

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Merwin A., Williamson M., Willit J., Chidambaram D. Review — metallic lithium and the reduction of actinide oxides. — J. Electrochem. Soc., 2017, v. 164, № 8, p. H5236—H5246.
2. Mullabaev A., Tkacheva O., Shishkin V. e.a. Properties of the LiCl—KCl—Li₂O system as operating medium for pyro-chemical reprocessing of spent nuclear fuel. — J. Nucl. Mater., 2018, v. 500, p. 235—241.
3. Nikolaev A.Yu., Suzdaltsev A.V., Zaikov Y.P. High temperature corrosion of ZrN powder in molten LiCl with additions of PbCl₂, KCl, Li₂O, H₂O, and LiOH. — J. Electrochem. Soc., 2019, v. 166, № 6, p. C147—C152.
4. Akimov D.V., Dyachenko A.N., Egorov N.B., Zhuravlev N.A. Separation of rare earth elements by zone recrystallization. — Mater. Sci. Engng, 2016, v. 112, p. 012014.
5. Wan H., Xu B., Yang B. e.a. The impurities distribution and purification efficiency of high-purity aluminum preparation by zone melting in vacuum. — Vacuum, 2020, v. 171, p. 108839.
6. Шишкин В.Ю., Митяев В.С. Очистка галогенидов щелочных металлов методом зонной плавки. — Изв. АН СССР. Неорг. материалы, 1982, № 11, с. 1917—1918.

Поступила 20.04.20

В окончательной редакции 29.10.21

УДК 621.039.54

РАДИОМЕТРИЧЕСКИЙ СПОСОБ ОЦЕНКИ ВЫГОРАНИЯ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА УСТАНОВКИ «РОМАШКА»

Волкович А.Г., Иванов О.П., Потапов В.Н., Смирский Ю.Н., Степалин И.А., Степанов А.В.
(НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)
e-mail: ivanov_op@nrcki.ru

Отработавшее ядерное топливо ядерных энергетических установок после выдержки отправляют на перерабатывающие предприятия. В соответствии с нормами обращения с ядерными материалами отправляющая сторона обязана предоставлять информацию о содержании в нем ²³⁵U. Остаточное количество обогащенного урана можно оценить по количеству выгоревшего топлива за период эксплуатации. Количество выгоревшего топлива можно определить двумя способами: по выделяемой тепловой энергии работающего реактора при наличии таких данных или измерением активности продуктов деления, в частности, ¹³⁷Cs [1, 2]. Эти подходы в определении выгоревшего топлива в настоящей статье показаны на примере топлива ядерной установки «Ромашка» [3].

Установка «Ромашка» представляет собой реактор размером 641×1250 мм, в котором в едином блоке осуществлялось преобразование выделяемой теплоты в электроэнергию. Часть теплоты от активной зоны передается преобразователю напрямую, оставшееся тепло сбрасывается через холодильник-излучатель, окружающий реактор. Реактор был запущен 14 августа 1964 г. и проработал в непрерывном режиме 625 сут на мощности 40 кВт до полного останова в 1966 г.

В работе реактора использовались 11 одинаковых ТВС, которые представляли собой графитовую кассету диаметром 249 мм с крышкой и тепловыделяющие пластины из дикарида урана, обогащенного ²³⁵U до 90%. Средняя масса ²³⁵U в одной ТВС на время пуска реактора составляла 4460,4 г. Общий вид установки и ТВС показаны на рис. 1. С 1966 по 2021 г. ТВС находились на выдержке. Все 11 ТВС хранили в одинаковых по габаритам контейнерах.

Оценка массы выгоревшего топлива. Приведенные параметры режима работы реактора позволяют оценить массу выгоревшего топлива. После непрерывной работы в течение $T_0 = 625$ сут на мощности $W = 40$ кВт массу выгоревшего топлива $M_{\text{выг}}$ можно вычислить по формуле



Р и с. 1. Общий вид установки «Ромашка» и ТВС реактора со снятой крышкой [3]

$$M_{\text{выг}} = WT_0 A / (11 \epsilon_d N_A),$$

где A — атомная масса ^{235}U , а.е.м.; $\epsilon_d = 202,7$ МэВ — энергия, выделяемая в процессе одного деления ядра урана [4]; N_A — число Авогадро.

В пересчете на одну ТВС средняя масса выгоревшего топлива составит $m_{\text{выг}} = M_{\text{выг}}/n_{\text{ТВС}}$, где $n_{\text{ТВС}} = 11$ — число ТВС реактора, т.е. $m_{\text{выг}} = 2,48$ г. Эта оценка определена для энергии $\epsilon_d = 193,1$ МэВ, поскольку исключена энергия, уносимая антинейтрино, в силу отсутствия их вклада в тепловыделение.

Другой способ оценки массы выгоревшего топлива ТВС основан на определении активности ^{137}Cs радиометрическим методом. Этот изотоп обладает большим периодом полураспада $T_{1/2}$ 30,07 года и образуется при делении родительского ядра ^{235}U . В радиометрических измерениях активность ^{137}Cs определяется по скорости счета в пике полного поглощения энергией 662 кэВ по выражению

$$n = C_k A_{\text{Cs}},$$

где C_k — коэффициент пропорциональности между скоростью счета в пике полного поглощения и активностью A_{Cs} .

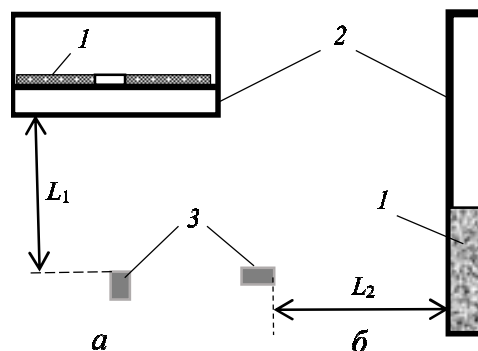
Формула для расчета массы выгоревшего ^{235}U по активности ^{137}Cs может быть представлена в виде

$$m_{\text{выг}} = \frac{n A \exp[\lambda(t_b + T_0)]}{C_k \lambda Y N_A [\exp(\lambda T_0) - 1]}, \quad (1)$$

где $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$ — постоянная распада ^{137}Cs , с^{-1} ; t_b — время выдержки топлива после облучения в течение времени T_0 ; $Y = 0,0622$ — выход ^{137}Cs на деление ядра ^{235}U .

Таким образом, если с помощью спектрометрического детектора определить скорость счета в пике полного поглощения, то по формуле (1) можно оценить количество выгоревшего топлива.

Измерение излучения облученного топлива. Контейнеры для хранения ТВС были изготовлены из коррозионно-стойкой стали и имели одинаковые габариты. Внутри контейнера находилась ТВС, элементы топлива которой имели форму сегментов и колец (см. рис. 1). Спектрометрические измерения проводили в геометрии, показанной на рис. 2, полупро-



Р и с. 2. Схема измерения спектра излучения ТВС в контейнере (а) и пенале (б): 1 — ТВС; 2 — контейнер для хранения ТВС; 3 — детектор (расстояние между детектором и образцом с топливом L_1 150 см, L_2 400 см)

водниковым детектором CdZnTe размером $10 \times 10 \times 5$ мм. По результатам измерений определяли скорость счета в пике полного поглощения по линии 662 кэВ для каждой геометрии измерения.

После определения спектра излучения ТВС дробили и пересыпали в пеналы транспортно-упаковочного комплекта. Пенал представляет собой цилиндр из коррозионно-стойкой стали с толщиной стенок 0,3 см. В качестве меры дополнительного контроля также был определен спектр излучения ТВС пеналов.

Радиометрический способ определения массы выгоревшего топлива. Для расчета массы выгоревшего ^{235}U по формуле (1) необходима информация о полных калибровочных коэффициентах. Поскольку в указанной схеме измерения объекты имели сложную геометрию, в расчетах использовали программный комплекс MCNP4, реализующий метод расчета Монте-Карло. При расчете в программе задавали геометрические параметры топливных элементов и контейнеров, в которых они хранились.

Полный калибровочный коэффициент определяется как произведение модельного калибровочного коэффициента на коэффициент коррекции, учитывающий несоответствие модели и реального эксперимента. Калибровочный коэффициент определялся как скорость счета в пике полного поглощения γ -квантов энергией 662 кэВ от распределенного источника единичной активности. По форме эти источники соответствовали ТВС и пеналу (см. рис. 2). Плотность образца в контейнере оценивали в соответствии с массовыми характеристиками топливных эле-

ментов, в пенале — путем определения массы и размера его заполненной части.

Коэффициент коррекции, в свою очередь, учитывает различные приближения, используемые в расчетной модели. В основном это связано с отсутствием полной информации относительно конструктивных особенностей детектора — материала кристалла, его характеристик, наличия мертвых зон чувствительности и др. Это несоответствие может быть компенсировано дополнительными измерениями спектра излучения для случая известной геометрии с точечным источником определенной активности, например, эталонным источником ^{137}Cs . Для этих целей измеряли спектр излучения эталонного источника ^{137}Cs на расстоянии 10 и 30 см. Аналогичная геометрия использовалась в программе MCNP4 для расчета скорости счета в пике полного поглощения. В результате полный и модельный калибровочные коэффициенты отличались в среднем на 15%, поэтому учет корректирующего коэффициента являлся обязательным.

Был измерен спектр излучения четырех ТВС, которые располагались в разных местах активной зоны. Все 11 ТВС были последовательно пронумерованы, из них для оценки выгорания выбраны ТВС с номерами 2, 7, 9 и 11.

Как уже отмечалось, после измерения спектра излучения ТВС в контейнерах их содержимое дробилось на части и пересыпалось в пеналы для транспортировки, им присваивались те же номера. Контейнер 2 был перегружен в транспортный пенал до измерений по схеме *a* на рис. 2, поэтому был определен спектр излучения только трех контейнеров 7, 9, 11 и четырех пеналов 2, 7, 9, 11. По результатам измерений скорость счета в пике полного поглощения в контейнерах составила 1500—2000 с⁻¹, в пеналах — 130—220 с⁻¹, активность ^{137}Cs в указанных четырех ТВС варьировалась в диапазоне 6—10 ГБк. Эти данные позволили по формуле (1) рассчитать массу выгоревшего топлива по двум вариантам геометрии измерений с погрешностью менее 7%, что соответствует оценке количества ^{235}U с погрешностью 0,004% (см. таблицу). Следует отметить, что наблюдается некоторое отличие между результатами, полученными в разных геометриях. Это обусловлено большей методической ошибкой при измерении

спектра излучения в пеналах и связано, в основном, с погрешностью определения плотности топлива после его дробления и пересыпания в пеналы.

Оцененная масса выгоревшего топлива по данным измерения активности ^{137}Cs в контейнерах и пеналах, г

Номер образца	Контейнер	Пенал
2	—	1,60 ± 0,12
7	2,93 ± 0,15	3,11 ± 0,16
9	2,17 ± 0,11	2,47 ± 0,13
11	2,25 ± 0,12	1,84 ± 0,10

Выводы. Прямые спектрометрические измерения топливных элементов и компьютерное моделирование в программном комплексе MCNP4 позволили определить активность цезия исследуемых образцов, что непосредственно связано с количеством выгоревшего топлива. Измерения проводили в двух геометриях. Отличие активности, следовательно, и массы выгоревшего топлива для соответствующих пар контейнер—пенал объясняется тем, что ТВС дробились, поэтому в пенале образовывалась сильно неоднородная масса, что не позволяло определять точную плотность образца.

Таким образом, через определение активности ^{137}Cs была найдена масса топлива, выгоревшего за одну кампанию 625 сут, с последующей выдержкой 55 лет. Средняя масса выгоревшего топлива по измерениям в контейнерах соответствовала 2,45 г, что совпадает со средней 2,48 г, рассчитанной исходя из известной общей тепловой энергии реактора.

Авторы выражают благодарность Р.Х. Газину за оказанную помощь при проведении данной работы.

Работа выполнена при поддержке НИЦ «Курчатовский институт» (приказ № 1808 от 14.08.2019).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Райлли Д., Энслин Н., Смит Х. мл., Крайнер С. Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов. М.: БИНОМ, 2000. 703 с.
2. Потапов В.Н., Волкович А.Г., Смирский Ю.Н. Спектрометрический способ оценки характеристик отработавшего ядерного топлива. — Атомная энергия, 2009, т. 106, вып. 5, с. 273—277.

3. Кухаркин Н.Е., Кулыгин В.М., Павшук В.А. Курчатовский институт воздушно-космическому флоту страны. Опередившие время. М., НИЦ «Курчатовский институт», 2018. 159 с.

4. Горбачев В.М., Замятин Ю.С., Лбов А.А. Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер. Справочник. М.: Атомиздат, 1976. 462 с.

Поступила в Редакцию 22.07.21

УДК 621.039.31

ПОСТРОЕНИЕ ТЕОРИИ ИДЕАЛЬНОГО МНОГОКОМПОНЕНТНОГО РАЗДЕЛИТЕЛЬНОГО КАСКАДА

Александров О.Е. (Уральский федеральный ун-т, г. Екатеринбург)

e-mail: aleks.o.e@mail.ru

Эффективное разделение многокомпонентных смесей требует теоретического осмысления и оптимальных способов его организации [1, 2]. Важной частью организации процесса разделения является построение каскада, что обусловлено сравнительно малым обогащением, которое может быть достигнуто на единичном элементе. Для получения требуемой степени обогащения смесь необходимо многократно подвергнуть разделению. Многократное разделение реализуется соединением нескольких разделительных устройств в каскад. Основной задачей построения каскада является достижение максимальной эффективности — получение необходимого обогащения с помощью минимального числа разделительных элементов.

Цель настоящей статьи — разработка теории идеального несмешивающего каскада для разделения многокомпонентных смесей.

Современное состояние теории каскадов.

В основном рассматривается классическая схема бинарного противоточного каскада с дополнительным отбором посредством ее применения для разделения смеси трех и более изотопов [3—5]. Это обусловлено тем, что разделение многокомпонентных смесей проводится с помощью устройств бинарного разделения, например, газовых центрифуг, применяемых в бинарных разделительных каскадах для обогащения урана.

Схемы и теории многокомпонентных каскадов почти не рассматриваются. Исследования показали, что разделение многокомпонентных смесей в устройствах бинарного разделения, газовых центрифугах и бинарных противоточных каскадах не способно обогатить смесь трех и более изотопов до произвольной concentra-

ции по избранному изотопу. Для получения произвольного обогащения эти устройства необходимо снабжать дополнительными отборами, т.е. превращать их из бинарных разделительных устройств — один вход для питания и два выхода для отбора в многокомпонентные разделительные устройства — один вход и три или более выхода. В этой ситуации логичным представляется переход к схемам соединения многокомпонентных разделительных устройств, а также обобщение для них теории бинарных каскадов. Такой подход все еще остается малоизученным [6, 7]. Более того, в некоторых работах высказывается мнение, что для многокомпонентного разделения идеальный каскад невозможен [8].

Построение элементарной теории противоточного каскада для многокомпонентного разделения и поиск идеального несмешивающего каскада являются, таким образом, актуальной задачей. Несмешивающий каскад является наилучшим согласно закону сохранения вещества. Если внутри каскада не смешиваются разделенные компоненты, следовательно, нет потерь работы разделения и каждый элемент используется наилучшим образом.

Численные расчеты бинарных каскадов показали, что несмешивающий каскад при определенных условиях оказывается менее эффективным с точки зрения, например, минимизации числа разделительных элементов в каскаде, чем смешивающий оптимальный каскад [9]. Это следствие выбора метода ступенчатой аппроксимации идеального каскада элементами с коэффициентом разделения значительно больше 1 (около 5). При расчете оптимального каскада предполагается изменение характеристик разде-