

# Исследование накопления трансурановых элементов в горючем реактора ВК-50

В. Я. ГАБЕСКИРИЯ, В. С. БЕЛОКОШЫГОВ, Ю. Б. НОВИКОВ,  
В. Г. ПОЛЮХОВ, В. М. САРЫЧЕВ, Г. А. СИМАКИН, А. П. ЧЕТВЕРИКОВ УДК 621.039.524.4—97:621.311.25:621.039

С целью экспериментального определения изотопного состава облученного горючего в водо-водяном реакторе кипящего типа исследовался изотопный состав облученного горючего в образцах, вырезанных из твэла реактора ВК-50. Были поставлены следующие задачи: а) определение изотопного состава урана, плутония и америция после облучения горючего; б) определение количества изотопов плутония, америция и кюрия, образовавшихся в результате облучения; в) определение зависимости накопления трансурановых элементов от глубины выгорания.

## Приготовление и растворение образцов

Кассета, из которой был извлечен твэл, облучалась в течение 657 эф. суток и затем выдерживалась более года. В качестве горючего использовалась двуокись урана с обогащением 2%.

Анализ показал, что облучение не вызвало существенных изменений структуры горючего. В структуре горючего не наблюдались температурные зоны (оплавление, столбчатые зерна и рост равноосных зерен); это свидетельствует о том, что температура двуокиси урана в центре брикета не превышала 1600°С (рис. 1). Из твэла были вырезаны четыре образца (рис. 2), которые располагались по длине твэла, чтобы можно было получить сведения об изменении изотопного состава горючего и накопления трансурановых элементов при различных глубинах выгорания. Вес образцов составлял 0,6—1 г. Затем образцы растворялись в смеси концентрированных хлорной и азотной кислот (при нагревании). Полученный раствор доводили 8 н. азотной кислотой до 100 мл.

## Методы исследования

**Радиометрический анализ.** Из анализируемого раствора без предварительного химического разделения трансурановых элементов отбирались аликвоты для приготовления мишеней, которые использовались для снятия  $\alpha$ -спектра и определения суммарной  $\alpha$ -активности. По результатам  $\alpha$ -спектрометрического анализа с учетом данных абсолютного  $\alpha$ -счета определялось содержание  $\text{Sm}^{242}$  и  $\text{Sm}^{244}$ .

Альфа-спектрометрические измерения проводились с помощью альфа-спектрометра на основе полупроводникового кремниевого детектора. Энергетическое разрешение  $\alpha$ -спектрометра по линии  $\text{Am}^{241}$  (5486 кэв) составляло  $\sim 40$  кэв. Абсолютное измерение активности мишеней с  $\alpha$ -излучателями проводилось на проточном пропорциональном  $\alpha$ -счетчике с 4л-геометрией. Ошибка определения  $\alpha$ -активности измеряемых препаратов не превышала  $\pm 2\%$ . Точность окончательных результатов по определению содержания  $\text{Sm}^{242}$  и  $\text{Sm}^{244}$  составила  $\pm 20\%$ .

Содержание продуктов деления определяли по  $\gamma$ -активности изотопов  $\text{Cs}^{137}$  и  $\text{Ce}^{144}$  с использованием гамма-спектрометра на основе коаксиального  $\text{Ge}(\text{Li})$ -детектора объемом 21,7 см<sup>3</sup> и площадью чувствительной поверхности 6,76 см<sup>2</sup>.

Энергетическое разрешение  $\gamma$ -спектрометра по линии  $\text{Ba}^{137}$  (662 кэв) составляло  $\sim 6,5$  кэв. Точность определения количества  $\text{Cs}^{137}$  и  $\text{Ce}^{144}$  в исследуемых образцах была не хуже 15%.

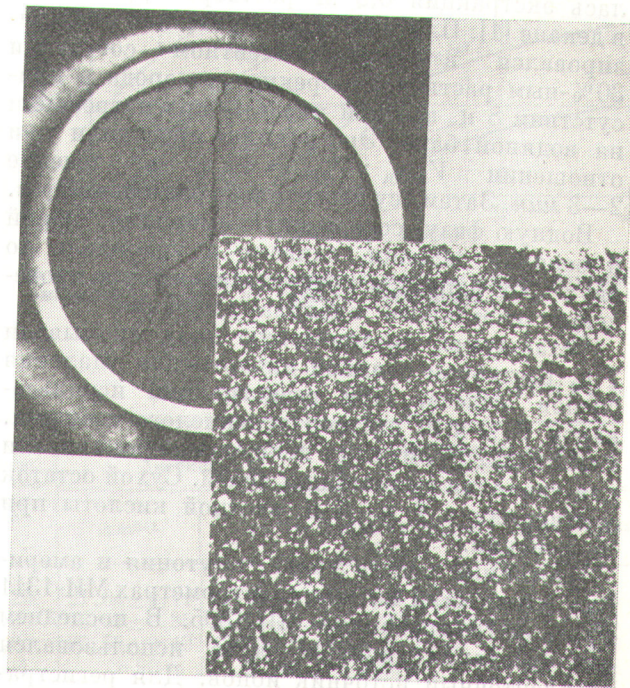
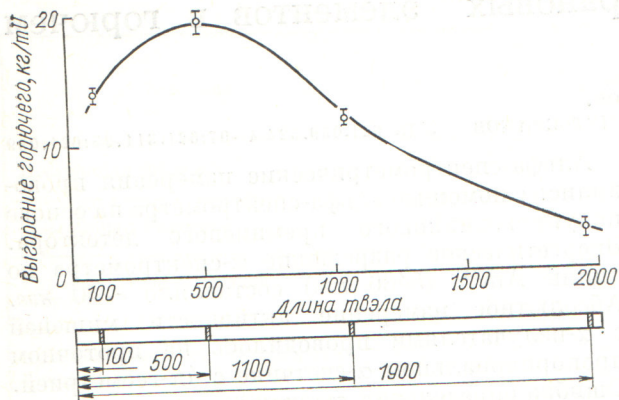


Рис. 1. Макро- и микроструктура горючего.



Р и с. 2. Распределение выгорания по длине твэла.

**Определение изотопного состава урана, плутония и америция.** Для определения изотопного состава урана на испаритель трехленточного источника ионов масс-спектрометра наносился исходный раствор анализируемого образца.

Для проведения изотопного анализа плутония последний выделялся из анализируемого раствора и очищался от осколочных элементов. Для выделения и очистки плутония применялась экстракция 0,5 М раствором Д-2 ЭГФК в декане [1]. Плутоний предварительно стабилизировался в четырехвалентном состоянии 30%-ным раствором перекиси водорода в присутствии 8 н. азотной кислоты при нагревании на водяной бане. Экстракцию проводили при отношении  $V_{\text{вода}} : V_{\text{орг}} = 1 : 1$  в течение 2—3 мин. Затем осуществлялось разделение фаз.

Водную фазу, содержащую америций, кюрий и осколки деления, сливали и упаривали до двух-трех капель и подготавливали для проведения изотопного анализа америция.

Оставшуюся органическую фазу промывали 7 н. раствором соляной кислоты для удаления следов железа. При реакстрации использовался 10%-ный раствор углекислого аммония. Реакстракт промывали деканом и прокачивали для удаления аммонийных солей. Сухой остаток растворяли в 1 мл 8 н. азотной кислоты при нагревании.

Изотопный состав урана, плутония и америция определяли на масс-спектрометрах МИ-1311 и реконструированном МИ-1305. В последнем для создания ионного луча использовался трехленточный источник ионов. Для регистрации ионного тока применялся счетчик ионов

типа СИ-01. В качестве ионизатора использовалась ренийевая фольга. Методика анализа была аналогична описанной в работе [2].

**Определение содержания изотопов урана, плутония и америция.** Количество урана в анализируемом образце определяли методом Сахарова [3], а содержание изотопов плутония и америция — методом изотопного разбавления [4]. В аликвотную часть анализируемого раствора вносились эталонные метки  $\text{Pu}^{242}$  и  $\text{Am}^{243}$ . После тщательного перемешивания смеси проводилось химическое выделение плутония и америция. В дальнейшем использовалась методика, описанная в работе [5]. Для определения содержания плутония и америция проводилось два и более параллельных анализа.

### Результаты эксперимента

**Экспериментальные данные по содержанию и изотопному составу урана, плутония и америция.** Результаты определения количества урана, плутония и америция в образцах приведены в табл. 1. Здесь же представлены данные радиометрического анализа содержания  $\text{Sm}^{242}$ ,  $\text{Sm}^{244}$ ,  $\text{Cs}^{137}$  и  $\text{Ce}^{144}$ . Как видно из табл. 1, содержание тяжелых изотопов плутония в образце 2 достигает 39%.

Ошибка в определении количества урана в образцах по методу Сахарова составляет  $\pm 5\%$ . Погрешность в определении количества плутония методом изотопного разбавления составила  $\pm 3\%$ , количество америция определено с точностью не хуже  $\pm 5\%$ . В образце 4 количество америция было оценено по результатам радиометрического анализа. Содержание трансурановых и осколочных элементов пересчитано на момент выгрузки кассеты из реактора.

**Зависимость содержания изотопов урана, плутония и америция от глубины выгорания.** По экспериментальным результатам, приведенным в табл. 1, определявшихся за счет деления образцов деления, образовавшихся за счет деления

Содержание изотопов трансурановых элементов и

Номер образца	Количество урана, мг	Содержание изотопов урана, %			Количество плутония, мг
		U235	U236	U238	
1	660	0,86±0,01	0,18±0,01	98,96±0,02	2,972
2	715	0,64±0,01	0,22±0,01	99,14±0,02	4,511
3	570	0,94±0,02	0,18±0,01	98,89±0,02	1,924
4	780	1,70±0,02	0,069±0,004	98,23±0,02	0,757

$U^{235}$ ,  $Pu^{239}$  и  $Pu^{241}$ . Выгорание  $X$  за счет деления  $U^{235}$  рассчитывали по формуле

$$X = 1000 \left[ \gamma_0^5 - (\gamma_i^5 + \gamma_i^6) \frac{\gamma_0^8}{\gamma_i^8 + z\omega} \right] \text{ кг/т U}, \quad (1)$$

где  $\gamma_0^i$ ,  $\gamma_i^i$  — относительное содержание  $i$ -го изотопа до и после облучения ( $i$  — последняя цифра массового числа данного изотопа);  $z$  — измеренное отношение содержания плутония к урану в исследуемом образце.

Величина  $\omega$  в формуле (1) определяется из выражения

$$\omega = \gamma_i^9 + \frac{1 + \alpha^9}{\alpha^9} (\gamma_i^0 + \gamma_i^1 + \frac{1 + \alpha^1}{\alpha^1} \gamma_i^2), \quad (2)$$

где  $\alpha^i$  — отношение эффективного сечения радиационного захвата к сечению деления  $i$ -го изотопа.

Значения величины  $\alpha^9$  и  $\alpha^1$  для изотопов  $Pu^{239}$  и  $Pu^{241}$  взяты из работы [6].

Вклад изотопов плутония в общее выгорание  $Y$  рассчитывался по формуле

$$Y = \frac{z(1000 - X)(\omega - 1)}{1 + z\omega} \text{ кг/т U}. \quad (3)$$

Результаты расчетов выгорания в образцах, а также данные по содержанию изотопов урана, плутония, америция и кюрия в пересчете на тонну исходного урана приведены в табл. 2 и представлены в виде графиков на рис. 2—4.

Погрешность определения выгорания  $U^{235}$  определяется в основном ошибкой изотопного анализа и уменьшается с увеличением величины выгорания. Погрешность определения выгорания в образце с малым выгоранием составила  $\pm 8\%$ , для остальных образцов она не превышает  $\pm 3\%$ .

Вклад плутония в общее выгорание определяется с точностью  $\pm(12 \div 15)\%$ , так как величины  $\alpha^9$  и  $\alpha^1$  известны с точностью  $\pm(5 \div 10)\%$  и ошибка в определении величины  $z$  составляет  $\pm 6\%$ .

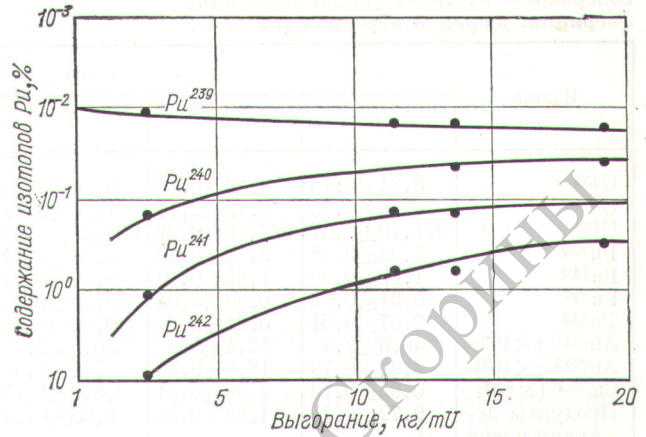


Рис. 3. Зависимость изотопного состава плутония от глубины выгорания.

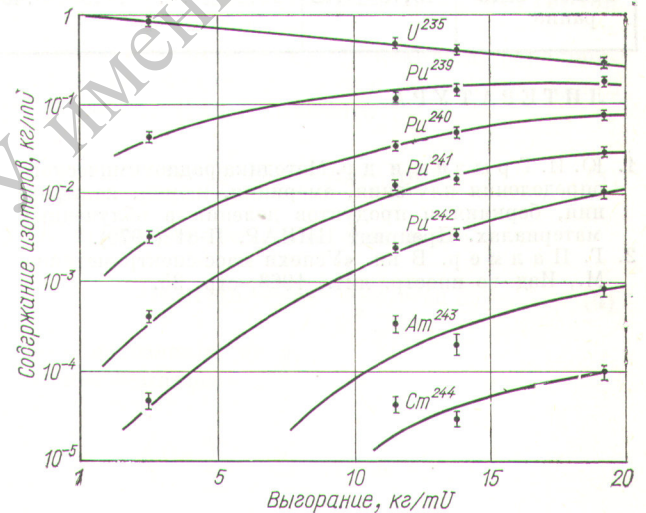


Рис. 4. Зависимость содержания изотопов урана, плутония, америция и кюрия от глубины выгорания.

осколков деления в исследуемых образцах

Таблица 1

Содержание изотопов плутония, %				Количество америция, мкг	Содержание изотопов америция, %		Содержание других изотопов, мкг			
Pu <sup>239</sup>	Pu <sup>240</sup>	Pu <sup>241</sup>	Pu <sup>242</sup>		Am <sup>241</sup>	Am <sup>243</sup>	Cm <sup>242</sup>	Cm <sup>244</sup>	Cs <sup>137</sup>	Ce <sup>144</sup>
68,37±0,22	23,14±0,19	6,93±0,11	1,56±0,01	29,29	91,04±0,11	8,96±0,11	1,44	0,43	262	86
60,71±0,17	26,30±0,14	9,68±0,08	3,31±0,03	50,34	75,87±0,35	24,13±0,35	3,28	1,62	457	154
69,92±0,12	20,81±0,11	7,68±0,03	1,59±0,02	33,60	87,58±0,19	12,42±0,19	1,66	—	295	139
92,34±0,02	6,77±0,15	0,89±0,02	< 1	~ 4	≥ 90	≤ 10	0,013	—	66	28

Содержание изотопов урана, плутония, америция, кюрия в образцах ( $\mu\text{г}/\text{т U}$ )

Таблица 2

Изотоп	Номер образца			
	1	2	3	4
U <sup>235</sup>	8,34±0,10	6,16±0,10	9,14±0,19	16,73±0,20
U <sup>236</sup>	1,75±0,09	2,12±0,11	1,76±0,09	0,68±0,03
U <sup>238</sup>	971,70±0,97	966,26±0,97	974,15±0,97	979,05±0,98
Pu <sup>239</sup>	3,02±0,18	3,72±0,22	2,34±0,14	0,892±0,054
Pu <sup>240</sup>	1,02±0,06	1,62±0,10	0,70±0,04	0,0657±0,0039
Pu <sup>241</sup>	0,31±0,02	0,60±0,04	0,26±0,02	0,0087±0,0005
Pu <sup>242</sup>	0,07±0,01	0,21±0,01	0,06±0,01	< 0,0001
Am <sup>241</sup> ( $\times 10^3$ )	40,0±2,9	52,4±3,8	50,8±2,3	< 0,45·10 <sup>-3</sup>
Am <sup>243</sup> ( $\times 10^3$ )	3,95±0,79	16,6±3,8	7,2±1,4	< 5·10 <sup>-5</sup>
Cm <sup>244</sup> ( $\times 10^3$ )	0,63±0,13	2,05±0,41	0,890±0,178	—
Продукты деления урана	9,79±0,29	11,62±0,35	8,68±0,28	2,37±0,19
Продукты деления плутония	3,96±0,48	7,62±0,91	2,87±0,34	0,18±0,02
Общее выгорание	13,75±0,55	19,24±0,97	11,55±0,45	2,55±0,19

Как видно из табл. 2, наибольшая глубина выгорания, равная (19,24 ± 0,97) кг шлаков на 1 т урана, получена в образце 2, расположенном на расстоянии 500 мм от нижнего конца твэла. При этом наблюдается существенный вклад плутония в общее выгорание, который достигает 39%. Распределение выгорания по длине твэла сравнивалось по количеству шлаков, определенных в результате масс-спектрометрического анализа, и по содержанию осколков Cs<sup>137</sup> и Ce<sup>144</sup>. При этом в пределах ошибок существенной миграции Cs<sup>137</sup> не обнаружено.

Поступила в Редакцию  
20/IV 1972 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ю. И. Грызгин и др. Методика радиохимического определения плутония, америция, кюрия, калифорния, берклия и продуктов деления в облученных материалах. Препринт НИИАР, П-81 (1970).
2. Г. Палмер. В кн. «Успехи масс-спектрометрии», М., Изд-во иностр. лит., 1963, стр. 35.
3. В. К. Марков и др. Уран, методы его определения. М., Атомиздат, 1965.
4. Уэбстер. См. [2], стр. 107.
5. В. Я. Габескирия и др. Исследование накопления изотопов плутония в топливе реактора ВВЭР-1 Ново-Воронежской АЭС. Препринт НИИАР, П-66 (1970).
6. Neutron Cross Section BNL-325, Second Edition Suppl. No. 2, Vol. 3, 1965.

РЕПОЗИТОРИЙ АУМЕНИ