

УДК 621.039.519

Определение выгорания топлива в реакторе ВВЭР

Новиков Ю. Б., Габескирия В. Я., Грызина В. В., Тихомиров В. В.

Одной из основных проблем аналитического контроля в ядерном топливном цикле является разработка методов определения выгорания с достаточно высокой точностью. Знание выгорания отработавшего топлива АЭС необходимо для разработки и осуществления гарантий МАГАТЭ и оптимизации топливных циклов.

Цель настоящей статьи — разработка точных методов определения выгорания топлива в водородных реакторах двумя способами.

1. Определение выгорания по изменению изотопного состава топлива с использованием расчетных выражений (метод тяжелых атомов).

2. Определение выгорания по измерению отношения числа атомов продукта деления (монитора выгорания) к числу тяжелых атомов в растворенном образце твэла.

В качестве основного аналитического метода, позволяющего применить оба способа, выбран масс-спектрометрический метод изотопного разбавления [1]. При этом для измерения отношения изотопов разных элементов использовалась смесь меченых индикаторов. Методики отработывали на образцах, вырезанных из облученных твэлов реактора ВВЭР-365.

Метод тяжелых атомов. Для определения выгорания этим методом были составлены следующие расчетные уравнения изменения изотопного состава топлива, которые решались на ЭВМ итерационным методом:

$$F_5 = \gamma_0^5 - (\gamma_i^5 + k^6 \gamma_i^6) \frac{\gamma_0^8}{\gamma_i^8 + z\omega + \kappa F_8}; \quad (1)$$

$$F_{9,1} = \frac{z(\omega - \xi)}{1 + z\omega + \kappa F_8} (1 - F_5); \quad (2)$$

$$F_1 = \frac{z(\gamma_i^2 + p_i^2 + p_i^4)}{\alpha_1(1 + z\omega + \kappa F_8)} (1 - F_5); \quad (3)$$

$$E_9 = F_{9,1} - F_1; \quad (4)$$

$$F_8 = \mu \left(F_5 + \frac{\nu_9}{\nu_5} F_9 + \frac{\nu_1}{\nu_5} F_1 \right); \quad (5)$$

$$\kappa = \frac{1 + z + m + n}{1 - \sum_i F_i}, \quad (6)$$

k^6 — расчетная поправка на убыль ^{236}U в результате радиационного захвата нейтронов; z, m, n — измеренное отношение числа атомов плутония, америция и кюрия к числу атомов урана; p_i^i — измеренное отношение числа атомов i -го изотопа америция или кюрия к числу атомов плутония ($\sum_i p_i^i + 1 = \xi$); ν_i — число ней-

тронов на акт деления i -го изотопа ($\nu_5 = 2,43$;

$\nu_9 = 2,89$; $\nu_1 = 3,00$ [2]).

Величина ω определялась по формуле

$$\omega = \gamma_i^0 + \frac{1 + \alpha_9}{\alpha_9} [\gamma_i^0 + \gamma_i^1 + p_i^1 + \frac{1 + \alpha_1}{\alpha_1} (\gamma_i^2 + p_i^2 + p_i^4)]. \quad (7)$$

Отношение эффективного сечения радиационного захвата к сечению деления ^{239}Pu и ^{241}Pu — α взято из результатов нейтронно-физического расчета уран-водной решетки реакторов ВВЭР по программе ROP [3]. Отношение числа делений ^{238}U к числу делений ^{235}U — μ определено по коэффициенту размножения на быстрых нейтронах ϵ [4] по формуле

$$\mu = \frac{(\epsilon - 1) \nu_5}{\nu_8 - 1 - \alpha_8}. \quad (8)$$

Значения ν_8 и α_8 ^{238}U приняты для первой группы энергии нейтронов ($E = \infty \div 1,4$ МэВ) в 9-групповом приближении и равны соответственно 2,9 и 0,089 [5]. Коэффициент размножения на быстрых нейтронах вычислен по методике работы [6]. Результаты измерения выгорания в образцах твэлов реактора ВВЭР-365 приведены в табл. 1.

Преимущество метода тяжелых атомов в том, что при исследовании накопления изотопов трансурановых элементов масс-спектрометрическими методами могут быть также получены сведения о глубине выгорания топлива. При

Данные измерения выгорания по методу тяжелых атомов, %

Таблица 1

Образец	F_5	F_9	F_8	F_1	$F_{\text{полн}}$
1	1,406	0,507	0,134	0,046	2,093
2	1,460	0,527	0,144	0,056	2,232
3	0,7898	0,137	0,0622	0,0040	0,9930
4	1,856	0,918	0,202	0,135	3,113

где F_i — выгорание i -го изотопа урана или плутония (i — последняя цифра массового числа), отн. ед.; γ_0^i, γ_i^i — относительное содержание i -го изотопа в элементе до и после облучения;

этом наибольшая точность обеспечивается при расчете выгорания ^{235}U . Погрешность выгорания ^{235}U определяется в основном погрешностью измерения изотопного состава урана и зависит от глубины выгорания топлива; для исследуемых образцов эта погрешность составила 1—4% (погрешность всех экспериментальных данных рассчитана при доверительной вероятности 0,95).

Недостаток метода — необходимость использования нейтронно-физических и ядерных констант. Отсутствие измеренных ε , μ и α для реакторов ВВЭР ограничивает точность определения выгорания ^{238}U и изотопов плутония. В данном случае выгорание ^{238}U следует считать оценочной величиной (погрешность 25%). Погрешность выгорания изотопов плутония при погрешности величины α , равной 10%, составляет в зависимости от глубины выгорания 12—22%. Полное выгорание топлива по методу тяжелых атомов определено с погрешностью 5—7%.

Метод определения выгорания по накоплению продуктов деления. К продукту деления, являющемуся монитором выгорания, предъявляется ряд требований [7, 8].

1. Стабильность монитора выгорания или его большой период полураспада.
2. Малое время жизни предшественников в цепочках выхода монитора.
3. Отсутствие в необлученных твэлах изотопов, являющихся мониторами выгорания.
4. Низкое сечение поглощения нейтронов у монитора и изотопов его цепочки выхода и у цепочки с массовым числом на единицу меньше.
5. Независимый от энергии нейтронов и одинаковый при делении различных ядер выход монитора при делении тяжелых ядер.
6. Отсутствие миграции монитора выгорания и его предшественников в цепочке выхода.

В настоящей работе рассмотрена и экспериментально проверена возможность определения выгорания по накоплению $^{133}, ^{137}\text{Cs}$, $^{140}, ^{142}\text{Ce}$ и $^{143-146}, ^{148}, ^{150}\text{Nd}$. Эти изотопы, за исключением ^{137}Cs , практически стабильны. Распад долгоживущего изотопа ^{137}Cs учитывался введением поправки k^7 :

$$k^7 = \frac{\lambda t_{\text{обл}}}{1 - \exp(-\lambda t_{\text{обл}})} \exp(\lambda t_{\text{выд}}), \quad (9)$$

где λ — постоянная распада; $t_{\text{обл}}$, $t_{\text{выд}}$ — время облучения и выдержки топлива.

Предшественники в цепочках распада выбранных изотопов являются короткоживущи-

ми. Исключение составляет цепочка с массовым числом 144, которая включает в себя ^{144}Ce . В данном случае в измеряемое количество ^{144}Nd вводилась поправка по измеряемому содержанию ^{144}Ce в образцах топлива. Выбранные изотопы не входят в химический состав необлученных твэлов. Большую вероятность миграции в твэлах имеет цезий. Для оценки степени миграции цезия в топливе реакторов ВВЭР выгорание определялось наряду с другими изотопами по накоплению изотопов цезия.

Влияние радиационного захвата нейтронов продуктами деления на накопление выбранных мониторов выгорания оценивалось расчетным способом при сечениях радиационного захвата для теплового спектра нейтронов из работы [9]. Расчеты показали, что влиянием радиационного захвата на накопление мониторов выгорания, за исключением ^{133}Cs и $^{143}, ^{145}\text{Nd}$, можно пренебречь. При определении выгорания по ^{133}Cs вводилась поправка на убыль этого изотопа по измеряемому содержанию ^{134}Cs . Для изотопов неодима выгорание вычислялось по суммарному накоплению $^{143}, ^{144}\text{Nd}$ и $^{145}, ^{146}\text{Nd}$.

Так как в топливе реакторов ВВЭР продукты деления накапливаются в результате выгорания различных изотопов, в настоящей работе введено понятие эффективного выхода $Y_{\text{эф}}$:

$$Y_{\text{эф}} = \sum_j q^j Y_i^j,$$

где q^j — доля делений ядра j в общем числе делений, определяемая по методу тяжелых атомов; Y_i^j — выход i -го изотопа при делении j -го ядра. Выход выбранных изотопов слабо зависит от энергии нейтронов. Значения выходов, согласно рекомендациям комитета по ядерным данным, приняты из работы [10].

Методика масс-спектрометрического анализа цезия, церия и неодима отрабатывалась на природных элементах и пробах, выделенных из образцов облученного топлива. При количественном определении цезия, церия и неодима методом изотопного разбавления в качестве меченых индикаторов использовались ^{133}Cs , ^{140}Ce , ^{142}Nd , концентрация которых была известна с погрешностью 0,5%. При изотопном разбавлении неодима учитывалось содержание в осколочном неодиме ^{142}Nd , который, как показали расчеты и анализ экспериментальных данных, образуется по цепочке $^{141}\text{Pr} + n \rightarrow ^{142}\text{Pr} \xrightarrow{\beta} ^{142}\text{Nd}$. Погрешность определения содержания цезия, церия и неодима относи-

Результаты измерения выгорания, кг/т U

Таблица 2

Изотоп	Образец			
	1	2	3	4
$^{133+134}\text{Cs}$	$20,9 \pm 1,1$	$22,9 \pm 1,2$	$9,45 \pm 0,40$	$31,1 \pm 1,7$
^{137}Cs	$20,9 \pm 1,3$	$22,6 \pm 1,3$	$8,95 \pm 0,47$	$31,1 \pm 2,1$
^{140}Ce	$21,11 \pm 0,91$	$22,26 \pm 0,89$	$9,51 \pm 0,33$	$32,5 \pm 1,5$
^{142}Ce	$21,2 \pm 1,2$	$22,4 \pm 1,1$	$9,55 \pm 0,41$	$32,5 \pm 1,9$
$^{143+144}\text{Nd}$	$20,96 \pm 0,96$	$22,09 \pm 0,98$	$9,57 \pm 0,40$	$32,3 \pm 1,6$
$^{145+146}\text{Nd}$	$21,1 \pm 1,1$	$22,1 \pm 1,0$	$9,60 \pm 0,39$	$31,4 \pm 1,8$
^{148}Nd	$20,8 \pm 1,1$	$21,8 \pm 1,1$	$9,53 \pm 0,46$	$31,4 \pm 2,0$
^{150}Nd	$21,6 \pm 1,1$	$22,7 \pm 1,1$	$9,96 \pm 0,43$	$32,3 \pm 1,7$
Среднее по продуктам деления	$21,07 \pm 0,20$	$22,39 \pm 0,28$	$9,53 \pm 0,33$	$31,89 \pm 0,52$
Метод тяжелых атомов	$20,79 \pm 0,89$	$22,17 \pm 0,97$	$9,84 \pm 0,46$	$30,9 \pm 1,4$

тельно урана в исследуемых образцах составила 2,7; 1,1 и 1,3% соответственно.

Результаты измерения выгорания по накоплению различных изотопов приведены в табл. 2. Погрешность результатов измерения (2σ) — это погрешности определения относительного содержания изотопов в образцах и выхода изотопов при делении тяжелых ядер. При этом последняя дает основной вклад в погрешность определения выгорания.

Анализ полученных данных при различной глубине выгорания топлива показывает хорошее совпадение результатов измерения выгорания по различным изотопам. Это дает основание предположить, что отсутствует влияние миграции цезия на результаты определения выгорания по этому элементу и процесс радиационного захвата нейтронов продуктами деления их не искажает. Сравнение результатов определения выгорания, полученных разными методами (см. табл. 2), показывает хорошее их совпадение.

При исследовании накопления изотопов трансурановых элементов в облученном топливе выгорание может быть определено по методу тяжелых атомов с погрешностью 7%. Более точно (с погрешностью 1—3%) выгорание может быть

определено по измерению в топливе содержания ряда продуктов деления.

Поступила в Редакцию 20/IX 1976 г.
В окончательной редакции 7/II 1977 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Уэбстер Р. В кн.: Успехи масс-спектрометрии. М., Изд-во иностр. лит., 1963, с. 107.
2. Neutron Cross Section. BNL-325. 2nd ed., 1965, Suppl. 2, v. 3.
3. Сидоренко В. Д., Беляева Е. Д. Препринт ИАЭ-19/895. М., 1966.
4. Столяров Г. А. и др. Сессия АН СССР по мирному использованию атомной энергии. М., Изд-во АН СССР, 1955, с. 217.
5. Лейпунский А. И. и др. В кн.: Труды III Женевск. конф. Докл. сов. ученых. Т. 2. М., Атомиздат, 1959, с. 377.
6. Румянцев Г. Я. Расчет ядерного реактора на тепловых нейтронах. М., Атомиздат, 1967.
7. Rein J. In: Proc. IAEA Symp. «Analytical Methods in the Nuclear Fuel Cycle». Vienna, 29 Nov.—3 Dec. 1971, p. 449.
8. Fudge A. In: Proc. IAEA Symp. «Reactor Burn-up Physics». Vienna, 12—16 July 1973, p. 239.
9. Neutron Cross Sections BNL-335. 2nd ed., 1965, Suppl. 2, v. 11B.
10. Crouch E. In: Proc. IAEA Symp. «Nuclear Data in Science and Technology». Paris, 12—16 March 1973, v. 1, p. 393.