

СТАТЬИ

УДК 621.039.524.4—98:621.039.543.6

РАДИАЛЬНОЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ВЫГОРАНИЯ И СОДЕРЖАНИЯ ПЛУТОНИЯ В ТОПЛИВНЫХ ТАБЛЕТКАХ ВВЭР

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

Для оптимизации эксплуатационных параметров и моделирования состояния твэлов энергетических тепловых реакторов необходимы экспериментальные данные о радиальном распределении выгорания и накопления плутония в топливном сердечнике. Для построения достоверных радиальных профилей выгорания и содержания плутония требуется, чтобы размер (диаметр) анализируемой области не превышал нескольких микрометров. Метод масс-спектрометрии, обычно применяемый для определения состава и выгорания топлива [1], предполагает отбор проб по радиусу таблетки, что не обеспечивает нужной локальности. В настоящей работе представлены результаты измерения выгорания и содержания плутония в твэлах ВВЭР с применением методов и приемов электронно-зондового рентгеноспектрального микроанализа. Характеристики исследованного топлива приведены в таблице.

Определение выгорания топлива включало нахождение содержания одного из продуктов деления неодима и установление соответствия между его содержанием и выгоранием. Неодим был выбран в качестве монитора выгорания, поскольку не мигрирует в топливе, накапливается в большом количестве, выход изотопов этого элемента при делении урана и плутония близок, что существенно для снижения погрешности вследствие изменения долей деления разных актиноидов с повышением выгорания. Трансмутационные процессы не вносят существенного вклада в изменение его количества и легко могут быть учтены. Процедура расчета накопления в топливе теплового реактора на момент исследования конкретного твэла, учитывающая выход при делении ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu и ^{238}U , их долю делений, дополнительную наработку ^{142}Nd путем захвата нейтрона ^{141}Pr , его превращения в ^{142}Pr и затем в ^{142}Nd , образование ^{144}Nd из ^{144}Ce , представлена в работе [3].

Массовую долю неодима и плутония определяли с помощью микроанализатора MAP-4 [4] по характеристическим рентгеновским линиям L_α и M_β соответственно с использованием кристалла-анализатора PET при ускоряющем напряжении 20 кВ. Интенсивность линии плутония M_β корректировали в связи с ее частичным перекрытием линией урана M_γ [5]. В качестве стандартных образцов использовали таблетку $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ с массовой долей плутония 7,35% и чистый неодим с массовой долей не менее 99,9%. Минимально обнаруживаемая массовая доля плутония и неодима, рассчитанная по интенсивности линии на стандартном образце и интенсивности фона на исследуемом образце, составляла 0,064 и 0,019% соответственно.

Основные характеристики исследованного топлива* [2]

Номер образца	Реактор	ТВС/ТВЭЛ	Обогащение, %	Число топливных циклов	Среднее по сечению таблеток выгорание, МВт·сут/кг по данным			
					γ-спектрометрии	масс-спектрометрии	энерговыработки	рентгено-спектрального микроанализа
1	ВВЭР-440	198/96	3,6	4	50,6±4,1	—	—	51,7±1,9
2		228/111	3,6	5	60,3±4,8	—	—	60,6—62,5
3		228/34	3,6	5	60,2±4,8	—	—	60,9±1,1
4		222/111	4,4	5	59,2±4,7	—	—	61,9±1,2
5		222/24	4,4	5	60±4,8** 70±5,6***	68,2±1,4	71,8±5,1	70,4±1,2
6		222/4	4,4	5	60±4,8** 69,1±5,5***	—	72,4±5,1	72,1±1,6
7	ВВЭР-1000	325/96	4,4	4	54±4,3	—	—	55,4±1,3
8		325/148	4,4	4	57,8±4,6	—	—	57,2±0,9
9		4108/177	4,4	3	49,7±3,9** 59,5±4,8***	58,1±1,3	62,6±4,4	60,9±1,1
10		4108/159	4,4	3	49±3,9** 59,5±4,8***	—	62,9±4,4	62,2±0,9
11	МИР	ЕК6393/40	4,4	3	47±3,8	—	—	46,6±1,2
12		ЕК6393/30	4,4	3	36,5±2,9	—	—	35,8±1,1
13		Экспериментальная ТВС	4,4	Не регламентировалось	46±3,7	—	—	—
14			4,4		1,3±0,1 3,2±0,3 6,4±0,5	—	—	—

*UO₂ — образцы № 1—11, 13, 95% UO₂ + 5% Gd₂O₃ — образцы № 12, 14.
 **Выгорание после штатной эксплуатации.
 ***Выгорание после дооблучения в МИР.

Содержание плутония и неодима определяли на поперечных сечениях ТВЭЛОВ в выбранных точках по трем радиусам топливных таблеток. За массовую долю элементов в каждой точке принимали среднеарифметическое значение, рассчитанное по результатам 4—8 измерений. В процессе проведения измерений на образцах топлива выбирали участки, свободные от видимых пор и микротрещин. При этом положение электронного зонда идентифицировали визуально и по току поглощенных электронов.

Способы определения выгорания и содержания плутония опробованы при исследовании ТВЭЛА ВВЭР-440, в котором выгорание и изотопный состав топлива были определены масс-спектрометрическим методом после растворения топливной таблетки и отдельных проб, отобранных ультразвуковым способом по радиусу сердечника. В образцах, вырезанных из смежных участков ТВЭЛА, сравнивали выгорание и массовую долю плутония, определенные рентгеноспектральным микроанализом.

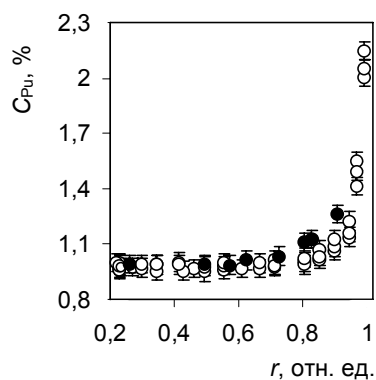
зом, с массовой долей суммы изотопов ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu и ^{242}Pu и выгоранием, установленным масс-спектрометрическим методом. Результаты сравнительных экспериментов представлены на рис. 1.

Отобранные для масс-спектрометрического анализа образцы имели форму цилиндра диаметром 0,85, высотой 2 мм. Поэтому при интерпретации результатов следует учитывать, что полученные значения относятся к большей площади в сечении твэла по сравнению с зоной возбуждения при рентгеноспектральном микроанализе, которая при энергии электронов 20 кэВ составляла около 3 мкм. Отсюда сравнение результатов, полученных указанными методами, корректно лишь для внутренней части топливной таблетки, где содержание плутония меняется слабо. Средняя по сечению массовая доля плутония, рассчитанная по данным рентгеноспектрального микроанализа, составила $1,08 \pm 0,04\%$, по результатам масс-спектрометрии — $1,115 \pm 0,005\%$, что указывает на удовлетворительное соответствие.

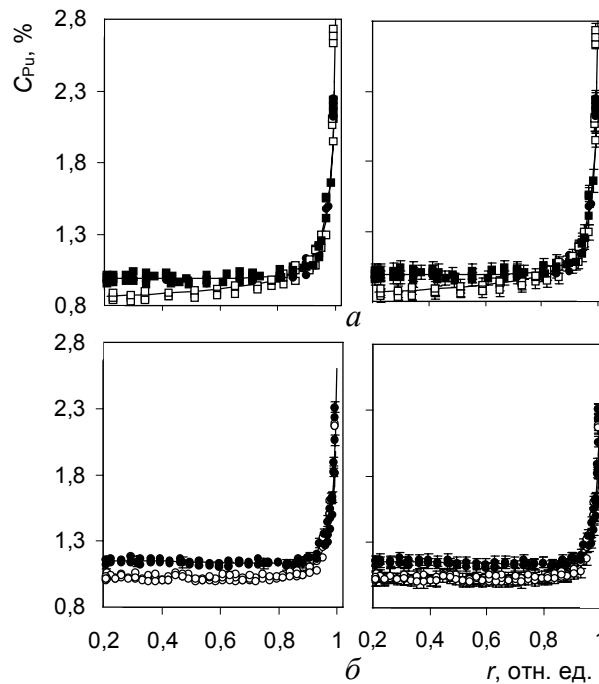
Выгорание в центральной части таблетки, определенное методом масс-спектрометрии, равно 59,1 МВт·сут/кг. Определенная методом рентгеноспектрального микроанализа массовая доля неодима при этом равна 0,62%. Таким образом, массовая доля накопленного неодима составила 0,01049% на 1 МВт·сут/кг, и это значение можно использовать для построения радиального профиля выгорания по профилю распределения неодима. Расчетное накопление неодима в топливе на момент исследования твэла составило 18,836 атома на 100 актов деления [2], с учетом средней молярной массы осколочного неодима (144,84 г/моль) это соответствует массовой доле 0,01045% на 1 МВт·сут/кг, что хорошо совпадает с результатами измерения.

В твэлах тепловых реакторов вблизи внешней поверхности сердечника выгорание топлива примерно вдвое превышает среднее по таблетке. При этом распределение деления между ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu и ^{238}U в локальной области топливного сердечника и, следовательно, накопление неодима будут отличаться от средних значений. В работе [3] показано, что при изменении локального выгорания топлива исходным обогащением по ^{235}U 3,6% от 60 до 120 МВт·сут/кг средняя скорость накопления неодима монотонно уменьшается примерно на 5%, что легко учитывается при расчете.

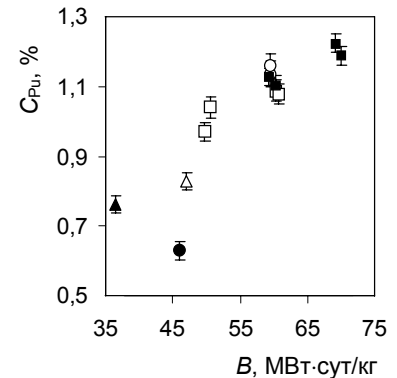
Для всех исследованных твэлов радиальные профили содержания плутония характеризуются относительно равномерным распределением в центре сердечника и повышением его концентрации вблизи наружной поверхности топливной таблетки (рис. 2). Наиболее резкие изменения соответствуют внешнему слою таблеток толщиной 0,4 мм. Содержание плутония в центральной части таблетки зависит от выгорания, исходного обогащения и наличия гадолиния в топливной композиции.



Р и с. 1. Радиальное распределение плутония в твэле ВВЭР-440, полученное методами рентгеноспектрального микроанализа по трем радиальным направлениям (○) и масс-спектрометрии с локальным пробоотбором (●)



Р и с. 2. Радиальное распределение плутония в топливе исходным обогащением 3,6% (а), 4,4% (б) при выгорании 50,6 (□) и 60,8 МВт·сут/кг (■) и 59,2 (○) и 70 МВт·сут/кг (●) соответственно



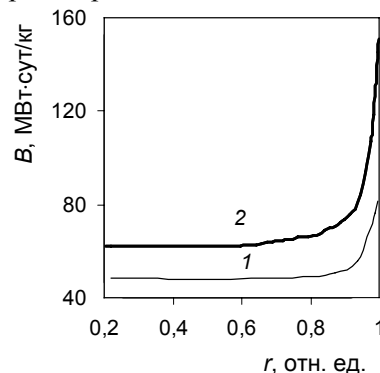
Р и с. 3. Зависимость среднего по сечению сердечника содержания плутония в исследованных твэлах ВВЭР-440 обогащением топлива 3,6 (□) и 4,4% (■), ВВЭР-1000 обогащением 4,4% (○), комбинированной ТВС ВВЭР-1000 с урангадолиниевым (▲) и урановым топливом (Δ), МИР обогащением 4,4% (●) от выгорания

Экспериментальные значения массовой доли плутония вдоль радиуса аппроксимировали функцией

$$F(r) = aB + b(r/r_0)^2 + c \exp(-d(1 - r/r_0)^n), \quad (1)$$

где B — выгорание, МВт·сут/кг; r/r_0 — радиус топливной таблетки, отн. ед.; a , b , c , d , n — коэффициенты, определяемые методом наименьших квадратов.

На основании радиальных распределений была получена средняя по сечению массовая доля плутония (рис. 3). Видно, что темп накопления плутония в топливе при облучении в МИР немного ниже, чем при облучении такого же топлива в ВВЭР, что, по-видимому, связано с разной долей резонансных нейтронов в этих реакторах.



Р и с. 4. Радиальное распределение выгорания топлива в образцах после облучения до среднего по сечению 50,6 (1) и 70 МВт·сут/кг (2)

Измеренное содержание неодима в образцах топлива было использовано для расчета локального выгорания и построения радиального профиля выгорания (рис. 4). Полученное локальное выгорание вдоль радиуса аппроксимировали функцией, аналогичной (1). По радиальному распределению выгорания рассчитывали его среднее по радиусу таблетки значение. При изучении неравномерности выгорания топлива по сечению таблетки получали соответствующее распределение для разных радиальных направлений (см. таблицу). Рассчитанное среднее выгорание для образцов топлива сравнивали с полученным другими методами [3]. Как видно

из таблицы, рентгеноспектральный микроанализ как метод определения выгорания топлива не уступает в точности другим методам, являясь при этом единственно доступным для нахождения локального выгорания.

Представляет практический интерес знание особенностей выгорания топлива, содержащего гадолиний, а именно:

влияние наличия гадолиния в топливе на радиальный профиль и среднее выгорание;

изменение радиального распределения и среднего содержания ^{155}Gd и ^{157}Gd с выгоранием.

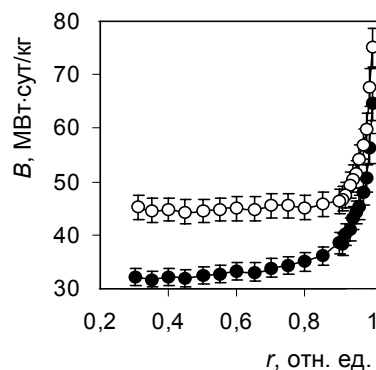
Для образцов № 12 (с гадолинием) и № 11 (без гадолиния) ТВС ЕК6393 ВВЭР-1000 были определены радиальные профили выгорания и средние по радиусу таблеток значения. Как следует из полученных результатов, в топливной композиции 95% UO_2 + 5% Gd_2O_3 среднее по радиусу выгорание примерно на 10 МВт·сут/кг меньше, чем уранового диоксидного топлива, — $35,8 \pm 1,1$ и $46,6 \pm 1,2$ МВт·сут/кг соответственно. Радиальное распределение выгорания в этих видах топлива также отличается (рис. 5).

Радиальное распределение изотопов гадолиния исследовали на образцах № 13 и 14 из экспериментальных твэлов с топливом 95% UO_2 + 5% Gd_2O_3 , облученных в МИР до выгорания 1,3, 3,2 и 6,4 МВт·сут/кг. Исследование было выполнено методом лазерной масс-спектрометрии на приборе ЭМАЛ-2 [6]. Из представленных на рис. 6 результатов следует:

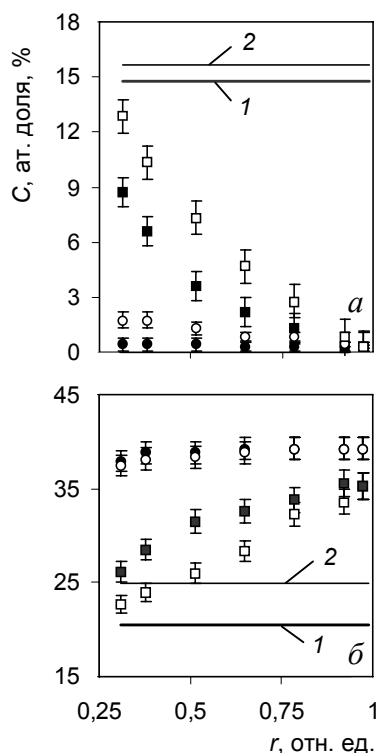
выгорание ^{155}Gd , ^{157}Gd и их превращение в ^{156}Gd , ^{158}Gd происходят неравномерно по радиусу таблетки, что объясняет радиальный профиль относительного выгорания двух видов топлива;

зависимость трансмутации ^{155}Gd , ^{157}Gd от выгорания топлива такова, что уже при выгорании 1,3 МВт·сут/кг их относительная доля (средняя по радиусу) составляет 5 и 1% соответственно, при выгорании 6,4 МВт·сут/кг — 2 и 0,3% соответственно (исходные значения 14,8 и 15,65% соответственно). Таким образом, наличие гадолиния в топливе сказывается только на начальном этапе облучения.

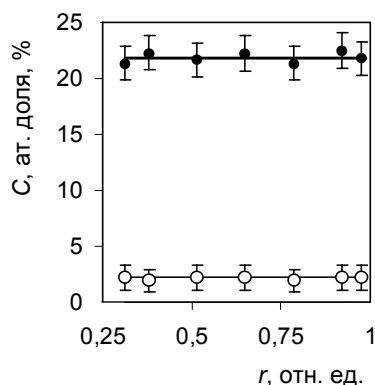
Изменений в относительном содержании и радиальном распределении ^{154}Gd , ^{160}Gd после облучения не обнаружено (рис. 7).



Р и с. 5. Радиальное распределение выгорания в твэлах ТВС ЕК6393 ВВЭР-1000 без гадолиния (□) и с гадолинием (●)



Р и с. 6. Радиальное распределение $^{155,157}\text{Gd}$ (a), $^{156,158}\text{Gd}$ (б): 1, 2 — исходное; □, ○ — 1,3 МВт·сут/кг; ■, ● — 6,4 МВт·сут/кг



Р и с. 7. Исходное (—) и после облучения в МИР до выгорания 6,4 МВт·сут/кг радиальное распределение ^{154}Gd (○) и ^{160}Gd (●) в экспериментальных ТВЭлах

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Щеглов А.С., Сидоренко В.Д., Проселков В.Н. и др. Образование и развитие поверхностного слоя в топливном сердечнике ВВЭР-440. — Атомная энергия, 1996, т. 80, вып. 3, с. 221—223.
2. Крюков Ф.Н., Лядов Г.Д., Никитин О.Н. Применение рентгеноспектрального микроанализа для оценки состояния топлива и ТВЭлов реакторов ВВЭР. — В сб.: VII Рос. конф. по реакторному материаловедению. Т. 2, ч. 4. ТВС, ТВЭЛЫ и циркониевые материалы для ядерных реакторов. Димитровград, 8—12 сентября 2003 г. НИИАР, 2004, с. 135—153.
3. Крюков Ф.Н., Лядов Г.Д., Никитин О.Н., Четвериков А.П. Применение рентгеноспектрального микроанализа для определения локального выгорания топлива реакторов ВВЭР. — В кн.: Сборник трудов. Димитровград, 2003, вып. 4, с. 3—13.
4. Крюков Ф.Н., Никитин О.Н., Кашкиров С.П. Аналитический комплекс на основе рентгеноспектрального микроанализатора MAP-4 для исследования облученных материалов. — Изв. РАН, сер. Физическая, 2004, т. 68, № 9, с. 1349—1351.
5. Крюков Ф.Н., Лядов Г.Д., Никитин О.Н., Четвериков А.П. Результаты исследования накопления и радиального распределения плутония в топливе реакторов ВВЭР. — В кн.: Сборник трудов. Димитровград, 2005, вып. 1, с. 3—13.
6. Папин Б.Е., Крюков Ф.Н., Кузьмин С.В. и др. Количественный элементный анализ реакторных материалов методами лазерной масс-спектрометрии: Препринт НИИАР-12 (815), 1991.

Поступила в Редакцию 20.07.05

УДК 621.039.562

МЕТОДИКА РАСЧЕТА И АНАЛИЗ ПРИМЕНЕНИЯ ГРАНУЛИРОВАННЫХ ПОГЛОТИТЕЛЕЙ В ВВЭР

Альдавахра С., Савандер В.И., Белоусов Н.И. (МИФИ)

Основные направления совершенствования топливных циклов реакторов с водой под давлением — сокращение объема отработавшего топлива и увеличение коэффициента использования установленной мощности (КИУМ), что достигается повышением обогащения топлива подпитки [1]. Действительно, с повышением обогащения увеличивается выгорание топлива, что ведет к снижению расхода ТВС на подпитку при работе реактора на мощности. Повышение КИУМ достигается в том случае, если возрастает кампания реактора, т.е. длительность работы без перегрузки, что связано с увеличением запаса реактивности на одну кампанию.

Избыточная реактивность в реакторах с водой под давлением компенсируется двумя способами. Традиционный способ жидкостного регулирования основан на растворении борного поглотителя в теплоносителе. В этом случае поглотитель размещается равномерно в активной зоне и является регулируемым. Запас реактивности, компенсируемый жидкостной системой регулирования, ограничен как технологическими факторами, так и физическими. К физическим факторам относятся