активность радионуклидов иода в форме иодиов вычисляли на основании гамма-спектрометрических измерений по формуле

$$A_{\text{иодид}} = \sum A_{\text{I}} - \sum A_{\text{иодат}},$$

где  $A_{\text{нодид}}$  – объемная активность радионуклидов иода в пробе в форме иодид-ионов, Бк/л;  $\sum A_{\text{I}}$  – суммарная объемная активность радионуклидов иода в пробе, Бк/л;  $\sum A_{\text{нодат}}$  – суммарная объемная активность радионуклидов иода в пробе в форме иодатов, Бк/л.

Выделение газообразных форм радионуклидов иода и определение содержание газов. Выделение газовых проб (проб газов, растворенных в теплоносителе) проводили из отобранных проб теплоносителя путем разделения жидкой и газовой фаз, образующихся в условиях, близких к равновесным, при снижении давления и температуры теплоносителя. Остаточное содержание газа в пробе теплоносителя после ее дегазации (при величине газосодержания не менее 1 нл/кг) не превышало 3% от его исходного количества. Общее газосодержание в



**Рис. 1.** Схема отбора газовой фазы теплоносителя. *1* – микрокомпрессор; *2*, *3*, *9* – вентили; *4* – сорбционная колонка; *5*, *6*, 7 – патрубки; 8 – штуцер; *10* – пробоотборная емкость.

пробе теплоносителя определяли объемно-манометрическим методом. Определение проводили в две стадии: сначала измеряли общее содержание газов объемно-манометрическим методом, затем отбирали пробу газа и в ней измеряли содержание газовых компонентов газохроматографическим методом. Относительная погрешность измерения содержания растворенных газов в диапазоне концентраций от 300 до 3000 мл<sub>н.у.</sub>/кг не превышала 15 отн%. Основными газообразными компонентами в теплоносителе I контура являлись: азот, водород и предельные углеводороды – метан, этан, пропан, изобутан и нормальный бутан. Содержание кислорода в отбираемых пробах газа за все время испытаний не превышало предела определения 0.01 об%, содержание оксидов углерода находилось на уровне 0.01 об%.

Для отбора пробы газа из теплоносителя использовали пробоотборное устройство, схема которого приведена на рис. 1.

Пробоотбор производили следующим образом. К пробоотборной линии подсоединяли штуцер 8 и с помощью вентиля 9 пробоотборной линии устанавливали расход теплоносителя 0.5–1 дм<sup>3</sup>/мин. Расход теплоносителя определяли по времени наполнения емкости определенного объема. Далее к штуцеру подсоединяли резиновый шланг, соединенный с

открытым вентилем 3 пробоотборной емкости 10. В течение отбора пробы теплоносителя вентиль 2 держали закрытым. Проба теплоносителя объеом 1-3 л поступала в стеклянную пробоотборную емкость через патрубок 7. Отобранный объем теплоносителя определяли визуально по меткам, нанесенным на пробоотборную емкость. В процессе пробоотбора происходила дегазация пробы и выделяющийся газ через патрубок 6 попадал в сорбционную колонку (рис. 2), где происходило раздельное выделение физико-химических форм радионуклидов иода. Аэрозольную составляющую выделяли на аналитическом фильтре типа АФА-РСП (поз. 3), элементарный иод и иодоводород выделяли на специфическом сорбенте (металлический висмут, поз. 5), иодорганические соединения выделяли на сорбенте марки Силоксид (поз. 6) [6-8].

Эффективность сорбции элементарного иода и иодоводорода при времени контакта 0.3 с при размере гранул 0.5 мм превышает 99.9%, эффективность сорбции иодистого метила при времени контакта 0.3 с и размере гранул 2 мм больше 99.0%. На Силоксиде коэффициент селективности сорбции иода и <sup>133</sup>Хе значительно больше 10<sup>5</sup>. Сорбент функционирует при относительной влажности газа до 100% и при температуре до 200°С.

РАДИОХИМИЯ том 64 № 2 2022

Таблица 1. Доля радионуклидов иода (относительная для каждого радионуклида) в форме иодат-ионов (%) в пробах теплоносителя в зависимости от мощности работы реактора и концентрации аммиака.

	1 1 1				
<i>Р</i> , % <i>P</i> <sub>н</sub>	Концентрация аммиака, мг/кг	<sup>131</sup> I	<sup>132</sup> I	<sup>133</sup> I	<sup>135</sup> I
10	49	1.2	_	0.8	0.1
11	79	<0.1			
17	48	0.9	0.1	0.4	< 0.1
30	36	_	0.8	0.3	0.5
30	49	0.2	0.2	0.5	0.3
30	56	1.2	0.6	0.2	0.2
60	39	1.4	0.1	0.4	0.2
60	45	1.2	0.1	0.9	< 0.1

Определение содержания общего органического и неорганического углерода в пробе теплоносителя проводили с использованием анализатора общего углерода Shimadzu TOC-Vwp методом мокрого окисления персульфатом в условиях УФ облучения с предварительным удалением неорганических форм углерода путем продувки пробы азотом особой чистоты после предварительного подкисления фосфорной кислотой. Условия анализа: объем анализируемой пробы 3 см<sup>3</sup>, вносимое количество  $H_3PO_4$  5% от объема пробы, время продувки 3 мин, объем раствора персульфата 0.5 см<sup>3</sup>, время окисления и регистрации пика углекислого газа 5 мин.

Определение ацетат-ионов проводили с использованием ионного хроматографа «Стайер-А» в соответствии с аттестованной методикой измерений массовой концентрации фторидов, ацетатов, хлоридов, нитритов, нитратов, сульфатов и оксалатов при соблюдении следующих условий элюирования: колонка Transginomic AN-2 ( $250 \times 4.6$  мм), элюент 15 мМ раствор NaOH, расход элюента 1.2 см<sup>3</sup>/мин, температура термостата ячейки кондуктометрического детектора 30°С.

#### РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Оценка доли иодат-ионов в теплоносителе. В табл. 1 представлены значения доли иодат-ионов в суммарном содержании физико-химических форм радионуклидов иода в пробе. Также в табл.1 для

РАДИОХИМИЯ том 64 № 2 2022



Рис. 2. Схема сорбционной колонки. *1* – крышки, *2* – корпус, *3* – аэрозольный фильтр АФА-РСП, *4* – сетки, *5* – сорбент для улавливания элементарного иода, *6* – сорбент Силоксид.

всех проб приведены концентрации аммиака и уровень мощности реактора на момент отбора пробы.

Из данных, представленных в табл. 1, видно, что изучен достаточно широкий диапазон концентраций аммиака: 36-79 мг/кг (допустимое значение параметра согласно норам ВХР составляет 10-100 мг/кг). Рассмотренный диапазон концентраций аммиака отвечает разбросу значений pH (25°C) 9.9-10.4 (допустимое значение параметра согласно норам ВХР 9.00-10.5). Также рассмотрен широкий набор значений уровня мощности реактора – максимальное и минимальное значения различаются в 6 раз (от 10 до 60% от номинального уровня мощности). При этом во всех рассмотренных случаях доля иодат-ионов в суммарном содержании всех физико-химических форм каждого радионуклида иода при работе реактора на стационарном уровне мощности не превышает 1.4%. В целом разброс значений относительного содержания иодат-ионов в теплоносителе, по-видимому, отвечает погрешности определения параметра.

Химический процесс, приводящий к формированию иодат-ионов в условиях щелочного ВХР, можно писать следующим набором реакций:

$$I_2 + 2OH^- \rightarrow I^- + OI^- + H_2O \tag{1}$$

$$I^- + H_2O_2 \rightarrow IO^- + H_2O, \qquad (2)$$

$$I^- + 2OH^{\bullet} \rightarrow HIO + OH^- \rightarrow IO^- + H_2O,$$
 (3)

$$3\mathrm{IO}^{-} \rightarrow 2\mathrm{I}^{-} + \mathrm{IO}_{3}^{-}, \qquad (4)$$

$$IO^- + nOH^{\bullet} \rightarrow IO_3^-.$$
 (5)

При этом, согласно работе [14], определяющее значение для образования иодат-иона имеет реакция (4). Таким образом, минимальное содержание окисленных форм иода при всех рассмотренных уровнях содержания аммиака в теплоносителе и при всех режимах работы ЯЭУ на стационарных уровнях мощности свидетельствует о практически полном отсутствии в теплоносителе соединений-окислителей (в частности пероксида водорода) и об эффективном подавлении процесса радиолиза теплоносителя, т.е. о стабильности поддержания восстановительного водно-химического режима первого контура.

Определение доли иодат-ионов при снижении мощности реактора и при останове. Исследования трансформации форм радионуклидов иода в теплоносителе при переходных режимах работы реакторной установки, включая останов, были проведены при маневрах мощности реактора 30%, 10%, МКУ (минимально контролируемый уровень мощности) и 0%. В табл. 2 приведены данные по изменению относительного содержания иодат-ионов в теплоносителе, рассчитанные по сравнительно долгоживущим радионуклидам <sup>131</sup>I, <sup>133</sup>I и <sup>135</sup>I.

Из данных, представленных в табл. 2, видно, что содержание иодат-ионов в теплоносителе при переходе реактора с мощности 30% на мощность 10% не изменяется. При уменьшении мощности реактора с 10% до МКУ доля иодат-ионов заметно возрастает. После останова тенденция к увеличению относительного содержания иодат-ионов сохраняется и достигает 24.7% по нуклидам <sup>131</sup>I и <sup>133</sup>I.

Аналогичный рост доли иодат-ионов в сумме всех физико-химических форм при останове наблюдается на реакторах типа PWR с борно-литиевым водно-химическим режимом первого контура. В работе [15] представлен обзор экспериментальных результатов, свидетельствующих о росте содержания иодат-ионов при останове реактора типа PWR. Авторы работы [15] объясняют эффект роста доли иодат-ионов при останове влиянием температуры на окислительно-восстановительный потенциал теплоносителя. По аналогии можно предположить, что и на ТЯЭУ при останове происходит некоторое снижение восстановительного потенциала среды, **Таблица 2.** Зависимость содержания радионуклида в виде иодат-ионов относительно суммарного содержания радионуклида в теплоносителе от мощности работы реактора

		Доля иодат-ионов				
№ пробы		относительно				
	Р, %Р <sub>н</sub>	количества				
		радионуклида в				
		теп.	поносит	еле, %		
		<sup>131</sup> I	<sup>133</sup> I	<sup>135</sup> I		
1	30	1.2	1.4	1.8		
2	10	1.2	0.8	1.1		
3	МКУ	7.1	3.6	3.3		
4	0 (27 ч после останова)	13.4	21.2	—		
5	0 (70 ч после останова)	24.7	—	_		

приводящее к росту окисленных форм (вероятно, как следствие роста содержания в теплоносителе пероксида водорода исходя из реакций (1)–(5)).

Анализ химического состава газов в первом контуре. За все время испытаний газовый режим ЯЭУ оставался стабильным, содержание кислорода в теплоносителе и в газе компенсатора объема находилось на минимальном уровне. На стационарный уровень установка выходила через 60-70 сут с начала работы на энергетических уровнях мощности. Концентрации газов, растворенных в теплоносителе, находились в следующих диапазонах: гелий от 0.01 до 0.28, водород от 28.7 до 155, кислород от 0.01 до 0.19, азот от 72 до 1770, углекислый газ от 0.0006 до 0.003, метан от 0.001 до 1.66 мл<sub>н у</sub>/кг. Кроме метана при испытаниях определяли и другие углеводороды. В табл. 3 приведены минимальные и максимальные относительные доли метана, этана, пропана и бутанов во всех циклах.

Из табл. З видно, что соотношение предельных углеводородов практически не менялось во всех циклах испытаний. При работе реактора происходит термолиз и радиолиз органических примесей в теплоносителе I контура с образованием предельных газообразных углеводородов от метана до бута-

Таблица 3. Относительные доли предельных углеводородов, продуктов разложения органических примесей

	Относительная доля, %					
Значения	Метан	Этан	Пропан	Изобутан	н-Бутан	
Минимальные	$92.90\pm0.13$	$4.90\pm0.12$	$1.14\pm0.08$	$0.49\pm0.05$	$0.09\pm0.02$	
Максимальные	$94.05\pm0.35$	$4.20\pm0.38$	$1.54\pm0.02$	$0.56\pm0.18$	$0.15\pm0.01$	

РАДИОХИМИЯ том 64 № 2 2022

Физико-химические формы	<sup>131</sup> I	<sup>132</sup> I	<sup>133</sup> I	<sup>134</sup> I	<sup>135</sup> I
Органические	$3.3 \times 10^{-2}$	$1.3 \times 10^{-3}$	$1.4 \times 10^{-2}$	$1.9 \times 10^{-2}$	$3.0 \times 10^{-2}$
Неорганические	$2.1 \times 10^{-2}$	$1.6 \times 10^{-3}$	$2.4 \times 10^{-2}$	$1.1 \times 10^{-2}$	$2.7  imes 10^{-2}$

Таблица 4. Максимальная доля (%) летучих органических и неорганических форм иода, перешедших из теплоносителя в газовую фазу при дегазации пробы

на. Основным компонентом является метан, относительная доля которого составляет около 93–94%, доля этана – 4.2–4.9%. Также замечено, что при остановке реактора содержание предельных углеводородов в теплоносителе I контура снижается практически до нуля из-за пиролиза углеводородов.

Таким образом, в опытах по исследованию распределения физико-химических форм радионуклидов иода в теплоносителе и его зависимости от содержания примесей (в первую очередь органических) состав данных примесей в теплоносителе был достаточно постоянным. Содержание летучих органических соединений в теплоносителе не превышало  $7 \times 10^{-5}$  моль/кг (1.66 мл<sub>н.у.</sub>/кг) и в основном было обусловлено присутствием в контуре метана. Таким образом, можно ожидать, что содержание летучих органических форм радионуклидов иода в теплоносителе первого контура ТЯЭУ также крайне низкое.

Определение летучих форм радионуклидов иода в газовой фазе теплоносителя. В табл. 4 представлены обобщенные значения доли летучих органических и неорганических форм иода, перешедших из теплоносителя в газовую фазу при дегазации пробы.

Из данных табл. 4 видно, что максимальная доля органических форм изотопов  $^{131-135}$ I в газовой фазе крайне мала и не превышает  $3.3 \times 10^{-2}$ %, находясь в диапазоне  $1.3 \times 10^{-3}$ – $3.3 \times 10^{-2}$ %. Доля неорганических форм радионуклидов иода  $^{131-135}$ I охватывает диапазон от  $1.6 \times 10^{-3}$  до  $2.7 \times 10^{-2}$ %. Таким образом, доля летучих органических и неорганических форм радионуклидов иода, переходящих в газовую фазу при дегазации пробы теплоносителя, от суммарной активности всех физико-химических форм радионуклидов иода не превышает  $3.3 \times 10^{-2}$  и  $2.4 \times 10^{-2}$ % соответственно.

Столь низкое содержание летучих форм иода объясняется аммиачным водно-химическим режимом теплоносителя. Летучие неорганические

РАДИОХИМИЯ том 64 № 2 2022

формы иода – иодоводород и молекулярный иод. Однако щелочная среда, отвечающая аммиачному ВХР, ограничивает образование молекулярного иода. В статье [14] показано, что выход реакции образования молекулярного иода при переходе к рН 9 падает практически до нуля. Кроме того, в щелочных условиях образующийся молекулярный иод активно гидролизуется по реакции

$$I_2 + 2OH^- \rightarrow I^- + OI^- + H_2O$$
 (6)

Приведенный факт подтверждается данными статьи [16], в которой показано, что в щелочных условиях (pH  $\approx$  9) летучие формы радионуклидов иода, образовавшиеся в основном контуре реактора, полностью разлагаются. Летучесть иодоводорода в условиях щелочного ВХР также будет находиться на низком уровне.

Аналогично, в условиях щелочной среды, отвечающей аммиачному ВХР, метилиодид (основная органическая форма существования иода) быстро гидролизуется по реакции [14]

$$CH_3I + OH^- \rightarrow CH_3OH + I^-.$$
 (7)

Как было отмечено в предыдущем разделе статьи, низкое содержание летучих органических форм радионуклидов иода в теплоносителе первого контура обусловлено низким содержанием в первом контуре самих летучих органических соединений.

В табл. 5 представлены предельные значения относительного содержания летучих органических и неорганических форм иода в теплоносителе, переходящих в газовую фазу при дегазации пробы, а также содержание в теплоносителе метана, ацетат-иона и общего органического углерода.

Примечание:  $c(CH_4)$  – концентрация метана в теплоносителе;  $c(CH_3COO^-)$  – концентрация ацетат-ионов в теплоносителе; c(OOY) – концентрация общего органического углерода в теплоносителе;  $\delta$  – максимальное относительное содержание летучих органических и неорганических форм иода в теплоносителе, переходящих в газовую фазу при

дегазации пробы; прочерк означает, что измерения данного показателя не производилось.

Из табл. 5 видно, что однозначной корреляции между максимальным относительным содержанием летучих форм иода, переходящих в газовую фазу при дегазации пробы, и содержанием в теплоносителе общего органического углерода и ацетат-иона не наблюдается. В то же время при изменении содержания метана в пределах от 0.25 до 0.50 мл<sub>н у</sub>/кг максимальное относительное содержание летучих органических и неорганических форм иода в теплоносителе, переходящих в газовую фазу при дегазации пробы, сохранялось примерно на одном уровне 0.002-0.003 %, а при возрастании концентрации метана до 1.02 мл<sub>н у</sub>/кг увеличивалось в 10 раз до 0.03%. Таким образом, можно предположить, что при более высоком содержании летучих органических примесей в теплоносителе (низком качестве поддержания водно-химического режима) содержание летучих форм иода в первом контуре может возрастать.

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Преобладающей химической формой иода в теплоносителе первого контура при работе реактора с аммиачным водно-химическим режимом на мощности является нелетучая иодидная форма (98% и более). Доля летучих органических и неорганических форм радионуклидов иода, переходящих в газовую фазу при дегазации проб теплоносителя ТЯЭУ, не превышает  $3.3 \times 10^{-2}$  и  $2.4 \times 10^{-2}$ % от общего содержания иода соответственно. Низкое содержание летучих форм иода объясняется аммиачным водно-химическим режимом теплоносителя и является его важным достоинством, обеспечивающим радиационную безопасность при эксплуатации ТЯЭУ.

При всех уровнях содержания аммиака в теплоносителе и всех рассмотренных режимах работы ЯЭУ на мощности в контуре содержание окисленных форм иода находится на крайне низком уровне – доля иодат-ионов в суммарном содержании всех физико-химических форм радионуклидов иода не превышает 1.4%. Данный факт свидетельствует о стабильности поддержания восстановительного

iery nik popia nodu b remiencentene nepbere kentypu					
№ пробы	<i>с</i> (СН <sub>4</sub> ), мл <sub>н.у.</sub> /кг	<i>с</i> (CH <sub>3</sub> COO <sup>-</sup> ), мкг/дм <sup>3</sup>	<i>с</i> (ООУ), мкг/дм <sup>3</sup>	δ, %	
1	_	20	90	_	
2	_	41	128	_	
3	1.02	26	153	0.030	
4	_	28	153	_	
5	_	31	113	_	
6	0.50	26	100	0.003	
7	0.25	14	131	0.002	
8	0.56	24	146	0.001	
9	0.48	_	_	0.001	
	1	1	1		

водно-химического режима теплоносителя первого контура.

Рост доли иодат-ионов в суммарном содержании всех физико-химических форм радионуклидов иода в теплоносителе при останове реактора, по-видимому, связан с изменением окислительно-восстановительного потенциала среды в результате процессов, протекающих при выводе установки с мощности. Аналогичная ситуация наблюдается и в первом контуре реакторов типа PWR с борно-литиевым BXP при их останове.

#### БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают благодарность к.х.н. Ю.В. Цапко и к.х.н. А.И. Горшкову. Особый вклад в получение результатов и анализ работы внес скоропостижно скончавшийся к.т.н. В.В. Четвериков (1953–2018).

### ФОНДОВАЯ ПОДДЕРЖКА

Работа выполнена в инициативном порядке на собственные средства Научно-исследовательского технологического института им. А.П. Александрова.

#### КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

**Таблица 5.** Содержание органических соединений и летучих форм иода в теплоносителе первого контура

# ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ ФОРМЫ ИОДА В ТЕПЛОНОСИТЕЛЕ ПЕРВОГО КОНТУРА ЯЭУ 157

# СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Weterings P.J.J.M., Loftus C., Lewandowski T.A. // Toxicol. Lett. 2016. Vol. 257. P. 38–43.
- Sawka A.M., Brierley J.D., Tsang R.W., Thabane L., Rotstein L., Gafni A., Straus S., Goldstein D.P. // Endocrinol. Metab. Clin. N. Am. 2008. Vol. 37. P. 457– 480.
- Park H.S., Roman S.A., Sosa J.A. // Cancer. 2010. P. 20– 30.
- Girault N., Payot F. // Ann. Nucl. Energy. 2013. Vol. 61. P. 143–156.
- Lin C-C., Chao J-H. // J. Nucl. Sci. Technol. 2009. Vol. 46. P. 1023–1031.
- Wren J.C. // The First European Review. Meet. on Severe Accident Research. France, 2005.11 p.
- Pecthl S., Schmitz G., von Clasow R. // At. Chem. Phys. 2007. N 7, P. 1381–1393.

- Xerri B., Canneaux S., Louis F., Trincal J., Cousin F., Badawi M., Cantrel L. // Comput. Theor. Chem. 2012. Vol. 990. P. 194–208.
- Cantrel L., Louis F., Cousin F. // Ann. Nucl. Energy. 2013. Vol. 61. P. 170–178.
- 10. *Girault N., Fiche C., Bujan A., Dienstbier J.*// J. Nucl. Eng. Des. 2009. Vol. 239. P. 1162–1170.
- Москвин Л.Н., Мельников В.А., Четвериков В.В., Глушков С.В. // Радиохимия. 1986. Т. 28, № 2. С. 208– 212.
- 12. Епимахов В.Н., Мысик С.Г., Четвериков В.В. Патент РФ № 2225648. 2003 // Б.И. № 7.
- 13. Мельников В.А., Москвин Л.Н., Четвериков В.В. // Радиохимия. 1983. Т. 25, № 5. С. 675–679.
- Lin C-C. // J. Inorg. Nucl. Chem. 1981. Vol. 43. P. 1101– 1107.
- Tigeras A., Bachet M., Catalette H., Simoni E. // Prog. Nucl. Energy. 2012. Vol. 53. P. 504–515.
- Simondi-Teisseire B., Girault N., Payot F., Clement B. // Ann. Nucl. Energy. 2013. Vol. 61. P. 157–169.