

УДК 621.039.519:621.039.524.4:621.039.524.44

## К определению доли разделившихся ядер плутония при выгорании низкообогащенного горючего

БЫКОВ К. И., МИЛЛЕР О. А.

Широкое применение водо-водяных реакторов с низкообогащенным горючим обуславливает интерес к неразрушающему выявлению выгорания  $^{239}\text{Pu}$  в облученных твэлах. Для этого могут применяться методы  $\gamma$ -спектроскопии продуктов деления. Чтобы концентрация продукта деления зависела от соотношения выгораний  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{235}\text{U}$ , необходим существенно различный выход этого продукта при делении плутония и урана. В работах [1—5] для определения отношения разделившихся ядер  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{235}\text{U}$  предлагается использовать соотношение концентраций  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$ , так как выход  $^{106}\text{Ru}$  при делении  $^{239}\text{Pu}$  больше на порядок, чем при делении  $^{235}\text{U}$  (4,4 и 0,4% соответственно). Для отношения разделившихся ядер плутония и урана нетрудно получить следующую формулу:

$$\frac{\Delta N_{239}}{\Delta N_{235}} = \frac{y_{106}^{235} - y_{137}^{235} \cdot \frac{(N_{106})_0}{(N_{137})_0}}{y_{137}^{239} \frac{(N_{106})_0}{(N_{137})_0} - y_{106}^{239}}, \quad (1)$$

где  $y_{106}^{235}$ ,  $y_{137}^{235}$ ,  $y_{106}^{239}$  и  $y_{137}^{239}$  — выходы  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$  при делении  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ ;  $(N_{106})_0$  и  $(N_{137})_0$  — количества возникших при делении ядер соответствующих продуктов деления.

При измерениях непосредственно определяются не величины  $(N_{106})_0$  и  $(N_{137})_0$ , а количества накопившихся ядер  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$  к концу облучения ( $N_{106}$  и  $N_{137}$ ) с учетом их выгорания и распада. Чтобы из величины  $N$  получить величину  $N_0$ , необходимо оценить выгорание и распад продуктов деления в процессе облучения горючего. Можно записать, что

$$N_0 = NK, \quad (2)$$

где  $K$  — соответствующая поправка на выгорание и распад. Так как  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$  образуются только при непосредственном делении ядер горючего, для изменения концентрации каждого изотопа справедливо следующее выражение:

$$\frac{dN(t)}{dt} = Q(t) - (\lambda + \sigma_a^N \varphi) N(t); \quad (3)$$

$$\frac{dN_0(t)}{dt} = Q(t); \quad (4)$$

$$Q(t) = [y^{235} N^{235}(t) \sigma_f^{235} + y^{239} N^{239}(t) \sigma_f^{239}] \varphi, \quad (5)$$

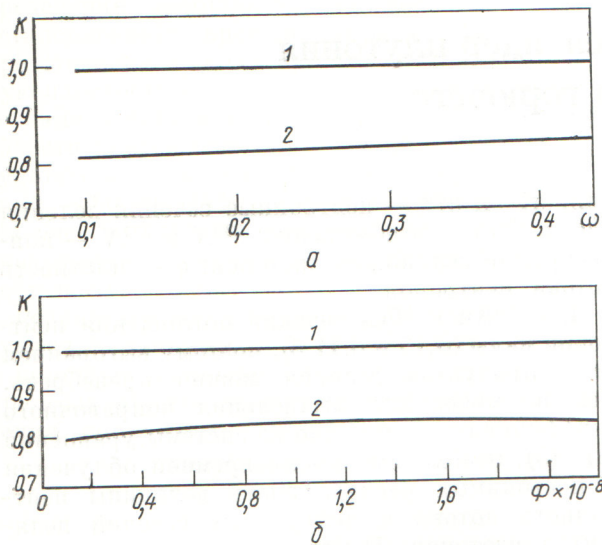
где  $\lambda$  — постоянная распада изотопов;  $\sigma_a^N$  — сечение поглощения нейтронов продуктами деле-

ния;  $\sigma_f^{235}$  и  $\sigma_f^{239}$  — нейтронные сечения деления  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$  соответственно;  $^{235}\text{N}$  и  $^{239}\text{N}$  — концентрации делящихся изотопов;  $\varphi$  — плотность потока нейтронов.

Для  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$  сечения поглощения нейтронов малы (0,15 и 0,11 б), поэтому выгоранием этих продуктов деления можно пренебречь. Тем не менее для вычисления поправочного коэффициента, как видно из системы уравнений (2)—(5), необходимо кроме времени облучения и постоянных распада знать величины нейтронного потока и нейтронных сечений делящихся изотопов. Нейтронные сечения определяются спектром нейтронов в реакторе. В работе [6] показано, что изменение спектра нейтронов даже в пределах одной топливной кассеты по ее высоте и от твэла к твэлу существенно влияет на величину накопления продуктов деления при одинаковом выгорании горючего. В целом же по активной зоне это влияние должно быть еще большим, особенно около границ активной зоны, поглотителей системы управления и защиты (СУЗ) и для кассет, существенно различающихся по обогащению или выгоранию урана.

Очевидно, что  $N$  и  $N_0$  для одного и того же продукта деления примерно одинаково зависят от спектральных параметров, поэтому значение поправочного коэффициента  $K$  оказывается практически независимым от них. На рис. 1, а показано изменение  $K$  при увеличении коэффициента резонансного поглощения в  $^{238}\text{U}$  ( $\omega$ ) от 0,1 до 0,4 для  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Величина  $\omega$  характеризует число захваченных нейтронов в надтепловой области энергий  $^{238}\text{U}$  в рассматриваемом объеме горючего, которое приходится на один родившийся в этом же объеме быстрый нейтрон деления. Из рис. 1, а можно установить, что  $K$  для  $^{106}\text{Ru}$  изменяется не более чем на 2%, а для  $^{137}\text{Cs}$  практически не зависит от  $\omega$ . Как следует из детального анализа расчетных данных, включая влияние температуры нейтронов  $T_n$  и отношения потоков надтепловых и тепловых нейтронов  $\alpha$ , для  $^{106}\text{Ru}$  изменение поправочного коэффициента  $K$  не превышает 10% при любых возможных изменениях спектральных параметров  $\omega$ ,  $\alpha$  и  $T_n$  для времени облучения от одного до трех лет.





Р и с. 1. Зависимость изменения коэффициента  $K$  для  $^{137}\text{Cs}$  (1) и  $^{106}\text{Ru}$  (2) от параметра  $\omega$  и величины  $\Phi$ :  
 а —  $\alpha = 0,226$ ,  $T_n = 550^\circ\text{C}$ ,  $t = 275$  сут; б —  $\omega = 0,250$  и те же значения  $\alpha$ ,  $T_n$  и  $t$

На рис. 1, б показана зависимость  $K$  от величины  $\Phi = \sigma_a^{235} \Phi_T$  ( $\sigma_a^{235}$  — сечение поглощения нейтронов  $^{235}\text{U}$ ), откуда следует, что величина  $K$  для  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в данном случае практически не зависит от  $\Phi$ . Таким образом, поправочный коэффициент для этих продуктов деления определяется в основном временем облучения и периодом полураспада.

Из системы уравнений (2)–(5), пренебрегая выгоранием продукта деления, можно получить

$$K = g(t) \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}}, \quad (6)$$

где

$$g(t) = \frac{e^{\lambda t} - 1}{\lambda t} \frac{\int Q(t) dt}{\int Q(t) e^{\lambda t} dt}. \quad (7)$$

Исследование выражения для  $g(t)$  показывает, что оно равно единице, когда  $Q(t) = \text{const}$ . Такой случай наблюдается, если изотоп имеет приблизительно одинаковый выход при делении  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$  и реактор работает на постоянной мощности. В реальных случаях функция  $Q(t)$  не является постоянной во времени. Для  $^{106}\text{Ru}$  зависимость  $Q(t)$  в реакторе типа ВВЭР выражена довольно сильно при малом времени облучения. С увеличением же времени облучения она приближается к постоянной величине.

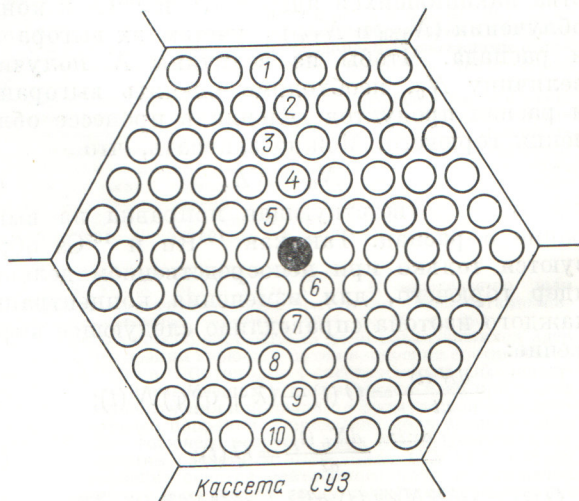
С другой стороны, если время облучения мало по сравнению с периодом полураспада,

то  $\lambda t$  — малая величина и  $g(t) \approx 1$ . Ввиду этого,  $g(t)$  даже для  $^{106}\text{Ru}$  с резко выраженной зависимостью  $Q(t)$  при малых  $t$  не очень отличается от единицы со временем облучения до трех лет в нейтронных потоках до  $10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ . Таким образом, для  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$  можно использовать простую формулу:

$$K = \frac{\lambda t}{1 - e^{-\lambda t}}. \quad (8)$$

Детальные расчеты величины  $f = K_{106}/K_{137}$  по точным выражениям (2)–(5) и приближенной формуле (8) показывают, что расхождение между ними не превышает 15% при времени облучения от одного до трех лет для любых выгораний и спектральных параметров нейтронов реакторов типа ВВЭР. Для многих практических случаев погрешность 15% допустима, что позволяет не прибегать к точному вычислению величины  $f$ , для чего необходимо знать хотя бы ориентировочно значение величин  $\omega$ ,  $\alpha$ ,  $T_n$  и  $\Phi$  конкретно для каждого измеряемого образца. Полученная приближенная формула позволяет определить  $f$ , если известно только время облучения горючего.

Авторами измерялись доли разделившихся ядер  $^{239}\text{Pu}$  для топливной кассеты типа ВВЭР-210 первого блока Нововоронежской АЭС со средним расчетным выгоранием 14,8 кг/т, начальным обогащением урана 2% и временем выдержки 450 сут. Были измерены 10 твэлов, схема расположения которых в кассете показана на рис. 2. К одной грани примыкала ком-



Р и с. 2. Схема расположения исследуемых твэлов в кассете:  
 ● — центральная трубка; 1–10 — исследуемые твэлы



диссипирующая кассета (СУЗ). Все сведения о характеристиках твэлов и кассеты приведены в работе [7]. Отношение концентраций  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$  измерялось гамма-спектрометром с  $\text{Ge}(\text{Li})$ -детектором в «горячей» камере НВАЭС. Каждый твэл измерялся в 11 точках по высоте. Методика таких измерений, схема измерений и соответствующая электронная аппаратура описаны в работе [4].

По измеренным отношениям концентраций  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{235}\text{U}$  из формулы (1) определялось соотношение разделившихся ядер  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{235}\text{U}$ . Поправочный коэффициент определялся с помощью точных выражений (2)–(5); нейтронный поток и спектральные параметры рассчитывались по программе POP [7]. Погрешность определения  $f$  составляла  $\pm 2\%$ . В целом погрешность доли разделившихся ядер  $^{239}\text{Pu}$  составляла  $\pm(12-13)\%$  и определялась в основном погрешностями ядерных данных.

Среднее значение величины  $\Delta N_{239}/\Delta N_{235}$ , определенное из результатов измерений 110 точек, оказалось равным  $0,396 \pm 0,051$ . Отношение разделившихся ядер  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{235}\text{U}$  зависит как от выгорания горючего, увеличиваясь с ростом выследного, так и от спектральных параметров нейтронов, увеличиваясь с ужестчением спектра (т. е. с ростом  $\alpha$ ,  $\omega$  и  $T_n$ ). На рис. 3, а показано изменение величины  $\Delta N_{239}/\Delta N_{235}$  и выгорания горючего по диаметру кассеты. Распределение выгораний определялось по изменению концентраций  $^{137}\text{Cs}$ . Общий наклон в распределении выгорания от твэла 1 к твэлу 10 объясняется понижением потока нейтронов вблизи поглотителя СУЗ, а увеличение выгорания в крайних твэлах потока тепловых нейтронов — ростом  $\varphi_T$  из-за влияния водяных зазоров между кассетами.

Интересно, что несмотря на уменьшение выгорания от твэла 1 к твэлу 5 и от твэла 10 к твэлу 8 вклад  $^{239}\text{Pu}$  в этих направлениях увеличивается. Это объясняется, видимо, ужестчением нейтронного спектра в центре кассеты. Например, в работе [5] показано такое изменение отношения потоков надтепловых и тепловых нейтронов  $\alpha$  по диаметру кассеты в результате влияния водяных зазоров и окружающих кассет. Так как число твэлов, непосредственно образующих грани кассеты, составляет третью часть общего количества твэлов, влияние водяных зазоров между кассетами на среднюю величину  $\Delta N_{239}/\Delta N_{235}$  должно быть весьма существенным.

На рис. 3, б представлено изменение величины  $\Delta N_{239}/\Delta N_{235}$  и выгорания горючего по высоте

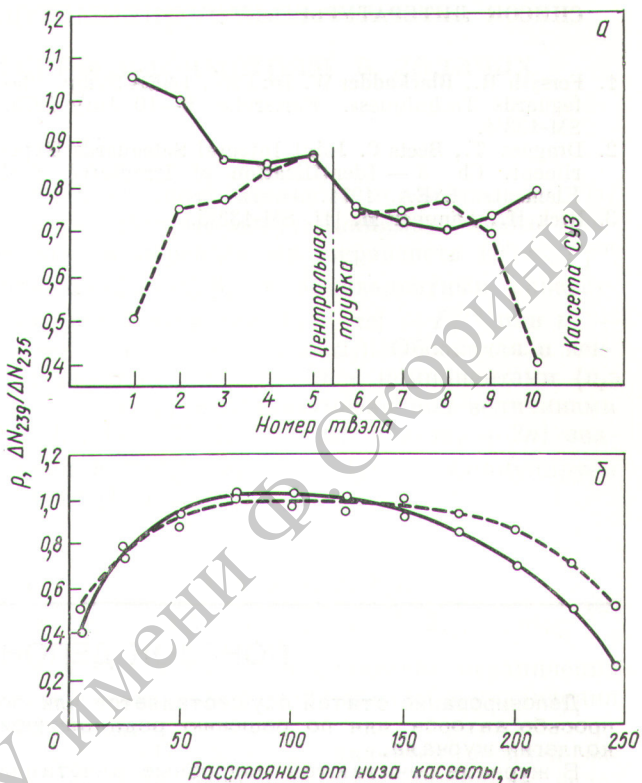


Рис. 3. Изменение величины  $\Delta N_{239}/\Delta N_{235}$  (---) и выгорания горючего (—) по диаметру (а) и высоте (б) кассеты  $\rho$ :

а — единица соответствует выгоранию 16,2 кг/т;  $\Delta N_{239}/\Delta N_{235} = 0,517$ ; б — 18,2 кг/т и 0,411 соответственно

те кассеты. Видно, что в верхней части кассеты доля разделившихся ядер  $^{239}\text{Pu}$  уменьшается медленнее, чем выгорание горючего. Можно предположить, что это связано с влиянием поглотителей СУЗ, которые во время работы реактора постепенно выводятся из активной зоны в связи с выгоранием горючего и накоплением шлаков. Влияние же поглотителей проявляется, в частности, в ужестчении спектра; следовательно, в верхних частях кассеты в среднем за период облучения нейтронный спектр будет жестче, что приводит к некоторому увеличению доли разделившихся ядер  $^{239}\text{Pu}$ .

Экспериментальные результаты подтверждают расчетные данные о влиянии спектра нейтронов в кассетах на выгорание (а следовательно, и на накопление)  $^{239}\text{Pu}$ .

Поступила в Редакцию 24/X 1974 г.



## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Forsyth R., Blackadder W. In: Proc. IAEA Symp. «Safeguards Techniques». Karlsruhe, 6—10 July 1970, SM-133/4.
2. Dragnev T., Beets C. Joint Integral Safeguards Experiment. Ch. 3 — Identification of Irradiated Fuel Elements. IAEA, 1974.
3. Hick H., Lammer M. [1], SM-133/5.
4. Миллер О. А. и др. «Атомная энергия», 1969, т. 27, вып. 4, с. 281.
5. Eder O., Lammer M. In: Proc. IAEA Symp. «Nuclear Data in Science and Technology». Paris, 12—16 March 1973, SM-170/12.
6. Зыков К. И., Миллер О. А. «Атомная энергия», 1975, т. 39, вып. 3, с. 208.
7. Овчинников Ф. Я. и др. Эксплуатация реакторных установок Нововоронежской АЭС. М., Атомиздат, 1972.

## ПОРЯДОК ДЕПОНИРОВАНИЯ СТАТЕЙ

Депонирование статей осуществляется или по просьбе авторов, или по решению редакционной коллегии журнала.

В журнале печатаются подробные аннотации статей, а полные тексты хранятся в редакции в течение пяти лет и высылаются читателям по их требованию наложенным платежом. Объем аннотации не должен превышать 2 стр. машинописного текста, а объем депонируемого текста — 12 стр. В отдельных случаях в аннотацию можно включить рисунок, таблицу, основные формулы и т. п. (уменьшив соответственно объем текстового материала аннотации).

Депонированные статьи являются научными публикациями и учитываются при защите диссертаций.

Статьи, представленные для депонирования, должны быть окончательно обработаны авторами и пригодны для фотографического воспроизведения (первый экземпляр), в связи с чем необходимо соблюдать следующие правила их подготовки:

**1.** Текст следует печатать на машинке с жирной черной лентой через два интервала на одной стороне белой односортовой бумаги форматом  $21 \times 30$  см с полями слева и внизу не менее 3 см и справа 1 см. При перепечатке текста на первой странице оригинала необходимо отступить на 10 см сверху (место для клише «Атомная энергия»). Никакие поправки чернилами или карандашом над словами не допускаются. Исправления выполняются путем вклеивания.

**2.** Необходимо вписывать формулы тушью или черными чернилами; разметку формул в тексте (подчеркивание красным или синим карандашом и т. д.) делать не следует.

**3.** Рисунки необходимо выполнять на ватманской бумаге или на кальке, наклеивать их на стандартные форматные страницы и помещать в конце статьи, после таблиц и списка литературы. Каждый рисунок следует снабжать подписочной подписью. Рисунки должны быть достаточно отчетливыми для фотографического воспроизведения. Включение в рукопись тонких рисунков не допускается в связи с трудностью их копирования. В необходимых случаях тонкий рисунок выполняется штриховым методом.

**4.** Допускается в виде исключения печатать отдельные (большие) таблицы на неформатных листах (вклейках).

**5.** Все страницы рукописи (включая приложения) должны быть пронумерованы (первой страницей считается титульный лист, на нем цифра «1» не ставится, на следующей странице проставляется цифра «2» и т. д.). Порядковый номер печатается в середине верхнего поля страницы.

**6.** Первый экземпляр рукописи должен быть подписан автором в конце статьи.

В случае несоблюдения указанных правил оформления статей рукописи возвращаются авторам.

Цена одного экземпляра депонируемого текста 40 коп. При оформлении заказа на тексты депонированных статей необходимо указывать регистрационный номер статьи, который помещен в конце аннотации.

**Заказы направлять в редакцию журнала по адресу: 101876, Москва, Центр, ул. Кирова, 18. Телефон для справок 223-51-89.**