

УДК 621.039.56

Прибор для неразрушающего определения отношения О/М окисного ядерного топлива

ГОДИН Ю. Г., БАРАНОВ В. Г., КИРЕЕВ Г. А.

Среди методов определения О/М окисного топлива, подробный обзор которых дан в работе [1], наибольший практический интерес, помимо полярографии, представляет метод э. д. с. твердоэлектродной гальванической ячейки.

Существенными преимуществами этого метода являются отсутствие разрушения образца; возможность анализа таблеток, втулок, микросфер, дисперсионных композиций, порошков и т. д.; низкая погрешность определения О/М; высокая экспрессность, что позволяет значительно повысить представительность анализа партии образцов. При измерении О/М методом э. д. с. анализируемый образец служит одним из электродов твердоэлектродной ячейки. В качестве электрода сравнения используется материал с хорошо известными стабильными значениями химического потенциала кислорода в рабочем интервале температуры. Твердым электролитом в такой ячейке является легированная окисью иттрия окись тория, имеющая высокую ионную проводимость при 1000–1400 К. Ячейку нагревают в вакууме или инертном газе и измеряют ее э. д. с. (E). Затем, используя уравнение Нернста

$$E = \frac{1}{4F} (\mu'_{O_2} - \mu''_{O_2}),$$

где F — постоянная Фарадея; μ'_{O_2} и μ''_{O_2} — химические потенциалы кислорода образца и электрода сравнения, определяют значение μ'_{O_2} , зависящее от О/М. На практике заранее строят графики зависимости $E = f(O/M)$ для определенных рабочих температур ячейки и по измеренным значениям E находят искомое отношение О/М исследуемого образца.

Известны две конструкции прибора для определения О/М смешанного окисного топлива методом э. д. с. твердоэлектродной гальванической ячейки [2, 3], однако их производительность низкая, и они могут использоваться в основном для проведения немногочисленных лабораторных анализов.

В связи с этим был разработан высокопроизводительный прибор для массового анализа образцов окисного топлива в виде таблеток, порошков и дисперсионных композиций. Основные узлы прибора (см. рисунок): твердоэлектродный датчик кислорода (ТДК); нагреватель с водоохлаждаемым кожухом; система подачи образцов к ТДК; вакуумная камера. Твердоэлектродный датчик [4] содержит твердый электролит 5 из ThO_2 (85 мол. %) + Y_2O_3 (15 мол. %), электрод сравнения 3 из равномолярной смеси $Fe + FeO$ и окружающий электродлит керамический держатель в виде двух соосных колец 2 и 4.

Электрод сравнения изолирован от газовой среды, в которой находится анализируемый образец, керамическим слоем 1, не обладающим ионной проводимостью. Это позволяет избежать погрешности, вызываемой переносом кислорода через газовую среду. Керамические кольца 2 и 4, изготовленные из BeO , характеризующейся высоким электросопротивлением, крепятся на стойке 6, которая представляет собой молибденовую трубку с широкими продольными вырезами. Керамические кольца изолируют электролит от корпуса вакуумной камеры 12. ТДК помещен в кварцевую колбу 7, герметично соединенную с вакуумной камерой. Нагревателем служит нихромовая спираль 8, намотанная на кварцевую трубку 9, помещенную в металлический стакан 10 в теплоизоляционной засыпке 11 из Al_2O_3 . Снаружи стакан окружен водоохлаждаемым кожухом.

Внутри электрода сравнения ТДК введена Pt—PtRh-термопара 23, платиновая ветвь которой 21 служит для измерения э. д. с. ячейки.

Основными элементами системы подачи образцов к рабочей поверхности твердого электролита являются магазин 16 и вертикально перемещающийся стержень 18. Магазин представляет собой поворотный диск с гнездами для молибденовых оправок 15, в которых расположены образцы 22. Диск вращается при помощи «червяка» 14. Номер гнезда с анализируемым образцом контролируют через окуляр 19. Вращая магазин, анализируемый образец устанавливают над вертикально перемещающимся стержнем. Последний с помощью шестерни 17 поднимается вверх, в результате чего оправка с образцом попадает в конусное углубление в верхней части стержня и приходит в контакт с рабочей поверхностью твердого электролита, имеющего заданную температуру. При измерении э. д. с. ячейки потенциометрическим выводом служит подающий стержень. Температуру образца определяют при помощи термопары 20. Все перемещения в рабочей камере осуществляются с помощью двух сильфонных вакуумных вводов вращения.

Анализируемые образцы, помещенные в молибденовые оправки, через люк 13 устанавливают в гнезда мага-

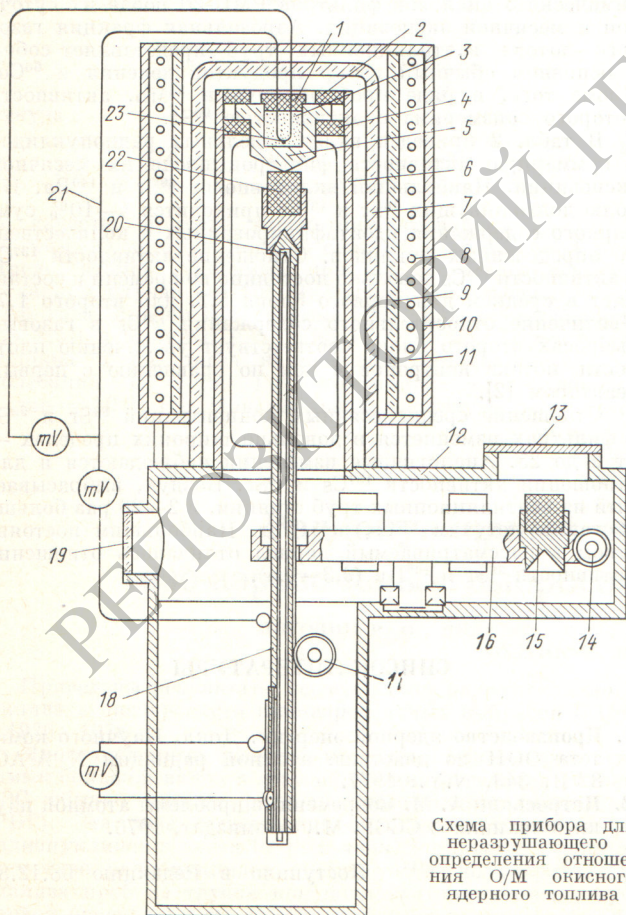


Схема прибора для неразрушающего определения отношения О/М окисного ядерного топлива

зна. Рабочая камера герметизируется и откачивается до давления 1 мПа, после чего ТДК нагревают со скоростью 20 К/мин до рабочей температуры 1273 К, которая поддерживается с точностью $\pm 0,5$ К стандартным регулятором температуры ВРТ-2. Затем анализируемый образец при помощи стержня подают вверх к ТДК. Э. д. с. образовавшейся таким образом твердоэлектролитной гальванической ячейки начинают измерять через 10 мин после уравнивания температур образца и ТДК. При анализе каждого образца проводится пять измерений э. д. с. с интервалом 20 с. Погрешность измерения не превышает $\pm 0,0005$ ед. О/М при доверительной надежности $\alpha = 0,95$.

По полученным значениям э. д. с., используя известную зависимость $E = f(O/M)$ [5] для заданной температуры 1273 К, определяют отношение О/М.

При измерении О/М для всех 48 образцов, загружаемых в магазин, требуется около 6 ч с учетом вспомогательных операций загрузки образцов, откачки, нагрева и охлаждения, что почти в 10 раз превышает производительность других установок [2, 3]. Кроме того, ввиду кратковременности пребывания образца в газовой среде

рабочей камеры значительно уменьшается вероятность изменения первоначального состава образца в процессе определения О/М.

Работоспособность ТДК периодически контролируется путем измерения эталона в виде таблетки из равномолярной смеси Ni—NiO, постоянно находящейся в магазине установки.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Florence T. Analytical Methods in the Nuclear Fuel Cycle. Vienna. IAEA, 1972, p. 45.
2. Mari C. e.a. — J. Electrochem. Soc., 1977, N 12, p. 124.
3. Vollath D. Nuclear Fuels Quality Assurance. Vienna, IAEA, 1976, p. 165.
4. Баранов В. Г., Годин Ю. Г. Твердоэлектролитный датчик кислорода. Авт. свид. № 771534. Бюлл. изобрет., 1980, № 38.
5. Markin T., Bones R. Rep. AERE-R4178, 1962.

Поступило в Редакцию 22.12.80

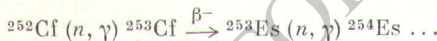
УДК 621.039.8

Возможные способы получения ^{254}Es в количестве десятков микрограммов

ДАВИДЕНКО В. А., ЗАМЯТНИН Ю. С., КЛИНОВ А. В., ТОПОРОВ Ю. Г.

Для проведения некоторых научно-исследовательских работ (изучение химических свойств эйнштейния, определение его ядерно-физических констант, использование эйнштейния в качестве исходного материала для получения изотопов трансфермиевых элементов и др.) желательно иметь микрограммы или десятки микрограммов долгоживущего ^{254}Es ($T_{1/2} = 276$ сут).

Наиболее реальным способом получения такого количества эйнштейния является его накопление в высокопоточных ядерных реакторах (например, реакторе СМ-2) одновременно с накоплением ^{252}Cf или при облучении специальных мишеней, содержащих ^{252}Cf . В этом случае ^{254}Es накапливается в результате захвата нейтронов по следующей цепочке:



Как известно, процессами, конкурирующими с нейтронным захватом, являются деление ядер и радиоактивный распад изотопов цепочки. Анализ опубликованных данных о нейтронных сечениях изотопов калифорния и эйнштейния [1] показывает, что потери за счет конкурирующих процессов возникают главным образом из-за деления ^{253}Cf и ^{254}Es тепловыми нейтронами (сечения деления $1,3 \cdot 10^{-29}$ и $2,9 \cdot 10^{-25}$ м² соответственно). Это (наряду с другими факторами) приводит к тому, что равновесное содержание ^{254}Es в облученном в тепловых реакторах ^{252}Cf составляет всего 0,01% [2].

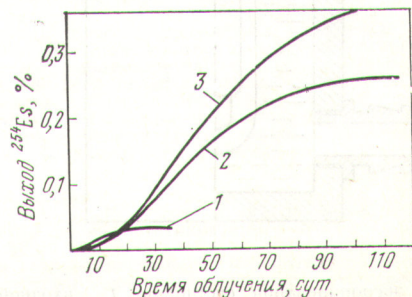
Однако использование для накопления эйнштейния более жесткого спектра нейтронов может значительно улучшить баланс ядер ^{254}Es вследствие уменьшения скорости их выгорания при почти неизменной скорости образования. Так, расчеты, проведенные для спектра нейтронов ловушки высокопоточного реактора СМ-2, характеризующегося относительно высокой жесткостью, показывают, что равновесное содержание ^{254}Es возрастает до 0,03%. Но и при этом около 66% ядер ^{253}Cf и 92% ядер ^{254}Es испытывают деление на тепловых нейтронах.

В связи с этим была проанализирована возможность получения ^{254}Es в еще более жестких нейтронных спектрах: в спектре нейтронов активной зоны реактора СМ-2 и в том же спектре или спектре ловушки, но без тепловых

нейтронов (например, при экранировке мишени кадмием). С этой целью были проведены расчеты накопления ^{254}Es из калифорния с обычным для реактора СМ-2 изотопным составом (75—80% ^{252}Cf , 3—5% ^{251}Cf , 8—11% ^{250}Cf , 8—10% ^{249}Cf).

Как и следовало ожидать, ужесточение спектра оказалось эффективным, и равновесное содержание ^{254}Es повысилось в первом случае до 0,25%, а во втором почти до 0,4% (см. рисунок). Таким образом, при более благоприятных условиях облучения калифорния можно накопить около 4 мкг ^{254}Es из 1 мг ^{252}Cf . Следует отметить, что скорость накопления ^{254}Es в активной зоне реактора СМ-2 не на много ниже, чем в центральном канале, так как плотность потока эпитепловых нейтронов в обоих случаях практически одинакова ($1 \cdot 10^{14}$ и $1,2 \cdot 10^{14}$ см⁻²·с⁻¹).

К достоинствам предлагаемого метода относится также и то, что использование в качестве исходного продукта калифорния с указанным выше изотопным составом благодаря содержанию в нем 20—25% легких изотопов ($A < 252$), не приводит к заметному расходу наиболее ценного ^{252}Cf . Это происходит потому, что одновременно с выгоранием ^{252}Cf идет и процесс его накопления из более легких изотопов, т. е. наблюдается улучшение



Накопление ^{254}Es : 1 — ловушка СМ-2; 2 — ТВС СМ-2; 3 — ловушка СМ-2, мишень с экраном из кадмия