Uzbek Journal of Physics
Vol.21(№1) 2019 PP.44-49

ОПРЕДЕЛЕНИЕ АКТИВНОСТИ ИЗОТОПОВ В ПРОДУКТАХ ДЕЛЕНИЯ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

С.А. Байтелесов, С.Н. Кудиратов, Ф.Р. Кунгуров

Институт ядерной физики АН РУз, Улугбек, Ташкент, Узбекистан
(Получена 28.05.2018)

ИРТ-4М туридаги ядро ёқилгиси ВВР-СМ илмий тадқиқот реактори фаол зонасидан хар ҳил ёниш қийматларида олинди. Ядро ёқилгисидаги бўлиниш махсулотларидан ажраладиган изотопларнинг активлиги ўлчанди ва максимал белгиланган қийматлари билан солиштирилди. Ўлчовлар натижасида ядро ёқилгиси бўлиниш махсулотларидаги барча нуклидларнинг активлиги максимал белгиланган қийматидан паст эканлиги аниқланди. Ядро ёқилгиси бўлиниш махсулотларидаги барча нуклидларнинг активлиги ёниш қиймати ортиши билан ортиб бориши аниқланди. Хулоса қилиндики ИРТ-4М турдаги ядро ёқилгиси ёниш қиймати 50% дан зиёд бўлганда ҳам реакторнинг фаол зонасида ишлатиш мумкин ва бу реактор ишлашига ва радиацион хавфсизлигига салбий таъсир қилмаслиги аниқланди.

Ядерное топливо типа ИРТ-4М из активной зоны исследовательского реактора ВВР-СМ выгружалось каждый раз при различных выгораниях. Активности изотопов в продуктах деления, выходящих из ядерного топлива, измерены и сравнены с максимально допустимыми значениями. В результате определено, что активность всех нуклидов в продуктах деления ядерного топлива ниже максимально допустимого предела. Обнаружено что активность нуклидов в продуктах деления ядерного топлива увеличивается с возрастанием выгорания. Сделан вывод, что ядерное топливо типа ИРТ-4М может быть использовано в активной зоне до значений более 50% выгорания без вреда для эксплуатации и радиационной обстановки реактора.

Nuclear fuel of IRT-4M type was unloaded from the active core of the WWR-SM research reactor each time in different burn-ups. Activity of isotopes in fission products releasing from fuel assemblies were measured and compared with maximal acceptable values. As a result of measurement it was defined that the activity of all nuclides in fission products of nuclear fuel was below maximal acceptable level. It was defined that the activity of all nuclides in fission products of nuclear fuel increases with burn-up rise. It was concluded that nuclear fuel IRT-4M type can be used in the active core till the value more than 50% burn-up without any damage to operation and radiation condition at the reactor.

Введение. В результате накопления продуктов деления ядра ^{235}U в материале появляются внутренние перенапряжения, повышается давление газа в порах, что, в конце концов, приводит к образованию трещин, вздутий и деформации тепловыделяющих элементов. И, как следствие, часть продуктов деления выходит в теплоноситель ядерного реактора.

Активность теплоносителя ядерного реактора обусловлена [1]:

– поверхностным загрязнением твэлов ураном-235, концентрация которого не превышает величины 3×10^{-8} г/см^2;

– образованием в теплоносителе короткоживущих нуклидов ^{16}N, ^{17}N и ^{19}O;

– присутствием в теплоносителе продуктов коррозии конструкционных материалов, нуклидов ^{24}Na, ^{59}Fe, ^{51}Cr, ^{54}Mn, ^{60}Co и др.

– наличием в нем короткоживущих (^{16}N, ^{17}N, ^{19}O) и долгоживущих (^{24}Na, ^{41}Ar, ^{59}Fe) радионуклидов.

– выходом продуктов деления ^{235}U в теплоноситель.

Значения предельных активностей продуктов деления в первом контуре при поверхностном загрязнении твэлов ^{235}U, равном 3×10^{-8} г/см^2, указаны в табл. 1.

Таблица 1. Активность продуктов деления.

Нуклид	Xe^{133}	Xe^{135}	Xe^{138}	Kr^{85}	Kr^{85m}	Kr^{88}	I^{131}	I^{133}	I^{135}	I^{134}
Удельная активность 10^{-7} Ки/л:	4.05	55	71	33	02	20	260	354	46	7

В работе [2] были измерены образцы воды первого контура реактора и воздуха надреакторного пространства и активности различных нуклидов, содержащихся в них. Результаты измерений показали, что активность нуклидов намного ниже допустимого уровня.

Выход продуктов деления ^{235}U. При делении урана-235 образуются почти все изотопы из таблицы Менделеева, но в различных количествах. В табл. 2 приведены характеристики наиболее наблюдаемых продуктов деления 235U.

Таблица 2. Характеристики продуктов деления ^{235}U.

Нуклид	Выход в %	Период полураспада
Zr-95	6.299	65 дней
Mo-99	6.015	66.02 часов
Ru-103	3.650	39.4 дней
Ce-141	5.718	32.5 дней
Ce-144	4.87	284 дня
Nd-147	6.168	11 дней
Kr-89	4.330	3.18 минут
Sr-89	4.507	50.5 дней
Xe-133m	0.184	2.19 дней
Xe-133	6.630	5.25 дней
Xe-137	5.650	3.82 минут
Cs-137	6.360	30.17 года

Продукты деления находятся в возбужденном состоянии, и энергия возбуждения расходуется путем испускания гамма-квантов или бета-частиц. Активность продуктов деления ядерного топлива была вычислена с использованием следующей формулы [3]:

$$Q_i = 0.84 Y_i P_0 (1 - \exp(-\lambda_i T_0)),$$

где Q_i – активность изотопа I (Кюри) в топливе после времени выдержки T; P_0 – мощность ядерного топлива (Ватт); Y_i – относительный выход изотопа I; λ_i – постоянная распада для I изотопа (с$^{-1}$); T_0 – время работы ядерного топлива на мощности P_0 (с).

Вычисленная активность для шеститрубного ядерного топлива типа ИРТ-4М с использованием указанного уравнения приведена в табл. 3.

Таблица 3. Активность продуктов деления нуклидов в шеститрубном ядерном топливе типа ИРТ-4М при 40% выгорании ^{235}U.

Нуклиды	Активность шеститрубного ядерного топлива типа ИРТ-4М с 40% выгоранием ^{235}U, Ки	Нуклиды	Активность шеститрубного ядерного топлива типа ИРТ-4М с 40% выгоранием ^{235}U, Ки
^{85}Kr	6.96E+03	^{95}Sr	1.51E+04
^{87}Kr	1.25E+04	^{95}Nb	2.27E+04
^{88}Kr	1.72E+04	^{103}Ru	1.03E+04
^{89}Kr	2.13E+04	^{106}Ru	2.25E+02
^{90}Kr	2.37E+04	^{131}I	1.44E+04
^{133m}Xe	7.42E+02	^{132}I	2.04E+04
^{133}Xe	1.84E+04	^{133}I	3.02E+04
^{135m}Xe	8.35E+03	^{134}I	3.62E+04
^{135}Xe	2.97E+04	^{135}I	2.83E+04
^{137}Xe	2.83E+04	^{140}Ba	2.89E+04
Xe^{138}	2.55E+04	^{140}La	2.97E+04
^{134}Cs	6.03E+03	^{132}Te	2.18E+04
^{137}Cs	1.43E+02		
Всего	4.57E+05		

В процессе работы твэлов с сердечником из порошка двуокиси урана, диспергированного в алюминий с размером зерен 100 мкм, 92% накопленных продуктов деления в топливной композиции будут находиться в зернах UO_2, а 8% в алюминиевой матрице.

Температура плавления зерен UO_2 ~ 2700°C, поэтому температура, выделяемая при работе реактора не достаточна, чтобы расплавить UO_2. Согласно [4], алюминиевая матрица содержит 10% продуктов деления, это хорошо согласуется с оценочными данными, которые учитывают кинетические энергии продуктов деления (диаметр зерен предполагался 100 мкм, длина свободного пробега – 10 мкм). Поэтому выход продуктов деления из топливной композиции при разгерметизации будет не более 10% продуктов деления.

Определение герметичности продуктов деления ядерного топлива. Для обеспечения безопасной работы реактора все ядерное топливо, загружаемое в активную зону реактора, должно быть герметичным. С возрастанием выгорания ядерного топлива на поверхности тепловыделяющих элементов (твэлов) появляются микропоры и микротрещины, и элементы деления ^{235}U выходят из топливной композиции, этот процесс называется разгерметизацией.

При нормальной работе реактора ВВР-СМ ИЯФ АН РУз на номинальном уровне мощности 10 МВт активность теплоносителя не должна превышать 10^{-4} Ки/л.

Процедура контроля герметичности оболочки включает:

– размещение ядерного топлива в специальном стакане и заполнение его дистиллированной водой;

– отбор проб воды из специального стакана через 24 часа;

– измерение активностей продуктов распада в пробах воды.

Специальный стакан (рис. 1) опускают в бассейн хранилища отработанного ядерного топлива. Ядерное топливо загружают в специальный стакан и плотно

закрывают для предотвращения проникновения воды бассейна хранилища в стакан. Стакан заполняют дистиллированной водой через нижнюю трубку и дают ей протечь через стакан в течение 10 минут. Затем стакан, полный дистиллированной воды, оставляют на 24 часа.

После этого из стакана отбирают 10 проб воды по 0.5 л каждая. Мощность доз этих проб измеряют с использованием прибора Target Identifinder. Образцы, имеющие более высокие дозы, далее отбираются для измерения их активностей. Измерения активностей проб проводят на гамма-спектрометре с эффективностью 15% и разрешением 1.8 кэВ, состоящем из высокочистого германиевого детектора GC 1020 (диаметр 46 мм, длина 29 мм) и многоканального анализатора InSpector-2000 (Канберра, США). Обработку гамма-спектров проводили с помощью программного пакета Genie-2000, входящего в комплект спектрометра. В качестве аналитических линий для расчета флюенсов тепловых и быстрых нейтронов используются линии 1332.5 кэВ для ^{60}Co и 834.8 кэВ для ^{54}Mn. Наблюдаемые в спектре продуктов деления ^{235}U двенадцать нуклидов отбираются для анализа.

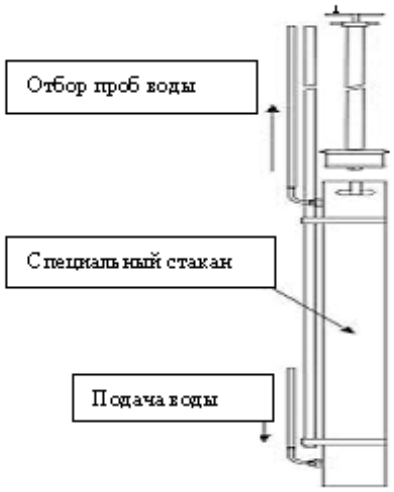


Рис. 1. Специальный стакан для определения герметичности.

Для проведения контрольных измерений активностей радионуклидов в воде первого контура реактора проведена калибровка используемого анализатора и просчитана эффективность регистрации детектора при различных значениях энергии регистрируемого гамма-излучения по активности ряда радионуклидов некоторых элементов. Расчет эффективности детектора проводился по формуле

$$\mu = A_1 / A_2 ,$$

где A_1 и A_2 – соответственно истинная активность регистрируемого радионуклида и зарегистрированная детектором радиоактивность того же радионуклида.

Активность проб воды измеряли через 1 час после отбора (для спада активностей короткоживущих радионуклидов ^{16}O, ^{28}Al, ^{17}N и др.), далее через сутки и последующие 7-10 суток. Из измеренного спектра определяли удельную активность в теплоносителе следующих радионуклидов: ^{95}Nb, ^{95}Zr, ^{99}Mo, ^{103}Ru, ^{106}Ru, ^{131}I, ^{133}I, ^{134}Cs, ^{137}Cs, ^{140}La, ^{141}Ce, ^{144}Ce, из которых отбирали радионуклиды, наиболее характерные для деления ^{235}U, и определяли относительную герметичность ядерного топлива активной зоны.

Результаты измерений и анализ. Был проведен контроль герметичности оболочек ядерного топлива типа ИРТ-4М с различным выгоранием. Для этого отобраны 12 самых наблюдаемых нуклидов и значения их активностей представлены в табл. 4. Активность нуклидов увеличивается с увеличением выгорания ^{235}U в ядерном топливе.

Таблица 4. Активность нуклидов в зависимости от выгорания ^{235}U в ядерном топливе, Ки/л.

Выгорание, %	^{95}Nb	^{95}Zr	^{99}Mo	^{103}Ru	^{106}Ru	^{131}I	^{133}I	^{134}Cs	^{137}Cs	^{140}La	^{141}Ce	^{144}Ce
1,85	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	8,59E-08	8,61E-08	3,40E-08	4,76E-08	0,00E+00	2,08E-07	0,00E+00	5,49E-08	0,00E+00
7,23	4,30E-08	0,00E+00	0,00E+00	5,20E-08	0,00E+00	5,50E-08	1,30E-08	9,70E-09	3,20E-08	9,30E-08	5,50E-08	0,00E+00
16,8	6,50E-08	2,80E-09	5,10E-10	2,00E-08	0,00E+00	2,90E-07	6,20E-08	7,10E-08	6,40E-08	3,70E-08	9,10E-09	1,10E-07
23,8	8,10E-08	6,60E-09	0,00E+00	3,00E-08	0,00E+00	3,70E-07	2,70E-07	3,50E-08	9,70E-08	2,40E-07	8,20E-08	1,30E-07
42,9	6,00E-07	6,90E-07	1,00E-06	6,80E-07	6,20E-07	2,00E-06	5,10E-07	4,20E-07	1,40E-06	7,30E-07	1,30E-06	1,60E-06
49,5	1,00E-06	8,80E-07	1,40E-06	1,20E-06	8,20E-07	2,30E-06	6,30E-06	8,10E-07	1,70E-06	1,10E-06	1,90E-06	1,80E-06

Ядерное топливо измерялось несколько раз, по мере возрастания выгорания. Результаты измерений активностей воды представлены на рис. 2.

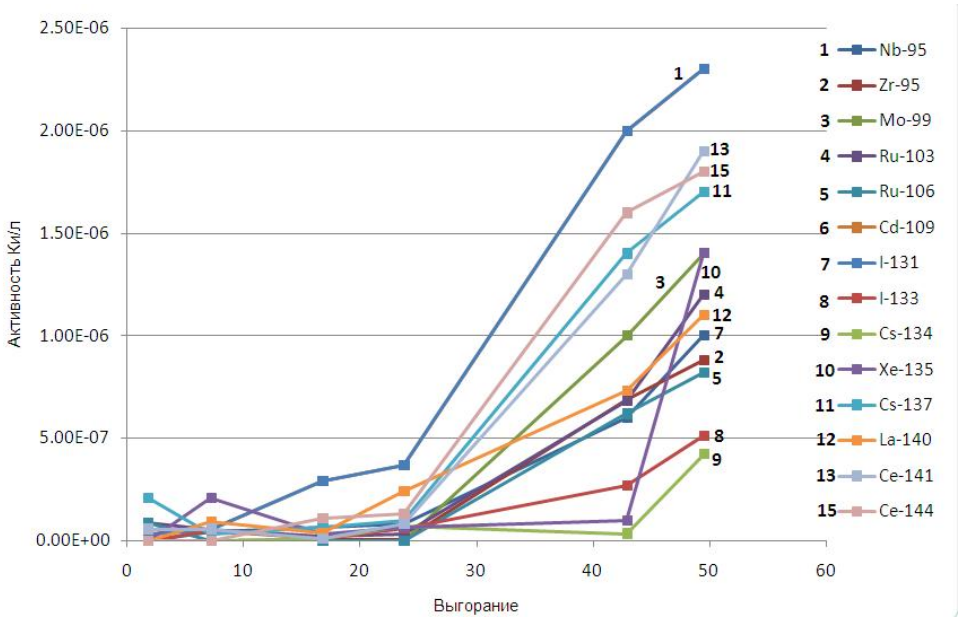


Рис. 2. Результаты измерений активности для ядерного топлива при различном выгорании.

Верхний предел общей активности для нуклидов в ядерном топливе составляет 1.00E-04. Если предел превышен, то ядерное топливо не подходит для использования. Если значение больше, чем 1.00E-05 Ки/л, то мы проводим дополнительное изучение ядерного топлива различными способами: визуальное обследование с помощью подводной камеры и дополнительные измерения.

Анализы показывают, что измеренные активности ядерного топлива, ниже допустимых пределов (1.00E-04 Ки/л).

Кроме этого, не реже одного раза в кампанию, а также при превышении параметров от нормальных значений на 20% выполняются измерения герметичности ядерного топлива по методике, разработанной ИЯФ АН РУз.

Эквивалентная герметичность ядерного топлива активной зоны β определяется по измерениям концентрации газовых осколочных радионуклидов в воде первого контура (C_1) и в системе газовых выбросов (C_g), исходя из определения герметичности для стационарного состояния как отношения скорости выхода радионуклида к скорости его генерации:

$$\beta = \frac{1}{E_f W_n} \sum_{i=1}^{n} \frac{(C_g Q + \lambda_i C_1 V_1)}{\lambda_i \eta_i},$$

где Q – расход воздуха в системе спецвентиляции; V_1 – объем воды первого контура; λ_i и η_i – соответственно константа распада и выход радионуклида при делении; E_f – энергия, выделяемая при одном акте распада; W – мощность реактора; n – количество радионуклидов, используемых в усреднении.

Как показал многолетний опыт эксплуатации реактора ВВР-СМ, используемые методы контроля герметичности ядерного топлива надежны и достаточно чувствительны, а именно, позволяют вести контроль герметичности на уровне $(1–3)\times10^{-5}$%, т.е. на уровне допускаемого поверхностного загрязнения ядерного топлива, равного 10^{-9} грамм ^{235}U на см^2.

Среднее значение эквивалентной герметичности ядерного топлива активной зоны за последние 5 лет эксплуатации реактора находится на уровне 10^{-4}%.

Заключение. Результаты измерений показывают, что разгерметизации ядерного топлива не наблюдалось, активность всех нуклидов ниже максимально допустимого значения. Ядерное топливо типа ИРТ-4М, исследованное в ходе экспериментов, находится в хорошем состоянии, использованный метод показывает достоверные результаты. Поведение активностей нуклидов с возрастанием выгорания увеличивается в соответствии с поведением активности отработанного ядерного топлива. Ядерное топливо типа ИРТ-4М может быть использовано в активной зоне до значений более 50% без вреда для эксплуатации и радиационной обстановки.

Измеренное ядерное топливо визуально осмотрено, насколько это было возможно. Ни трещин, ни разрывов, ни набуханий или каких-либо других повреждений не наблюдалось. Это показывает бережное обращение с ядерным топливом при его загрузке и выгрузке в активную зону или из зоны персоналом, а также качественное изготовление ядерного топлива его производителем.

ЛИТЕРАТУРА

1. В.И. Павленко, В.М. Маркушев, В.В. Тимашев. Метод расчета выхода продуктов деления из разгерметизированных твэлов с топливом UO_2, Препринт ИАЭ № 5137/11 (Москва, 1990).
2. А.А. Досимбаев, С.А. Байтелесов, Ю.Н. Коблик, У.С. Салихбаев, Вестник Русской академии наук, Физика **73**, № 2, 270 (2009).
3. W.L. Woodruff, D.K. Warinner, J.E. Matos, МАГАТЭ TECDOC 643, том 2. Приложение D, Радиологический анализ последствий.
4. Технический прогресс в атомной промышленности: серия твэлостроения **4**, 20 (Москва, 1987).