

ности исходного карбида урана и материала-имитатора были пересчитаны в предположении, что пористость составляет 8%. В целях уменьшения возможных погрешностей, связанных с пересчетом, принималось, что теплопроводность материалов линейно зависит от пористости. Согласно полученным результатам введение продуктов деления привело к снижению теплопроводности УС на 9,4% или на 1,2% на каждый процент выгорания тяжелых атомов. Статистическая проверка, проводимая как сравнение двух выборочных средних при неизвестных характеристиках рассеяния генеральных совокупностей, подтвердила значимость полученных результатов с высокой степенью достоверности.

Температуропроводность УС при введении продуктов деления уменьшилась на 7% (см. рисунок, б) Полученные значения теплоемкости исходных образцов УС (см. рисунок, в) хорошо согласуются с данными работы [3], но отличаются от полученных в работе [4]. Как видно из рисунка в, теплоемкость УС линейно зависит от температуры, что

характерно для большинства тугоплавких соединений, в том числе и карбидов. При введении продуктов деления в УС теплоемкость увеличилась на 8%, что соответствует 1% на каждый процент выгорания тяжелых атомов. Это связано, по-видимому, с тем, что теплоемкость большинства новых фаз в материале-имитаторе превышает теплоемкость карбида урана.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Баланкин С. А., Скоров Д. М., Ярцев В. А. — Атомная энергия, 1976, т. 41, вып. 4, с. 271.
2. Баланкин С. А., Скоров Д. М., Ярцев В. А. — Атомная энергия, 1979, т. 46, вып. 4, с. 261.
3. Technical reports ser. N 14. A report from a panel held in Vienna, 8—12 Oct. 1962, Vienna, IAEA, 1963.
4. Affortie C. — J. Nucl. Mater., 1970, v. 34, p. 105.

Поступило в Редакцию 08.08.80

УДК 621.09.54:539.128.4.144:539.166.3

Полный анализ выгоревшего топлива АЭС с ВВЭР-440

ЗЕЛЕНКОВ А. Г., ПИРОЖКОВ С. В., ПЧЕЛИН В. А., РОДИОНОВ Ю. Ф., ТАРАСЕВИЧ В. П., СИНЮТИНА З. М., ЧИСТЯКОВ Л. В., ШАТИНСКИЙ В. М., ШВЕЦОВ И. К., ШУБКО В. М., БАРАНОВ С. А.

В целях проверки корректности реакторных программ, а также для прогноза наработки изотопов трансурановых элементов нами были предприняты измерения состава топлива образца твэла из кассеты четвертого блока Нововоронежской АЭС (НВАЭС) с расчетным выгоранием 33,2 кг/т. С помощью разработанных авторами радиохимических, масс-спектрометрических и радиометрических методов определено содержание 20 тяжелых нуклидов от ²³²U до ²⁴⁶Cm. В качестве средств инструментального анализа использовали масс-спектрометр МИ1201, газоразрядный пропорциональный проточный счетчик для определения интенсивности α и β -излучений [1], полупроводниковые гамма- и альфа-спектрометры [2], прецизионный магнитный альфа-спектрометр [3] с позиционно-чувствительным полупроводниковым детектором (ПЧД) [4] или фотопластинками с ядерной эмульсией.

Для анализа был использован образец твэла из средней части кассеты с массой ~8 г. Проверку представительности образца и грубую оценку глубины выгорания проводили по спектрам α -излучения источников из исходного раствора, измеренным с помощью ППД [5]. Более точно выгорание образца топлива определяли с помощью масс-спектрометрии по содержанию ¹⁴⁸Nd и гамма-спектрометрии по содержанию ¹³⁷Cs. Оно оказалось равным $33,4 \pm 1,2$ кг/т. Относительное содержание ²³⁵U, ²³⁶U и ²³⁸U измеряли с помощью масс-спектрометра, а содержание ²³²U, ²³⁴U и ²³⁸U — с помощью полупроводникового альфа-спектрометра.

Радиохимическое выделение и очистку нептуния осуществляли хроматографическими методами. Нептуний в четырехвалентном состоянии сорбировался из исходного азотнокислого раствора на анионите. Высокую очистку нептуния от плутония достигали двумя последовательными сорбциями его на колоннах с анионитом из концентрированной соляной кислоты 0,5 н. по иодистоводородной кислоте. Химический выход превышал 0,98. Количество ²³⁷Np определяли по интенсивности α -излучения, измеренной с помощью пропорционального 2 π -счетчика. Радиохимическую чистоту препарата контролировали полупроводниковым альфа-спектрометром.

Содержание изотопов плутония определяли следующим образом. С помощью пропорционального счетчика измеряли удельную интенсивность α -излучения раствора, а полупроводниковым альфа-спектрометром определяли

относительные интенсивности суммарных излучений ²³⁹Pu и ²⁴⁰Pu ($E = 5,16$ МэВ), ²³⁸Pu и ²⁴¹Am ($E_{\alpha} = 5,5$ МэВ). Затем проводили радиохимическое выделение плутония. Измерения α -спектра плутониевой фракции с помощью того же ППД в сочетании с данными об исходном растворе позволяли определить содержание ²³⁸Pu и ²⁴¹Am, а также ²³⁶Pu и относительную интенсивность суммарного α -излучения ²⁴¹Pu и ²⁴²Pu. Содержание ²⁴¹Pu находили по накоплению ²⁴¹Am в плутониевой мишени в зависимости от времени. Относительное содержание ²³⁹Pu и ²⁴⁰Pu измеряли с помощью магнитного альфа-спектрометра, снабженного ПЧД.

Для определения содержания ²⁴³Am и ^{242m}Am проводили радиохимическое выделение америция. Относительное содержание ²⁴³Am определяли непосредственно по альфа-спектру америциевой мишени, а содержание ^{242m}Am по временному накоплению в ней ²⁴²Cm.

Содержание ²⁴²Cm ($E_{\alpha} = 6,1$ МэВ) и ²⁴⁴Cm ($E_{\alpha} = 5,8$ МэВ) находили непосредственно из α -спектра мишени исходного раствора и его удельной α -активности. Относительное содержание ²⁴³Cm определяли на ППД по интенсивности γ -излучения энергией 210, 229 и 278 кэВ. Относительное количество ²⁴⁴Cm, ²⁴⁵Cm и ²⁴⁶Cm измеряли

Состав выгоревшего топлива ВВЭР-440 с начальным обогащением 3,6% и глубиной выгорания 33,4 кг/т

Нуклид	Содержание на дату выгрузки из реактора, кг/т	Нуклид	Содержание на дату выгрузки из реактора, кг/т
²³² U	$(0,9 \pm 0,2) \cdot 10^{-6}$	²⁴² Pu	$0,43 \pm 0,04$
²³⁴ U	$0,215 \pm 0,006$	²⁴¹ Am	$(4,1 \pm 1,5) \cdot 10^{-2}$
²³⁵ U	$11,2 \pm 0,3$	^{242m} Am	$(6,4 \pm 0,6) \cdot 10^{-4}$
²³⁶ U	$4,5 \pm 0,2$	²⁴³ Am	$(4,9 \pm 0,5) \cdot 10^{-2}$
²³⁸ U	941 ± 2	²⁴² Cm	$(1,36 \pm 0,03) \cdot 10^{-2}$
²³⁷ U	$0,445 \pm 0,013$	²⁴³ Cm	$(3,8 \pm 0,3) \cdot 10^{-4}$
²³⁶ Pu	$(1,6 \pm 0,2) \cdot 10^{-6}$	²⁴⁴ Cm	$(1,97 \pm 0,04) \cdot 10^{-2}$
²³⁸ Pu	$0,137 \pm 0,006$	²⁴⁵ Cm	$(1,03 \pm 0,07) \cdot 10^{-3}$
²³⁹ Pu	$5,37 \pm 0,17$	²⁴⁶ Cm	$(6,9 \pm 0,6) \cdot 10^{-5}$
²⁴⁰ Pu	$2,17 \pm 0,07$	Продукты деления	$33,4 \pm 1,2$
²⁴¹ Pu	$1,06 \pm 0,06$		

в радиохимически выделенном и глубоко очищенном образце кюрия с помощью магнитного альфа-спектрометра. При определении количества перечисленных нуклидов и глубины выгорания топлива использовали данные из работ [6—9].

В таблице приведено содержание тяжелых нуклидов и суммарное количество продуктов деления на дату извлечения выгоревшего топлива из реактора. В расчетах учитывали распад ^{236}Pu в ^{232}U , ^{241}Pu в ^{241}Am и ^{242}Cm в ^{238}Pu в зависимости от времени.

В заключение выражаем благодарность В. М. Семочкину, В. А. Денисову за помощь в проведении радиохимических анализов, В. С. Ширяеву, Н. И. Алешину и Л. Н. Морозову за выполнение измерений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Баранов С. А., Полевой Р. М. — Приборы и техника эксперимента, 1957, № 3, с. 32.

2. Максимов Ю. С., Родионов Ю. Ф., Явлинский Ю. Н. — Там же, 1966, № 2, с. 55.
3. Баранов С. А. и др. — Атомная энергия, 1959, т. 7, с. 262.
4. Родионов Ю. Ф., Шатинский В. М., Никитин Б. А. — Там же, 1974, т. 37, вып. 5, с. 504.
5. Зеленков А. Г. и др. — Атомная энергия, 1980, т. 49, вып. 2, с. 86.
6. Lederer C., Shirley V. Table of Isotopes. N.Y., J. Wiley and Sons, Inc., 1978.
7. Rep. INDC (NDS)—108/N. IAEA, 1979.
8. Guinghame T. IAEA-243. V. 1, Vienna, 1978, p. 351.
9. Ahmad I., Wahlgren M. — Nucl. Instrum. Methods, 1972, v. 9, p. 333.

Поступило в Редакцию 09.02.81

УДК 621.039.58

Накопление радиоактивных продуктов коррозии в технологическом оборудовании контуров охлаждения ядерных энергетических установок

ДОЛГОВ В. М., КАТАНАЕВ А. О.

Детальную картину распределения радионуклидов в оборудовании можно получить путем измерения уровня дозы γ -излучения от поверхностей и последующего расчета плотности отложений активных продуктов на оборудовании [1]. Однако точность такой методики недостаточна ввиду того, что при расчете функций ослабления сложное по конструкции технологическое оборудование необходимо рассматривать как источник определенной геометрической формы. Кроме того, существуют некоторые трудности определения γ -постоянной многокомпонентного источника.

Цель настоящей статьи — разработка и экспериментальная проверка методики определения накопления радионуклидов на поверхностях оборудования контуров охлаждения ядерных энергетических установок (ЯЭУ) по значениям концентрации i -го радионуклида в теплоносителе на входе и выходе технологического оборудования.

Пробы взвешенных в теплоносителе продуктов коррозии отбирали в разработанные авторами устройства, установленные на байпасе главного контура внутриреакторной петли с N_2O_4 . После экспонирования в течение $t_j \approx 20$ сут устройство заменяли новым. Пробы осажденных продуктов коррозии анализировали с помощью гамма-спектрометра, в состав которого входили Ge(Li)-детектор и амплитудный анализатор LP-4840. Основными γ -излучателями в исследуемых пробах являлись ^{51}Cr , ^{58}Co , ^{54}Mn , ^{59}Fe и ^{60}Co . В дальнейшем под i -м радионуклидом подразумевается один из перечисленных выше изотопов.

При условии постоянной концентрации C_{vi} i -го радионуклида в теплоносителе, атом/кг, число его атомов в пробоотборнике равно

$$N_{\text{пр}j} = C_{vi} \omega k_1 k_2 t_j, \quad (1)$$

где ω — массовый расход теплоносителя через пробоотборник, кг/с; k_1 — коэффициент, характеризующий распределение i -го радионуклида между основным и байпасным потоком теплоносителя; k_2 — эффективность улавливания взвешенных продуктов коррозии. По результатам специальных экспериментов произведение коэффициентов $k_1 k_2$ принято равным единице.

Число атомов i -го радионуклида ΔN_{sij} , отложившихся на поверхностях аппарата за время t_j , определяется выражением

$$\Delta N_{sij} = \frac{(N_{\text{вх}j} - N_{\text{вых}j})G}{\omega}, \quad (2)$$

где $N_{\text{вх}j}$, $N_{\text{вых}j}$ — число атомов i -го радионуклида, накопившихся в пробоотборниках за время t_j ; G — массовый расход теплоносителя через аппарат, кг/с (распадом i -го радионуклида за время отбора пробы пренебрегаем). Количество i -го радионуклида на поверхностях аппарата в процессе эксплуатации установки составляет

$$N_{sijn} = \Delta N_{sij} + N_{sijn-1} e^{-\lambda t_j}, \quad (3)$$

где первый член, определяемый по уравнению (2), учитывает увеличение количества i -го радионуклида в аппарате за время t_j , а второй член правой части уравнения (3) учитывает уменьшение количества ранее отложившихся радиоактивных ядер.

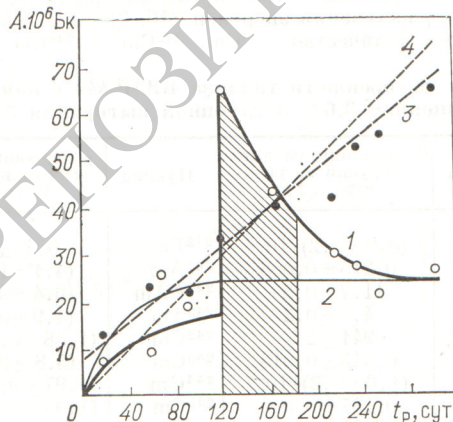


Рис. 1. Накопление радионуклидов в петле: 1, 2 — экспериментальная и теоретическая кривые для ^{51}Cr (○); 3, 4 — экспериментальная и теоретическая кривые для ^{60}Co (●); заштрихованный участок — переходный режим работы установки