

активных отходов позволяет в первом приближении выделить в их составе те компоненты, которые представляют наибольшую экологическую опасность на разных этапах хранения, т.е. требуют более пристального исследования и внимания. Согласно полученным данным трансурановые элементы становятся определяющими в параметре токсичности как высоко-, так и среднеактивных отходов только после большого периода времени (более 350 лет). На современном этапе эксплуатации глубинных хранилищ наиболее значимо поведение долгоживущих продуктов деления ^{90}Sr и ^{137}Cs . В низкоактивных отходах наиболее опасной является химическая, а не радионуклидная составляющая.

Требует дополнительного осмысления и результат, полученный при оценке опасности участка глубинного хранилища с захороненными отходами. При значительно более низкой удельной токсичности по сравнению со средне- и высокоактивными отходами зона распространения низкоактивных отходов настолько велика, что содержание в ней токсичных компонентов со временем приближается к таковому в средне- и высокоактивных отходах. Поэтому возникает вопрос: «Что представляет большую потенциальную экологическую опасность: локальные области, характеризующиеся высокой токсичностью, либо в сотни раз превышающие их зоны с низким содержанием токсичных компонентов?»

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П и др. Глубинное захоронение радиоактивных отходов. М.: ИздАТ, 1994. 256 с.
2. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99). Гигиенические нормативы. М., Минздрав России, 1999. 116 с.
3. Питьевая вода. Гигиенические требования к качеству воды централизованных систем питьевого водоснабжения. Контроль качества. Санитарные правила и нормы. СанПиН 2.1.4.559-96. М., Госкомсанэпиднадзор России, 1996. 111 с.
4. Беспаятнов Г.П., Кротов Ю.А. Предельно допустимые концентрации химических веществ в окружающей среде. Л.: Химия, 1985. 528 с.

Поступила в Редакцию 23.08.05

УДК 621.039.524.4—98:621.039.54

РЕНТГЕНСПЕКТРАЛЬНЫЙ МИКРОАНАЛИЗ КСЕНОНА В ОБЛУЧЕННОМ ТОПЛИВЕ ТЕПЛОВЫХ РЕАКТОРОВ

*Крюков Ф.Н., Кузьмин С.В., Лядов Г.Д., Никитин О.Н., Смирнов В.П.
(ГНЦ РФ — НИИАР)*

Накопление газообразных продуктов деления в топливе тепловых реакторов, среди которых главное значение имеет ксенон из-за его большого выхода в результате деления актиноидов и трансмутационных ядерных реакций, может обуславливать образование внутри-, межзеренной пористости, формирование открытой пористости и выход газообразных продуктов деления и пористости при реструктуризации диоксида урана в краевой зоне сердечника.

Определение содержания ксенона в облученном топливе методом электронно-зондового рентгеноспектрального микроанализа [1] осложнено тем, что часть газа может находиться в порах, размер и распределение которых влияют на интенсив-

ность характеристической рентгеновской линии из-за различия взаимодействия электронного зонда с твердым веществом и газом. Очевидно, что это различие будет увеличиваться с уменьшением плотности газовой фазы. Влияние пористости на интенсивность характеристической рентгеновской линии ксенона $L_{\alpha 1}$ было рассчитано в работе [2] для газонаполненных пор, давление внутри которых уравновешено поверхностным натяжением. Из полученных результатов следует, что интенсивность линии ксенона начинает уменьшаться при диаметре пор более 10 нм. Если ксенон находится в равновесной поре диаметром 100 нм, интенсивность линии в 2 раза ниже, чем от такого же количества ксенона в твердом растворе диоксида урана.

Анализ характеристик трехмерной структуры облученного топлива в краевой зоне сердечника, рассчитанных по результатам количественной металлографии [3], показывает, что диаметр пор и расстояние между ними составляют 1—2 мкм. Глубина зоны возбуждения рентгеновского излучения в диоксиде урана при ускоряющем напряжении 20 кВ составляет около 0,8 мкм [4].

Изложенные обстоятельства, с одной стороны, ограничивают возможности метода, поскольку позволяют регистрировать не полное количество ксенона в топливе, а лишь часть, находящуюся в твердом растворе и мелких порах диаметром менее 0,01 мкм. С другой, реализуются возможности локального микроанализа для исследования поведения ксенона.

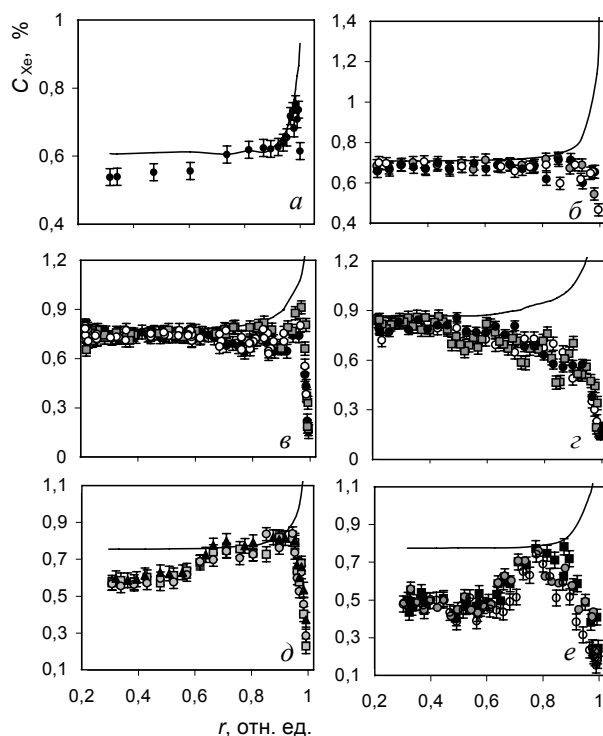
Для моделирования состояния топлива при повышении выгорания представляют интерес следующие характеристики:

предельное выгорание топлива — локальное выгорание в краевой зоне, при котором начинается перестройка структуры топлива, сопровождающаяся «очищением» топливной матрицы от газообразных продуктов деления и образованием пор;

зависимость ширины реструктурированной зоны от среднего по сечению таблетки выгорания.

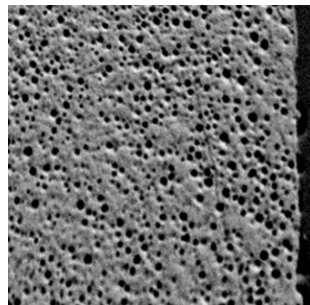
На рис. 1 представлены результаты определения содержания ксенона в топливе после облучения до разного выгорания в различных реакторах. Для сравнения представлены радиальное распределение образовавшегося ксенона, рассчитанное предложенным в работе [5] способом с учетом радиального распределения выгорания [6]. Распределение ксенона по радиусу таблеток имело следующие особенности. Во-первых, измеренное содержание во всех твэлах в наружной части таблеток ниже расчетного накопления. Уменьшение содержания в матрице топлива обусловлено образованием характерной пористой структуры краевой зоны, сопровождающимся выходом атомов ксенона из зерен (рис. 2). Во-вторых, измеренное содержание в центральной части топливных таблеток твэлов ВВЭР-1000 существенно ниже по сравнению с образовавшимся в результате облучения. Можно предположить, что наблюдаемое уменьшение содержания газообразных продуктов деления в центральной области таблеток обусловлено повышением линейной мощности в определенный период облучения.

Таким образом, радиальное распределение ксенона в топливе после облучения в ВВЭР-1000 отражает два разных явления — формирование новой структуры топлива в краевой зоне и термически активированное формирование пористости в центральной области сердечника с частичным выходом газообразных продуктов деления из топлива.



Р и с. 1. Распределение ксенона по радиусу топливных таблеток экспериментального твэла после облучения в реакторе МИР до выгорания 46 МВт-сут/кг (а), штатных твэлов ВВЭР-440, облученных до выгорания 51 (б), 59 (в) и 70 МВт-сут/кг (г), штатных твэлов ВВЭР-1000, облученных до выгорания 54 (д) и 60 МВт-сут/кг (е): — — расчет; ○, ▲, ●, □, ■ — эксперимент

формирование структуры краевой зоны начинается при локальном выгорании 55—60 МВт-сут/кг, при этом видно, что реструктуризация — процесс гетерогенный. В кольцевой зоне таблетки с локальным выгоранием от 55 до 70 МВт-сут/кг имеются участки с исходной структурой, где измеренное содержание ксенона соответствует образовавшемуся, и участки с новой структурой, где измеренное содержание ксенона ниже образовавшегося.



Р и с. 2. Микроструктура краевой зоны топлива ВВЭР-440 после облучения до выгорания 70 МВт-сут/кг

Начало формирования новой структуры топлива с высоким выгоранием в краевой зоне можно определить по отклонению измеренного содержания ксенона от расчетного накопления. Рассчитав радиальное распределение выгорания по содержанию наработанного неодима [6], можно определить предельное локальное выгорание, соответствующее началу формирования структуры краевой зоны.

Содержание ксенона в матрице топлива в зависимости от локального выгорания в краевой зоне для разных групп твэлов показано на рис. 3. Видно, что с увеличением локального выгорания массовая доля ксенона уменьшается примерно до 0,2%. Представленные результаты демонстрируют также интервал значений локального предельного выгорания, соответствующего началу реструктуризации краевой зоны. Из совокупности полученных результатов следует, что

На рис. 4 показана зависимость ширины реструктурированной краевой зоны для исследованных твэлов от среднего по сечению выгорания (ширина определена по кривым распределения ксенона как часть радиуса во внешней части таблетки, где измеренное методом рентгеноспектрального микроанализа содержание ксенона снижено по сравнению с накопленным). Здесь же представлены аналогичные данные [7].

В результате анализа данных можно сделать следующие предположения о состоянии топлива в поверхностном слое сердечника. Эволюция состояния топлива в

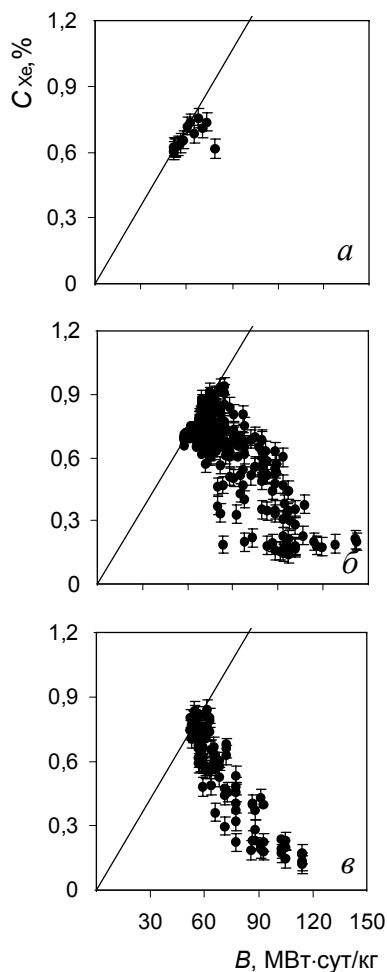
краевой зоне проходит несколько фаз. Первая фаза, которую можно назвать инкубационной, продолжается до выгорания 55—70 МВт·сут/кг. В течение этой фазы в кристаллической решетке диоксида урана накапливаются радиационные дефекты, а также плутоний и продукты деления, в том числе ксенон. Вторая фаза, соответствующая интервалу локального выгорания от 55—70 до примерно 125 МВт·сут/кг, связана с гетерогенным процессом зарождения реструктурированных микрообластей, их ростом, объединением и, в конечном итоге, формированием полностью реструктурированной зоны, которая представляет собой совокупность газонаполненных пор диаметром до нескольких микрометров, окруженных новыми мелкими зернами размером менее 1 мкм (рис. 5). При локальном выгорании более 125 МВт·сут/кг весь объем топлива имеет обновленную структуру.

При локальном выгорании 125 МВт·сут/кг образовавшееся количество ксенона соответствует массовой доле 1,8%. При этом его массовая доля в твердом растворе равна 0,2%. Если остальная часть образовавшегося ксенона находится в порах, относительный объем которых при указанном локальном выгорании равен 17—22%, то давление в них при 500 °С (в приближении идеального газа) составляет около 40 МПа (рис. 6). Напряжение в материале, обусловленное давлением в поре, зависит от поверхностной энергии, радиуса поры. Максимальное напряжение на поверхности поры рассчитывается по формуле [8]

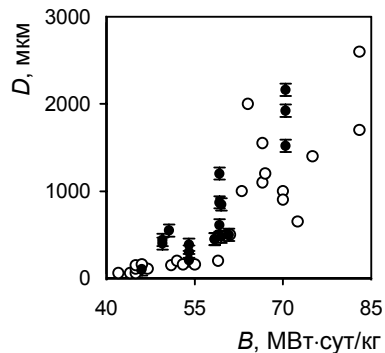
$$\sigma_{\max}(r) = P - 2\gamma/r,$$

где P , r — давление, Па и радиус поры, м; γ — поверхностная энергия, Дж/м².

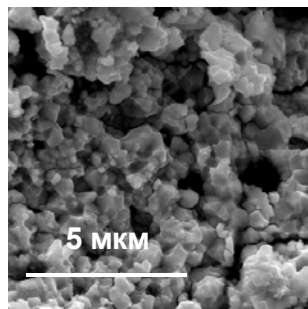
Поверхностную энергию диоксида урана обычно принимают равной 1 Дж/м² [9], и максимальное напряжение на поверхности поры диаметром 1 мкм, таким образом, составляет ~36 МПа. В соответствии с обобщенными данными о радиационной и термической ползучести [10] скорость радиационной ползучести диоксида урана в краевой зоне равна $4,4 \cdot 10^{-6} \text{ ч}^{-1}$. Следовательно, при ло-



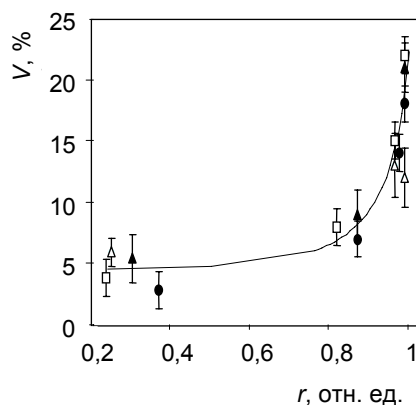
Р и с. 3. Зависимость содержания ксенона во внешней зоне топливных сердечников между относительным радиусом, равным 0,7, и краем таблеток от локального выгорания топлива реактора МИР (а), ВВЭР-440 (б), -1000 (в)



Р и с. 4. Зависимость ширины краевой зоны от выгорания: ● — постоянная работа; ○ — [7]



Р и с. 5. Микроструктура топлива в краевой зоне при локальном выгорании 120 МВт·сут/кг



Р и с. 6. Радиальное распределение пористости в топливе ВВЭР-440 при выгорании 51 (●), 60 (▲), 70 МВт·сут/кг (□) и ВВЭР-1000 при выгорании 60 МВт·сут/кг (△)

кальном выгорании более 125 МВт·сут/кг, когда процесс реструктуризации закончился, в состоянии краевой зоны наступает третья фаза, которую можно назвать фазой динамического равновесия, — новые поры не образуются, количество ксенона, накапливающегося в результате деления, равно количеству, диффундирующему в существующие поры. При отсутствии радиационной ползучести это будет приводить к постепенному повышению давления в них без существенных изменений характеристик пористости. В таком случае для полностью реструктурированного топлива можно ожидать уменьшения скорости распухания. Эти особенности структурных изменений

краевой зоны топлива при повышенном выгорании требуют экспериментальной проверки путем электронно-микроскопических исследований.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Крюков Ф.Н., Никитин О.Н.** Методика рентгеноспектрального микроанализа содержания ксенона в облученном оксидном топливе. — В кн.: Сборник трудов. Димитровград, 2002, вып. 4, с. 19—29.
2. **Walker C.** Electron probe microanalysis of irradiated nuclear fuel: an overview. — J. Anal. Atomic Spectrom., 1999, v. 14, p. 447—454.
3. **Spino J., Vennix K., Coquerelle M.** Detailed characterization of the rim microstructure in PWR fuels in the burn-up range 40—67 GWd/tM. — J. Nucl. Mater., 1996, v. 231, p. 179—190.
4. **Рид С.** Электронно-зондовый микроанализ. Пер. с англ. М.: Мир, 1979. 424 с.
5. **Крюков Ф.Н., Лядов Г.Д., Никитин О.Н.** Способ расчета накопления газовых продуктов деления в топливе реакторов на тепловых нейтронах. — В кн.: Сборник трудов. Димитровград, 2004, вып. 1, с. 3—10.
6. **Крюков Ф.Н., Лядов Г.Д., Никитин О.Н., Четвериков А.П.** Применение рентгеноспектрального микроанализа для определения локального выгорания топлива реакторов ВВЭР. — Там же, 2003, вып. 4, с. 3—13.
7. **Walker C.** Assessment of the radial extent and completion of recrystallisation in high burn-up UO_2 nuclear fuel by EPMA. — J. Nucl. Mater., 1999, 275, p. 56—62.
8. **Ronchi C.** Extrapolated equation of state for rare gases at high temperatures and densities. — Ibid., 1981, v. 96, p. 314.
9. **Olander D.** Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements. ERDA Techn. Inform. Center. Oak Ridge, 1976. 613 p.
10. **Materials Science and Technology. A Comprehensive Treatment. V. 10A, Part 1.** Ed. B. Frost. Weinheim—New York—Basel—Cambridge—Tokio: VCH, 1994. 558 p.