

# МЕТОД РАСЧЕТА ЧИСЛА ДЕЛЕНИЙ В ВОДНОМ ИМПУЛЬСНОМ РЕАКТОРЕ ПО ВЫХОДУ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ

*А. В. Шуркаев, А. Д. Авдеев, А. Р. Дягель, С. П. Котков, С. О. Табаков, Д. А. Юнин*

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров Нижегородской обл.

## Введение

Водный импульсный ядерный реактор (ИЯР) ВИР-2М относится к классу аperiодических импульсных реакторов самогашающегося действия «нулевой мощности» и представляет собой растворный вариант ИЯР, отличающийся простотой изготовления и эксплуатации, а также малым количеством делящегося материала, используемого в качестве топлива (в реакторе ВИР-2М – всего около 7 кг урана) [1, 2]. Особенности конструкции и эксплуатации реакторов типа ВИР [1] определяются тем, что в них ядерное топливо используется в виде раствора соли – уранилсульфата  $UO_2SO_4$  в легкой воде. Топливный раствор (ТР) постоянно находится в герметичном корпусе, придающем топливной композиции компактную геометрическую форму, необходимую для получения интенсивных потоков нейтронов и гамма-квантов, и способном длительное время выдерживать значительные динамические нагрузки, которые возникают при работе реактора в режиме генерации мощных импульсов.

Реактор ВИР-2М может работать в двух режимах – импульсном и статическом.

Одной из важнейших характеристик любого реактора является энергия, выделенная в активной зоне (АЗ) за время работы реактора на мощности. Общепринятое название такой энергии – энерговыделение. Известно, что при делении одного ядра урана выделяется энергия ~200 МэВ [3]. Учитывая, что  $1 \text{ эВ} = 1,602 \cdot 10^{-19} \text{ Дж}$ , получается, что выделившейся энергии в 1 МДж соответствует  $3,1 \cdot 10^{16}$  делений. Таким образом, энерговыделение на реакторе ВИР-2М (как и на других реакторах) может измеряться, как в джоулях (Дж), так и в количестве делений (дел).

Важность контроля энерговыделения на ИЯР ВИР-2М связана прежде всего с обеспечением безопасной работы установки, а именно с не превышением установленных пределов динамических нагрузок на корпус установки во время генерации импульса.

## Методы определения энерговыделения в АЗ реактора ВИР-2М

Традиционно на ИЯР ВИР-2М применяются следующие методы определения энерговыделения:

- по выходу гремучего газа (ГГ);
- по активационным индикаторам;
- по температуре корпуса АЗ.

## Определение энерговыделения по выходу гремучего газа

Основным методом определения энерговыделения на реакторе ВИР-2М (как и на всех реакторах семейства ВИР) является метод, который базируется на измерении выхода гремучего газа ( $2H_2 + O_2$ ), образующегося вследствие радиолиза воды топливного раствора осколками деления [4]. Энерговыделение  $E$  (в МДж) вычисляется по формуле:

$$E = \frac{V_{\text{гг}}}{G} \frac{\Delta P}{P}, \quad (1)$$

где  $G$  – выход ГГ из ТР на единицу выделенной в АЗ энергии при нормальных условиях (н.у.);  $V_{\text{гг}}$  – объем надтопливного пространства корпуса АЗ реактора ВИР-2М;  $\Delta P$  – разница давления газа в надтопливном пространстве АЗ реактора до и после работы на мощности;  $P = 101,3 \text{ кПа}$  – давление при н.у.

Принималось (как и на всех модификациях реакторов семейства ВИР), что выход ГГ из АЗ реактора ВИР-2М на 1 МДж энерговыделения равен примерно 4,5 нормальных литра (объем газа при н.у.).

К недостаткам этого метода можно отнести следующие факторы:

- неполный выход ГГ из ТР в пусках с малым энерговыделением приводит к занижению реально наработанного энерговыделения;
- не учитывается зависимость давления ГГ от температуры;
- так как сжигание ГГ производят через 20 мин после импульса, то часть радикалов ГГ успевает рекомбинировать;
- величина  $G$  по данным [4] может отличаться на 20 %.

## Определение энерговыделения методом активационных детекторов

Количество делений в АЗ любого реактора можно определить по известному соотношению:

$$N = \Sigma_f V \bar{\Phi}_{\text{АЗ}}, \quad (2)$$

где  $\Sigma_f$  – макроскопическое сечение деления в АЗ,  $\text{м}^{-1}$ ;  $V$  – объем АЗ,  $\text{м}^3$ ;  $\bar{\Phi}_{\text{АЗ}}$  – средний по АЗ флюенс нейтронов,  $\text{м}^{-2}$ .

Методом активационных индикаторов [5] можно измерить флюенс нейтронов утечки ( $\bar{\Phi}$ ) в определенной (калиброванной) точке:

$$\bar{\Phi} = \frac{A}{\sigma}, \quad (3)$$

где  $A$  – активационный интеграл;  $\bar{\sigma}$  – среднее микроскопическое сечение для данного индикатора в калиброванной точке, м<sup>2</sup>.

Полагая, что флюенс нейтронов утечки пропорционален среднему по АЗ флюенсу нейтронов, можно записать:

$$\bar{\Phi}_{АЗ} = k\bar{\Phi}, \quad (4)$$

где  $k$  – коэффициент неравномерности.

Таким образом, соотношение (2) можно переписать в следующем виде:

$$N = \sum_f V k \frac{A}{\sigma}, \quad (5)$$

или

$$E = KA, \quad (6)$$

где  $K$  – коэффициент перевода активационного интеграла в энерговыделение, МДж.

К недостаткам этого метода можно отнести следующие факторы:

- необходимость проведения предварительной калибровки для установления коэффициента  $K$ ;
- непостоянство формы распределения плотности делений по высоте и радиусу АЗ, вызываемое возмущениями от облучаемых образцов, приводит к изменению коэффициента неравномерности  $k$ , а, следовательно, и коэффициента  $K$ , что в итоге приводит к внесению дополнительной погрешности при определении энерговыделения.

### Определение энерговыделения в АЗ по температуре корпуса реактора

Определение энерговыделения в АЗ реактора ВИР-2М осуществляется путем измерения температуры корпуса реактора спустя 20 минут после импульса мощности [3], так как к этому времени устанавливается равновесное состояние теплопередачи от разогретого топливного раствора к корпусу активной зоны и температура корпуса остается некоторое время (~5 минут) стабильной. Затем наступает спад температуры за счет принудительного охлаждения корпуса реактора системой охлаждения или за счет естественной отдачи тепла в окружающее пространство. Этому стабильному (~5 минут) значению температуры соответствует (линейная зависимость) энерговыделение в активной зоне реактора за время импульса.

$$E = K_T T, \quad (7)$$

где  $K_T$  – коэффициент перевода температуры корпуса АЗ в энерговыделение, МДж/°С;  $T$  – температура корпуса АЗ.

Однако это значение энерговыделения имеет лишь характер дополнительной и оперативной информации о энергии произведенного импульса, потому что температура корпуса после импульса зависит не только от энерговыделения, но и от предыстории работы реактора до импульса. Так, на температуру корпуса оказывают влияние следующие факторы: время, прошедшее после предыдущего импульса, продолжительность работы системы принудительного охлаждения корпуса, работа вентиляционной системы в залах установки.

Недостатком этого метода является необходимость проведения предварительной калибровки для установления коэффициента  $K_T$ , а также невозможность применения данного метода в статическом режиме работы ИЯР ВИР-2М.

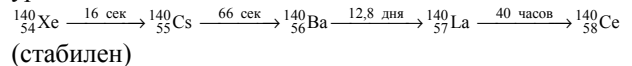
Из анализа выше описанных методов определения энерговыделения можно сделать следующие выводы:

- высокая погрешность определения энерговыделения по выходу ГГ (20 %) не позволяет использовать данный метод для калибровки остальных методов;
- необходим дополнительный метод определения абсолютного энерговыделения, обладающий достаточно низкой погрешностью.

Таким альтернативным методом может стать метод определения числа делений по выходу продуктов деления (ПД).

### Метод расчета числа делений в импульсном реакторе по выходу продуктов деления

Когда ядро делящегося материала расщепляется на два ядра, то образующиеся осколки имеют слишком большое отношение числа нейтронов к числу протонов, чтобы быть устойчивыми. Даже после испускания мгновенных нейтронов отношение числа нейтронов к числу протонов во многих случаях остается вне области устойчивости для данного массового числа. Образовавшиеся ПД радиоактивны и испускают отрицательные  $\beta$ -частицы. Примером является ниже приведенная цепочка распада, содержащая барий и лантан, которая привела к открытию деления урана:



(стабилен)

Очевидно, что соотношение для изменения числа атомов первично образовавшегося продукта деления в импульсе ИЯР ВИР-2М имеет вид:

$$\frac{dN_0(t)}{dt} = -\lambda_0 N_0(t), \quad (8)$$

$$N_0(t_0) = \omega_0 N_0^f, \quad (9)$$

$$\lambda_0 = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}, \quad (10)$$

где  $\lambda_0$  – постоянная распада первичного ПД;  $T_{1/2}$  – период полураспада;  $\omega_0$  – кумулятивный выход пер-

вичного ПД;  $N_0(t)$  – число атомов первичного ПД в момент времени  $t$ ;  $N_0(t_0)$  число атомов первичного ПД в начальный момент времени  $t_0$ ;  $N_0^f$  – число делений в импульсе.

Полагая, что импульс произошел мгновенно, соотношения (8) и (9) можно записать следующим образом:

$$N_0(t) = \omega_0 N_0^f e^{-\lambda_0 t}, \quad (11)$$

В случае  $N$  независимых импульсов (статических пусков) выражение (11) примет вид:

$$N_0(\tau) = \omega_0 \sum_{i=1}^N N_i^f e^{-\lambda_0(\tau-t_i)}, \quad (12)$$

где  $t_i$  – момент времени  $i$ -ого пуска ИЯР,  $\tau$  – момент времени измерения активности ПД. Суммирование числа делений от статических пусков в данном случае предполагается производить путем разбиения делений в статическом пуске на некоторое (в зависимости от периода полураспада ПД) количество импульсных пусков.

Соответственно, измеряемая активность (в момент времени  $\tau$ ) продукта деления после серии  $N$  независимых импульсов будет определяться как:

$$A_0(\tau) = \frac{\lambda_0 \omega_0}{V_{A3}} \sum_{i=1}^N N_i^f e^{-\lambda_0(\tau-t_i)}, \quad (13)$$

где  $V_{A3}$  – объем ТР ИЯР ВИР-2М.

Разделим данное соотношение на общее число делений в реакторе, произошедших за  $N$  импульсов (статик):

$$N^f = \sum_{i=1}^N N_i^f, \quad (14)$$

Получаем соотношение:

$$\frac{A_0(\tau)}{N^f} = \frac{\lambda_0 \omega_0 \sum_{i=1}^N N_i^f e^{-\lambda_0(\tau-t_i)}}{V_{A3} N^f}, \quad (15)$$

Известно, что энерговыделение в активной зоне реактора ВИР-2М пропорционально числу делений:

$$k_i = \frac{N_i^f}{N^f} = \frac{E_i}{E}, \quad (16)$$

где  $E_i$  – энерговыделение, определенное по относительной методике определения энерговыделения, в  $i$ -ом импульсе,  $E$  – сумма энерговыделений за  $N$  импульсов.

Подставляя данное выражение в (15), получим:

$$N_f(\tau) = \frac{A_0(\tau) V_{A3}}{\lambda_0 \omega_0 \sum_{i=1}^N k_i e^{-\lambda_0(\tau-t_i)}}, \quad (17)$$

Поскольку пробы ТР из АЗ реактора ВИР-2М берутся с некоторой периодичностью, число делений

за время между взятиями проб определяется следующим соотношением:

$$N_f(\Delta\tau) = \frac{A_0(\tau^{\text{тек}}) - A_0(\tau^{\text{пред}}) e^{-\lambda_0 \Delta\tau}}{\lambda_0 \omega_0 \sum_{i=1}^N k_i e^{-\lambda_0(\tau-t_i)}} V_{A3}, \quad (18)$$

где  $A_0(\tau^{\text{пред}})$  – активность, измеренная при взятии проб в предыдущий период;  $\tau^{\text{тек}}$  – момент времени измерения активности текущей пробы;  $\tau^{\text{пред}}$  – момент времени измерения активности предыдущей пробы;  $\Delta\tau = \tau^{\text{тек}} - \tau^{\text{пред}}$  – разница времени при измерении активностей  $A_0(\tau^{\text{тек}})$  и  $A_0(\tau^{\text{пред}})$ .

Рассматриваемое время  $\Delta t_i = \tau - t_i$  для конкретного ПД бралось не более 6,7 периодов его полураспада ( $\Delta t_i^{\text{max}} \leq 6,7 \cdot T_{1/2}$ ). В этом случае величина  $e^{-\lambda_0 \Delta t_i} = 0,0096$ , т. е. в расчетах не учитывались импульсы, которые давали вклад в активность на момент измерения менее 0,96 % от изначальной (в момент генерации импульса). Суммарное энерговыделение при этом также бралось только за это время.

### Результаты расчетов числа делений по измеренной активности проб ТР

В соответствии с соотношением (18) были проведены расчеты числа делений за период с 2006 по 2017 гг. Пробы ТР брались в 2006, 2011, 2015 и 2017 гг.

В расчетах использовались следующие константы [6], приведенные в табл.1:

Таблица 1

Свойства продуктов деления

ПД	Период полураспада ( $T_{1/2}$ ), день	Постоянная распада ( $\lambda_0$ ), с <sup>-1</sup>	Кумулятивный выход ПД ( $\omega_0$ ), отн. ед.
<sup>95</sup> / <sub>40</sub> Zr	64,02	1,25E-07	0,062
<sup>141</sup> / <sub>58</sub> Ce	32,5	2,47E-07	0,060
<sup>144</sup> / <sub>58</sub> Ce	284,9	2,82E-08	0,060
<sup>103</sup> / <sub>44</sub> Ru	39,26	2,04E-07	0,030
<sup>106</sup> / <sub>44</sub> Ru	373,6	2,15E-08	0,0038
<sup>140</sup> / <sub>56</sub> Ba	12,8	6,27E-07	0,063

Объем ТР принимался равным 104±1 л.

В табл. 2 приведены результаты измерения удельной активности ПД.

Таблица 2

Результаты анализа образцов растворов топлива

ПД	Дата измерения активности	Измеренная удельная активность ( $A_0(\tau)$ ), Бк/л
$^{95}_{40}\text{Zr}$	13 июля 2006	$1,71 \cdot 10^9$
	7 сентября 2011	$9,70 \cdot 10^8$
	24 сентября 2015	$1,95 \cdot 10^8$
	10 июля 2017	$1,19 \cdot 10^9$
$^{141}_{58}\text{Ce}$	13 июля 2006	$1,32 \cdot 10^9$
	7 сентября 2011	$2,38 \cdot 10^8$
	24 сентября 2015	$3,50 \cdot 10^6$
	10 июля 2017	$6,61 \cdot 10^8$
$^{144}_{58}\text{Ce}$	13 июля 2006	$2,84 \cdot 10^9$
	7 сентября 2011	$1,93 \cdot 10^9$
	24 сентября 2015	$5,60 \cdot 10^8$
	10 июля 2017	$1,25 \cdot 10^9$
$^{103}_{44}\text{Ru}$	13 июля 2006	$8,51 \cdot 10^8$
	7 сентября 2011	$1,84 \cdot 10^8$
	24 сентября 2015	$2,92 \cdot 10^7$
	10 июля 2017	$4,02 \cdot 10^8$
$^{106}_{44}\text{Ru}$	13 июля 2006	$2,69 \cdot 10^8$
	7 сентября 2011	$1,47 \cdot 10^8$
	24 сентября 2015	$4,50 \cdot 10^7$
$^{140}_{56}\text{Ba}$	13 июля 2006	$3,03 \cdot 10^8$
	10 июля 2017	$7,33 \cdot 10^8$

По результатам анализов проб топливного раствора, а также по измерениям энерговыделения на установке ВИР-2М было рассчитано число делений в активной зоне реактора за рассматриваемые периоды времени. В табл. 3 и 4 показаны результаты расчетов. Значения энерговыделения, представленные в данных таблицах, соответствуют значениям суммарного энерговыделения, определенного за рассматриваемый период времени по выходу ГГ. В суммирование включены только те пуски, с которых на момент измерения активности, осталось не распавшимся не менее 4 % ядер рассматриваемого ПД. Соответственно, рассматриваемый период ограничивался 6,7 периодам полураспада конкретного ПД.

При расчетах использовались следующие приближения:

– погрешность измерения активности равна 10 %;

– погрешность определения промежутка времени между двумя измерениями активностей  $\Delta t$  принималась, равной 1 суткам;

– энерговыделение по выходу ГГ определено с погрешностью 20 %;

– время от  $i$ -го импульса до момента измерения активности продукта деления определено с точностью  $\Delta t_i = 1$  сут.

Таблица 3

Результаты расчетов числа делений по результатам измерения активности ПД за 2006 и 2011 г.

ПД	Дата измерения активности					
	13 июля 2006			7 сентября 2011		
	Рассматриваемый период ( $\Delta t_i^{max}$ ), день	Энерговыделение ( $E$ ), ГДж	Количество делений ( $N_f$ ), $\cdot 10^{20}$ дел	Рассматриваемый период ( $\Delta t_i^{max}$ ), день	Энерговыделение ( $E$ ), ГДж	Количество делений ( $N_f$ ), $\cdot 10^{20}$ дел
$^{95}_{40}\text{Zr}$	429±1	8,2±1,5	2,0±0,4	429±1	6,2±1,1	2,1±0,4
$^{141}_{58}\text{Ce}$	218±1	4,4±0,8	1,6±0,3	218±1	3,4±0,6	1,1±0,2
$^{144}_{58}\text{Ce}$	1909±1	28,8±5,2	8,0±1,6	1787±1	23,4±4,2	6,9±1,4
$^{103}_{44}\text{Ru}$	263±1	5,1±0,9	1,9±0,4	263±1	4,4±0,8	1,4±0,3
$^{106}_{44}\text{Ru}$	–	–	–	1787±1	23,4±4,2	7,6±1,5

Таблица 4

Результаты расчетов числа делений по результатам измерения активности ПД за 2015 и 2017 г.

ПД	Дата измерения активности					
	24 сентября 2015			10 июля 2017		
	Рассматриваемый период ( $\Delta t_i^{max}$ ), день	Энерговыделение ( $E$ ), ГДж	Количество делений ( $N_f$ ), $\cdot 10^{19}$ дел	Рассматриваемый период ( $\Delta t_i^{max}$ ), день	Энерговыделение ( $E$ ), ГДж	Количество делений ( $N_f$ ), $\cdot 10^{19}$ дел
$^{95}_{40}\text{Zr}$	429±1	1,8±0,3	7,1±1,4	429±1	4,4±0,8	13,0±2,6
$^{141}_{58}\text{Ce}$	218±1	1,1±0,2	4,1±0,8	218±1	2,1±0,4	5,9±1,2
$^{144}_{58}\text{Ce}$	729±1	3,1±0,6	10,1±2,0	706±1	6,3±1,1	15,9±3,2
$^{103}_{44}\text{Ru}$	263±1	1,3±0,2	4,6±0,9	263±1	2,3±0,4	6,6±1,3
$^{106}_{44}\text{Ru}$	729±1	3,1±0,6	11,4±2,3	706±1	6,3±1,1	16,5±3,3
$^{140}_{56}\text{Ba}$	–	–	–	86±1	1,4±0,3	3,6±0,7

По полученным результатам была построена зависимость числа делений, рассчитанных по измеренной активности различных ПД, от энерговыделения, определенного по выходу ГГ. График зависимости представлен на рис. 1.

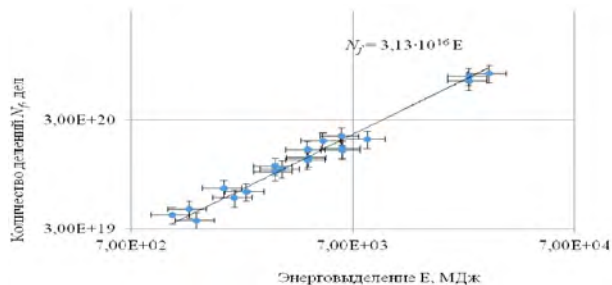


Рис. 1. График зависимости числа делений, рассчитанных по измеренной активности различных ПД, от энерговыделения, определенного по выходу ГГ

Из рис. 1. видно, что количество делений, рассчитанное по представленным ПД, линейно зависит от энерговыделения в АЗ ИЯР ВИР-2М. Причем тангенс угла наклона аппроксимирующей прямой соответствует числу деления на 1 МДж и равен  $\sim 3,13 \cdot 10^{16}$  дел/МДж.

### Заключение

В работе рассмотрен метод определения энерговыделения в АЗ ИЯР ВИР-2М по выходу ПД. Данный метод основан на спектроскопическом анализе проб ТР и пересчете измеренной активности различных ПД в количество делений. Расчет проводился по измеренной активности шести продуктов деления:  $^{95}\text{Zr}$ ;  $^{141}\text{Ce}$ ;  $^{144}\text{Ce}$ ;  $^{103}\text{Ru}$ ;  $^{106}\text{Ru}$ ;  $^{140}\text{Ba}$ . Описанным методом удалось рассчитать число делений в реакторе ВИР-2М за периоды времени с 2006 по 2017 гг. С помощью метода определения энерговыделения по выходу ГГ и метода по определению количества делений было получено число делений урана на один МДж выделенной в АЗ ИЯР ВИР-2М энергии, равное  $3,13 \cdot 10^{16}$  дел/МДж, что практически равно теоретическому значению  $3,1 \cdot 10^{16}$  дел/МДж.

Описанный метод можно применять для оценки числа делений в АЗ ВИР-2М и связанного с ним выгорания. Применяемый на сегодняшний день спектроскопический метод измерения концентрации делящегося нуклида в ТР реактора ВИР-2М не позволяет провести подобную оценку по следующим причинам:

– выгорание в АЗ ВИР-2М за 700 импульсных пусков (проектное ограничение нагрузки на корпус АЗ) номинальной мощности (56 МДж) составляет около 0,5 г;

– погрешность измерения концентрации  $^{235}\text{U}$  составляет около 3 г/л;

Данный метод можно применять для оценки числа делений в импульсных реакторах за достаточно широкий диапазон времени (от нескольких месяцев до нескольких десятков лет). Теоретически возможно определять число делений и за достаточно короткий период времени, но в этом случае задача усложняется технологическими трудностями, связанной с измерениями активности короткоживущих ПД.

Кроме того, данный метод может служить для калибровки относительных методик определения энерговыделения на импульсных ядерных установках.

### Литература

1. Колесов В. Ф. Аperiodические импульсные реакторы. Саров: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 1999. С. 1032.
2. Воинов А. М., Колесов В. Ф., Матвеев А. С., Мельников С. Ф., Левицкий И. В., Маслов Г. Н., Павловская Л. М., Самодуров Л. А., Гладков В. С. Водный импульсный реактор ВИР-2М и его предшественники // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов. 1990. Вып. 3. С. 3–15.
3. Лукин А. В. Основы физики импульсных ядерных реакторов. Снежинск: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИТФ», 2005. С. 438.
4. Boyle J. W., Hochanadel C. J., Sworsky T. J., Ghormley J. A., Kieffer W. F. The Decomposition of Water by Fission Recoil Particles / Международная конференция по мирному использованию атомной энергии, Женева, 8-20 августа 1955 г. // Материалы конференции. Т. 7. Ядерная химия и действие излучения.
5. Нефедов Ю. Я., Пунин В. Т. Методы диагностики параметров высокоинтенсивных импульсных источников ионизирующих излучений: Курс лекций. Саров: ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», 2010. С. 125.
6. Грешилов А. А., Колобашкин В. М., Дементьев С. И. Продукты мгновенного деления  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  в интервале 0–1 ч. Справочник. М.: Атомиздат, 1969. С. 104.