

**ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ**

УДК 624.04 : 621.375

**СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ ИСПАРЕНИЙ ОБРАЗЦОВ
СМЕШАННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂,
НАГРЕТЫХ ДО ТЕМПЕРАТУРЫ ВЫШЕ 2000°С**

© 2012 г. М. Т. Жараспаев, Д. С. Ким*, Р. Е. Жумагулова**

*Казахский национальный технический университет им. К.И. Сатпаева
Республика Казахстан, 050013, Алматы, ул. Сатпаева, 22*

**Институт ядерной физики Национального ядерного центра Республики Казахстан
Республика Казахстан, 050032, Алматы, ул. Ибрагимова, 1*

***Международная образовательная корпорация
Республика Казахстан, 050043, Алматы, ул. Рыскулбекова, 28*

Поступила в редакцию 31.08.2011 г.

Описаны результаты спектрометрического анализа газового облака, образующегося над нагретыми до температуры >2000°С образцами смешанного уран-плутониевого топлива для реакторов. Нагрев образцов осуществлялся с помощью лазерной установки, позволяющей проводить эксперименты над ядерным топливом вне реактора. Полученные результаты позволят эмпирически прогнозировать изотопный состав залповых выбросов из активной зоны реакторов мощностью до 1000 МВт, работающих на смешанном топливе ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂, при авариях.

Как показывает мировой опыт, при тяжелых ядерных авариях из активной зоны реактора происходит выброс большого количества продуктов деления высокоактивных топливных материалов. Некоторая часть выделившейся активности удерживается в первом контуре реактора, а остальная попадет в защитную оболочку, и при ее разгерметизации произойдет залповый выброс радиоактивных компонентов в окружающую среду.

Очевидно, что уровни радиоактивного облучения человека, а также качественные и количественные характеристики доз, получаемых персоналом реактора и аварийно-спасательных формирований при ликвидации последствий аварии, определяются видом ядерного топлива, используемого в установке.

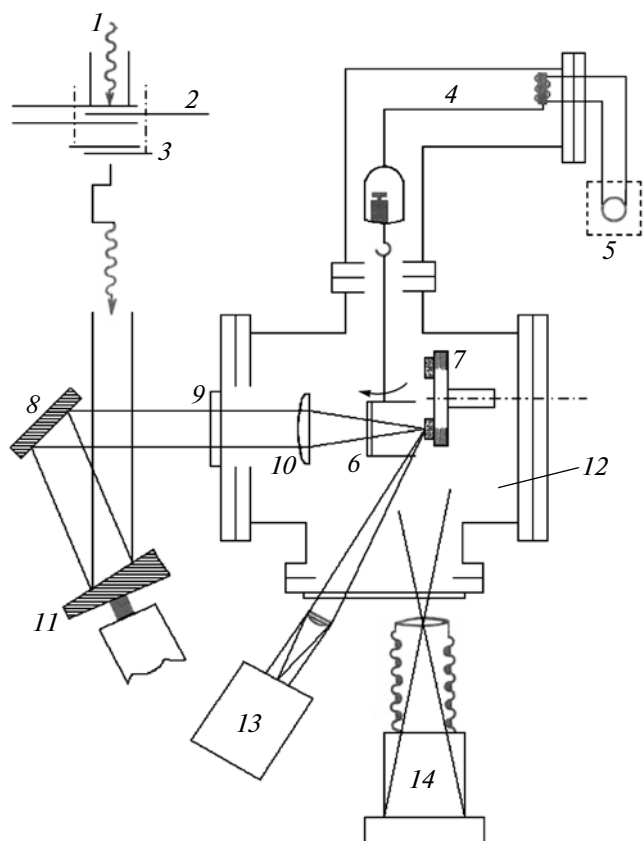
Для того чтобы определить предполагаемый уровень облучения личного состава аварийно-спасательных формирований при ликвидации последствий аварии на реакторе, работающем на смешанном топливе, необходимо, прежде всего, установить, какие продукты деления образуются в процессе его использования.

Изотопный состав аварийных выбросов из активной зоны реактора, работающего на смеси урана и плутония, можно прогнозировать, исходя из имеющихся данных о физических количествах радиоактивных материалов, входящих в состав топливной системы наиболее мощных ядерных установок. Исходные количества элементов ядерного топлива для энергетического реактора мощностью 1000 МВт представлены в табл. 1 [1, 2].

Чтобы искусственно создать аварийные условия гипотетического разрушения активной зоны, необходимо нагреть образец уран-плутониевого оксида до температуры жидкого топлива (свыше 2000°С). Для нагрева образцов топлива использовалась установка с лазерным испарением, принципиальная схема которой показана на рисунке. Лазерный пучок *I*, источником которого служат слабоионизованный тлеющий электрический разряд и нагретый до состояния плазмы диоксид уг-

Таблица 1. Исходное количество актиноидов в ядерном реакторе мощностью 1000 МВт, работающем на смешанном уран-плутониевом топливе ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂

Изотоп	Количество актиноидов в активной зоне реактора, кг
²³⁸ U	42300
²³⁷ Np	2
²³⁸ Pu	85
²³⁹ Pu	7327
²⁴⁰ Pu	2560
²⁴¹ Pu	415
²⁴² Pu	188
²⁴¹ Am	11
²⁴³ Am	6
²⁴⁴ Cm	0.7
²⁴² Cm	0.4
Итого	>50 т



Принципиальная схема установки для лазерного нагрева образцов ядерного топлива до температуры свыше 2000°C . 1 – пучок газового лазера с CO_2 ; 2 – плазменный прерыватель; 3 – затвор; 4 – вакуумные весы; 5 – компенсационная цепь; 6 – баллистический коллектор с окном для пучка; 7 – поворотный стол для мишеней; 8 – неподвижное зеркало; 9 – окно для пучка; 10 – линза; 11 – подвижное зеркало; 12 – вакуумная камера; 13 – быстродействующий микропирометр для измерения температуры в фокусном пятне и времени испарения; 14 – камера для наблюдения за струей газа.

лерода (CO_2), испускается в инфракрасном диапазоне с длиной волны $10.5 \mu\text{м}$ и мощностью $\sim 200 \text{ МВт}$. Для уменьшения амплитуды импульса, подаваемого на электроды плазменных инжекторов поверхностного разряда, при сохранении плотности и объема создаваемой ими плазмы используется плазменный прерыватель тока 2. Он содержит источник импульса тока, подключенный к двум протяженным, разделенным изолятором электродам, которые вместе с изолятором образуют вакуумный межэлектродный промежуток; нагрузку в виде вакуумного или плазменного диода, подключенную к электродам; а также, по меньшей мере, один плазменный инжектор, расположенный на одном из электродов.

Для обеспечения возможности изменения угла фокусирования лазерного пучка на мишенном

образце ядерного топлива в зависимости от целей и условий эксперимента пучок 1, проходя через задвижку 3, поступает в вакуумную камеру 12 не напрямую, а претерпевая двойное отражение от системы зеркал 8 и 11. Плотность пучка преломленных лучей, поступающих через окно 9 в вакуумную камеру 12, увеличивается с помощью собирающей линзы 10. Ее фокусное расстояние и оптическая сила могут изменяться в зависимости от того, до какой температуры требуется нагреть образец ядерного топлива, зафиксированный на поворотном столе 7. Образец через баллистический коллектор 6 локально нагревается пучком до температуры свыше 2000°C до жидкого состояния. За счет вращения подвижного зеркала 11 фокус лазера во время действия импульса равномерно перемещается по круговой траектории на поверхности образца, что позволяет испарять относительно большие количества жидкого материала мишени.

В результате испарения нагретого до жидкого состояния образца в вакуумной камере 12 происходит его термическое разложение и абсорбция газов. Для измерения газового давления при испарении ядерного топлива при температуре свыше 2000°C , скорости испарения и для определения газопроницаемости в установке используются точные вакуумные термовесы 4 с кварцевой спиралью чувствительностью $\sim 1 \text{ мг/мм}$ (деформация спирали регистрируется с помощью катетометра с точностью до 0.01 мм). Поскольку вакуумные весы 4 работают от источника тока, имеющего параллельное подключение к лазер-генератору, возникает уравнивающий ток (к одному генератору – реактивный ток с перенасыщенным возбуждением, а к другому – емкостный ток). Для уменьшения возбуждения генератора с реактивной нагрузкой и увеличения возбуждения генератора с емкостной нагрузкой, так чтобы уравнивающий ток стал равным 0, применяется компенсационная цепь 5.

Целью экспериментов по нагреву образцов ядерного топлива до температуры свыше 2000°C является определение следующих параметров:

- времени и площади испарения;
- массы образовавшегося газа;
- момента выхода струи газа, который измеряется по амплитуде отклонения маятникового коллектора, установленного в камере 14 для наблюдения за струей газа;
- спектрального теплового излучения поверхности испарения, которое измеряется быстродействующим микропирометром 13, позволяющим определить температуру испарения образца путем измерения его спектральной эмиссионной способности.

В случаях, когда необходимо определить не мощность теплового излучения, а радиоизотоп-

Таблица 2. Объемные активности радионуклидов, содержащихся в испарениях топлива ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂ при температуре 2000°C

Нуклид	Период полураспада	ДОО (допустимая объемная активность), Бк/м ³ [3]	Измеренная объемная активность нуклида, 10 ¹² Бк/м ³	Активность нуклида, % к общей активности
¹³³ Xe	5.3 сут	160000	1.6	0.16
¹³⁵ Xe	9.2 ч	5180	1.33	0.14
¹³⁸ Xe	14 мин	7770	1.33	0.14
^{85m} Kr	4.5 ч	2146	0.32	0.03
⁸⁷ Kr	76 мин	14800	0.53	0.05
⁸⁸ Kr	171 мин	2997	0.73	0.07
⁸⁹ Kr	3 мин	1110	1.01	0.1
²³⁸ Pu	87.7 лет	0.53	0.002	0.0003
²³⁹ Pu	24100 лет	0.53	0.024	0.002
²⁴⁰ Pu	6540 лет	0.53	0.008	0.0009
²⁴¹ Pu	14.4 лет	50	0.013	0.001
²⁴² Pu	376000 лет	0.57	0.007	0.0007
¹³² Te	78 ч	40	0.001	0.0001
¹³¹ I	8.05 сут	7.3	0.003	0.0003
¹³² I	2.3 ч	148	0.004	0.0004
¹³³ I	21 ч	20.35	0.001	0
¹³⁴ I	52 мин	296	0.001	0
¹³⁵ I	6.6 ч	66.6	0.001	0
⁹⁰ Sr	9.5 ч	318.2	0.001	0.0001
¹⁴⁰ Ba	13 сут	22	0.001	0.0001
⁵⁷ Co	271 сут	8500	0.009	0.0009
⁶⁵ Zn	244 сут	2800	0.004	0.0004
¹⁴⁷ Nd	11 сут	4000	0.004	0.0004
¹⁴⁷ Pm	2.62 года	1700	0.003	0.0003
¹⁴⁵ Sm	340 сут	5300	0.007	0.0007
²³⁵ U	704000000 лет	2.9	0.019	0.002
²³⁸ U	4470000000 лет	2.4	0.019	0.002
²³⁷ Np	2140000 лет	0.38	0.001	0.0001
²⁴² Cm	163 сут	1.7	0.002	0.0002
Суммарная объемная активность			6.985 · 10 ¹² Бк	

ный состав газа, образовавшегося в результате испарения образца ядерного топлива, вместо микропирометра *I3* можно использовать спектрометр.

Данная установка отличается от аналогов тем, что перед подачей лазерного луча в вакуумную камеру его пропускают через систему двух зеркал, одно из которых подвижное, и собирающую лин-

Таблица 3. Расчетные активности радионуклидов, ожидаемые при испарениях топлива ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂ при температуре 2000°С в активной зоне реактора мощностью 1000 МВт с топливной загрузкой 50 т

Нуклид	Период полураспада	Рассчитанная активность нуклида, 10 ¹² Бк
¹³³ Xe	5.3 сут	61 946
¹³⁵ Xe	9.2 ч	51 495
¹³⁸ Xe	14 мин	51 495
^{85m} Kr	4.5 ч	12 358
⁸⁷ Kr	76 мин	20 598
⁸⁸ Kr	171 мин	28 322
⁸⁹ Kr	3 мин	39 136
²³⁸ Pu	87.7 лет	107
²³⁹ Pu	24 100 лет	928
²⁴⁰ Pu	6540 лет	324
²⁴¹ Pu	14.4 лет	495
²⁴² Pu	376 000 лет	256
¹³² Te	78 ч	51
¹³¹ I	8.05 сут	113
¹³² I	2.3 ч	170
¹³³ I	21 ч	31
¹³⁴ I	52 мин	31
¹³⁵ I	6.6 ч	26
⁹⁰ Sr	9.5 ч	46
¹⁴⁰ Ba	13 сут	51.5
⁵⁷ Co	271 сут	352
⁶⁵ Zn	244 сут	139
¹⁴⁷ Nd	11 сут	170
¹⁴⁷ Pm	2.62 года	117
¹⁴⁵ Sm	340 сут	280
²³⁵ U	704 000 000 лет	737.6
²³⁸ U	4470 000 000 лет	737.6
²³⁷ Np	2 140 000 лет	51.5
²⁴² Cm	163 сут	70
Суммарная активность		270.634 · 10 ¹⁵ Бк

зу. Это позволяет более равномерно нагревать образцы ядерного топлива, что в свою очередь снижает погрешность измерения данных термического равновесия, основанного на определении скорости испарения материала мишени.

Нагрев лазерным лучом до температуры свыше 2000°С является наиболее приемлемым способом испарения образцов. Определяя скорость испарения материала мишени и давления пара, можно получить данные термического равновесия.

Нагрев электронным лучом использовать нельзя, так как взаимодействие электронного луча с га-

зовым облаком над мишенью влияет как на скорость ее испарения, так и на реакционное давление газового облака, что искажает результаты измерения температуры. Кроме того, большая глубина проникновения электронного луча приводит к неопределенному взрывоподобному испарению.

Температура нагрева образца выбрана исходя из того, что на повышение газового давления в облученном ядерном топливе, приводящее к разрушению топливных стержней и сборок, главным образом влияют как газообразные продукты деления в температурной области ниже точки плавления ($\approx 1800^\circ\text{C}$), так и сам топливный материал – в температурной области выше 2000°С [2].

Эксперименты с образцами уран-плутониевого оксида в условиях, приближенных к аварийным, проводились главным образом для того, чтобы определить изотопный состав испарений смешанного топлива.

В табл. 2 приведены результаты спектрометрического анализа испарений топлива ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂ при температуре 2000°С.

Приведенные в табл. 2 значения измеренных объемных активностей нуклидов получены после обработки прямых показаний спектрометра. Единица измерения прямых показаний спектрометра – беккерель на образец. Поскольку суммарная масса образцов ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂ составила 1 кг, объемные активности нуклидов выведены с учетом плотности воздуха ($\rho = 1.225 \text{ кг/м}^3$).

Расчет ожидаемой активности A продуктов деления ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂ активной зоны реактора мощностью 1000 МВт с топливной загрузкой 50 т можно провести по следующей формуле¹

$$A = 3.1 \cdot 10^{13} P A_i (1 - e^{-\lambda_i T_{\text{эфф}}})$$

Здесь P , МВт – мощность реактора; A_i , Бк – измеренная объемная активность i -го нуклида; λ_i , с⁻¹ – постоянная распада i -го нуклида; $3.1 \cdot 10^{13}$ Бк · МВт – коэффициент пересчета; $T_{\text{эфф}}$, с – эффективное время работы реактора, эквивалентное времени нагрева топлива:

$$T_{\text{эфф}} = VM / (1.4 \cdot 10^{-8} W),$$

где V , МВт · сут/т – среднее выгорание смешанного топлива ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂ в активной зоне ($V = 50\,000 \text{ МВт} \cdot \text{сут/т}$ для реактора мощностью 1000 МВт); M , т – масса ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂ в активной зоне; W , МВт – мощность реактора.

Активности радионуклидов, ожидаемые в испарениях топлива ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂ при температуре >2000°С, рассчитанные по данной методике, приведены в табл. 3.

¹ Методика расчета “Оценка радиационных последствий аварий на исследовательских реакторах” предоставлена Институтом атомной энергии им. И.В. Курчатова.

Основываясь на полученных результатах, можно гипотетически оценить суммарную активность аварийных выбросов из активной зоны реактора мощностью 1000 МВт, работающего на смешанном уран-плутониевом топливе ($U_{0.80}Pu_{0.20}$)O₂. Она составит $\sim 270 \cdot 10^{15}$ Бк.

Анализ данных табл. 2 и 3 показывает, что радиоизотопный состав аварийных выделений из активной зоны реактора на смешанном топливе отличается высоким содержанием устойчивого соединения PuO₂, а также большим количеством чистого плутония ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴²Pu, долгоживущего и наиболее радиотоксичного по

сравнению с остальными составляющими ожидаемого выброса.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. http://ru.wikipedia.org/wiki/%D0%F0%ED%E5_%F2%E%EF%E8%E2%E
2. <http://b-energy.ru/biblioteka/bezopasnost-aes-ekologiya/345-avarii-reaktora-s-razrusheniem-aktivnoi-zony.html>
3. НРБ-99 СП 2.6.Л.758-99. Нормы радиационной безопасности. Издание официальное. Введ. 1999-01-01. Алматы: Агентство по делам здравоохранения РК, 1999.