

РАДИОХИМИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА РЕАКТОРА ВВЭР-440

© 2020 г. В. Н. Момотов*, Е. А. Ерин, А. Ю. Волков, В. Н. Куприянов

*Научно-исследовательский институт атомных реакторов,
433510, Димитровград Ульяновской обл., Западное шоссе, 9;
e-mail: momotov@niiar.ru

Получена 10.06.2019, после доработки 28.06.2019, принята к публикации 01.07.2019

Представлены результаты радиохимического анализа 8 образцов ядерного топлива, облученного в реакторе ВВЭР-440. Описаны процедуры радиохимического выделения и анализа нуклидов урана, плутония, америция, кюрия, неодима, цезия, церия, самария, европия, гадолиния, нептуния с применением радиохимических и инструментальных методик, включающих ионообменную хроматографию, альфа-, гамма-, масс-спектрометрию. Приведены данные по изотопному составу, массовому содержанию нуклидов и выгоранию топлива, рассчитанные методом тяжелых атомов и по накоплению мониторов выгорания $^{145+146}\text{Nd}$, ^{148}Nd .

Ключевые слова: облученное ядерное топливо (ОЯТ), ВВЭР-440, радиохимический анализ, кредит выгорания, хроматографическое разделение элементов, изотопный состав, массовое содержание нуклидов, монитор выгорания, величина выгорания ОЯТ, масс-спектрометрия, альфа-, гамма-спектрометрия

DOI: 10.31857/S003383112005010X

ВВЕДЕНИЕ

К настоящему времени в российской и мировой ядерной энергетике накопились значительные объемы облученного ядерного топлива, эффективное обращение с которыми рассматривается как одно из основных направлений повышения ядерной, радиационной безопасности и экономической эффективности АЭС [1, 2]. Одним из путей оптимизации обращения с ОЯТ является увеличение загрузки отработавшего топлива в транспортные контейнеры, водные и сухие хранилища. Повышение емкости хранилищ отработавшего ядерного топлива за счет более плотного размещением в них ОТВС возможно при безусловном и неукоснительном выполнении всех требований безопасности. [3].

Для обоснования ядерной безопасности используют подход, согласно которому содержание делящихся нуклидов в ОЯТ приравнивается к их содержанию в исходном необлученном топливе. Вместе с тем, в процессе облучения концентрация делящихся материалов в топливе уменьшается и происходит накопление нуклидов, поглощающих

нейтроны. Несмотря на простоту использования данного подхода, излишний консерватизм расчетов приводит к уменьшению количества ТВС, которые возможно разместить в мокрых или сухих хранилищах [4, 5].

Для обоснования ядерной безопасности при транспортировке, хранении и переработке ОЯТ с учетом реального изменения нуклидного состава топлива в процессе облучения используется кредит выгорания [4–9] – подход, в котором учитывается снижение реактивности ОЯТ в результате изменения состава топлива в процессе облучения. Расчеты с использованием данного подхода учитывают уменьшение делящихся материалов в процессе облучения, в первую очередь ^{235}U и ^{238}U , накопление поглотителей нейтронов, например, ^{149}Sm и ^{157}Gd , и образование делящихся нуклидов, таких как ^{239}Pu и ^{241}Pu .

Для обоснования возможного повышения плотности упаковки отработавшего топлива с учетом кредита выгорания необходима верификация расчетных кодов [10]. Целью данной работы является получение массива экспериментальных данных

Таблица 1. Характеристики образцов, вырезанных из твэлов

№ образца	Расчетное выгорание, МВт·сут/(кг $U_{исх}$)	Начальное обогащение по ^{235}U , %	Координата от низа твэла, мм
182	42.3	3.592	100
21	42.3	3.592	1000
69	42.3	3.592	2150
149	43.8	3.585	1000
162	45.7	3.585	1000
135	49.3	3.592	100
79	49.3	3.592	1000
57	49.3	3.592	2150

по изотопному составу, массовому содержанию нуклидов и величинам выгорания топлива ВВЭР-440, необходимых для последующей верификации расчетных кодов.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для исследования изотопного состава и массового содержания нуклидов выбрана ОТВС с урановым оксидным топливом, облучавшаяся в реакторе ВВЭР-440 в течение 1109.7 эффективных суток до среднего выгорания 38.5 МВт·сут/(кг U) на 4-м блоке Нововоронежской АЭС. Величина выгорания топлива в твэлах указанной ОТВС предварительно определена методом гамма-сканирования по накоплению нуклида ^{137}Cs . По результатам проведенных измерений отобраны четыре твэла: по одному с максимальным и минимальным выгоранием, два с промежуточными значениями выгорания. Из твэлов с максимальным и минимальным значениями выгорания вырезаны по три образца, из твэлов со средним значением выгорания – по одному. Координаты отбора образцов по длине твэлов определены с погрешностью ± 1 мм. Характеристики образцов, взятых для проведения разрушающего радиохимического анализа, представлены в табл. 1.

Определение нуклидного состава тяжелых атомов, продуктов деления и выгорания проводили в соответствии со схемой, представленной на рис. 1. Процедура радиохимического анализа включает в себя следующие процедуры: взвешивание образца; растворение анализируемого образца; альфа-, гамма-спектрометрический анализ исходного раствора; радиохимическое разделение U , Pu , Ce , Nd , Sm , Eu , Gd , Am , Cm и Cs для масс-спектрометрических измерений изотопного состава; повторение радиохимического разделения в присутствии комплексной метки для измерения массового содер-

жания нуклидов; выделение и определение массового содержания Np .

Для определения массы ОЯТ вначале взвешивали образец с оболочкой твэла. После завершения растворения топлива оболочку извлекали, промыли, высушивали и проводили взвешивание. Массу топлива в образце рассчитывали по разности массы образца с оболочкой и массы пустой оболочки.

Растворение образца проводили в конической колбе Эрленмейера объемом 500 мл с использованием 8 моль·л⁻¹ HNO_3 при нагревании до температуры 95–105°C. На финальной стадии в раствор вносили плавиковую кислоту для растворения нерастворенного остатка.

Из полученного исходного раствора отбирали аликвоту, разбавляли ее в 100 раз, получая рабочий раствор. Проводили α -, γ -спектрометрический анализ рабочего раствора. По полученным результатам определяли суммарную γ -активность ^{137}Cs и ^{144}Ce , а также α -активность $^{239,240}Pu$. Содержание ^{137}Cs и ^{144}Ce использовали для расчета массового содержания нуклидов цезия и церия исходя из изотопных соотношений, полученных при анализе соответствующих фракций масс-спектрометрическим методом. Массовое содержание плутония оценивали как результат деления суммарной α -активности нуклидов $^{239,240}Pu$ на среднее значение удельной активности ^{239}Pu и ^{240}Pu , считая, что их отношение равно 1 : 1. Полученное значение содержания плутония является оценочным для определения объема аликвоты рабочего раствора при последующих радиохимических исследованиях.

На рис. 2 приведена схема радиохимического выделения урана, плутония, америция, кюрия, цезия, церия, неодима, самария, европия, гадолиния. Описание представленной схемы, за исключением

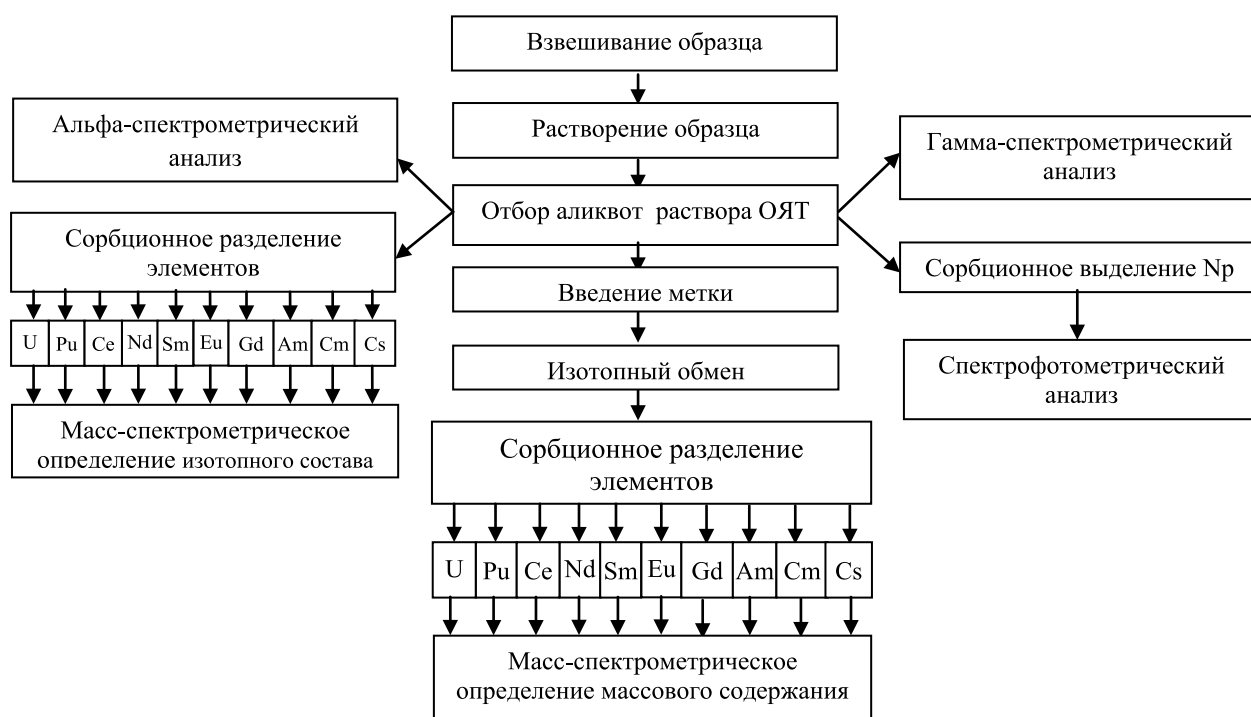


Рис. 1. Общая схема анализа облученного ядерного топлива.

стадии разделения редкоземельных элементов и количественного определения нептуния, приведено в работе [11].

Разделение Nd, Eu, Sm проводили на колонках, заполненных анионитом Dowex-1×8 с размером зерен 200–400 меш. Сорбцию Nd, Eu, Sm проводили из 0.8 моль·л⁻¹ HNO₃ в 90%-ном метаноле. Разделение Eu, Sm проводили элюированием раствором 2.0×10⁻² моль·л⁻¹ HNO₃ в 90%-ном метаноле, элюирование Nd – раствором 2.0×10⁻³ моль·л⁻¹ HNO₃ в 90%-ном метаноле. Выделенные фракции Nd, Eu, Sm упаривали и передавали на масс-спектрометрические измерения изотопного состава.

Для выделения нептуния из раствора ОЯТ проводили восстановление Np(VI+V) до Np(IV) сульфаминатом железа(II), селективно сорбировали восстановленный нептуний на анионите Dowex 1×8, после чего осуществляли десорбцию Np(IV) раствором 0.1 моль·л⁻¹ HNO₃. Для учета влияния радиолитического окисления Np(IV) до Np(V) [12, с. 145; 13, с. 41–42; 14–16] и потерь нептуния на стадиях хроматографического выделения использовали трассер – раствор ²³⁷Np в 1 моль·л⁻¹ HNO₃. Определение массового содержания нептуния в ОЯТ проводили спектрофотометрически по величине

оптической плотности при длине волны 980 нм. Подробное описание методики определения нептуния в растворах ОЯТ представлено в работе [17].

Для количественного определения содержания элементов готовили комплексную метку из отраслевых стандартных образцов (ОСО) на основе азотнокислых растворов ²³³U, ²⁴²Pu, ¹⁴⁶Nd. ОСО урана и плутония приготовлены в Радиевом институте им. В.Г. Хлопина, Санкт-Петербург. При определении массового содержания Eu и Sm в ОЯТ методом изотопного разбавления в качестве меток использовали стандартные растворы этих элементов, приготовленные из образцов природного изотопного состава.

Глубину выгорания рассчитывали по измеренному изотопному составу топлива до и после облучения с использованием расчетных выражений метода тяжелых атомов (МТА) и по измеренному отношению числа атомов продукта деления – монитора выгорания к числу тяжелых атомов в растворенном образце топлива – метод накопления продуктов деления (ПД).

При определении выгорания по накоплению продуктов деления в качестве мониторов использовали накопление ядер ¹⁴⁸Nd и суммарное нако-

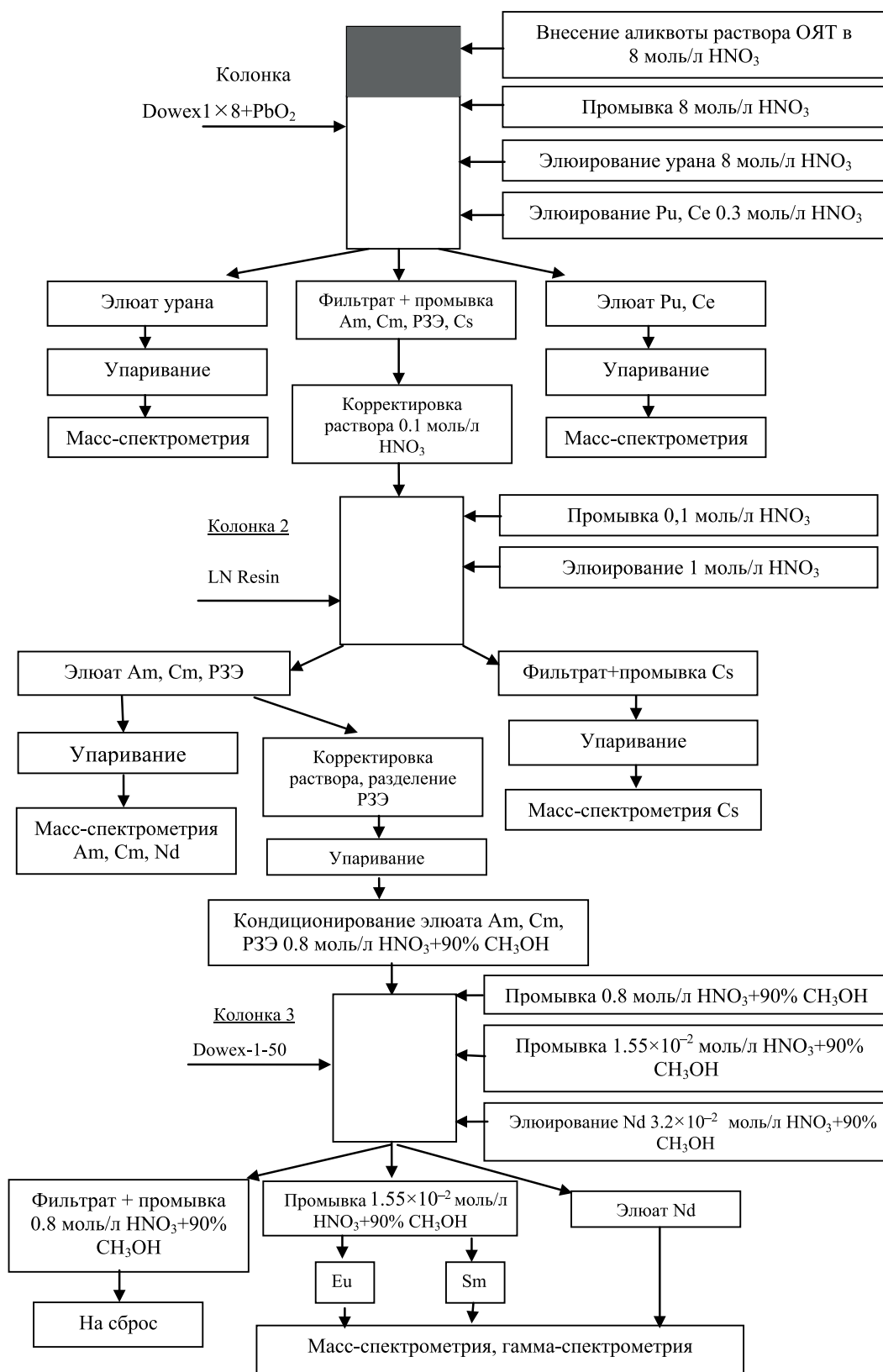


Рис. 2. Схема радиохимического выделения компонентов ОЯТ.

Таблица 2. Изотопный состав урана (мас%)

№ образца	²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U
21	0.020(5)	0.81(3)	0.55(3)	98.62(4)
149	0.020(5)	0.74(1)	0.56(1)	98.68(2)
162	0.020(5)	0.65(2)	0.57(2)	98.76(5)
79	0.010(5)	0.44(2)	0.56(2)	98.99(5)
57	0.011(5)	1.00(5)	0.51(2)	98.48(6)
135	0.025(4)	1.34(2)	0.46(1)	98.18(2)
182	0.014(4)	1.66(2)	0.420(16)	97.91(3)
69	0.018(5)	1.23(3)	0.49(1)	98.26(3)

Таблица 3. Массовое содержание урана [кг/(т U_{исх})]

№ образца	²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U
21	0.189(47)	7.65(28)	5.19(28)	932.05(37)
149	0.189(47)	6.989(94)	5.289(94)	931.99(38)
162	0.188(46)	6.12(19)	5.37(19)	930.45(35)
79	0.094(68)	4.13(19)	5.26(19)	930.36(35)
57	0.105(47)	9.52(47)	4.85(19)	937.40(40)
135	0.240(38)	12.87(19)	4.419(96)	943.05(42)
182	0.135(36)	16.06(19)	4.06(19)	945.59(42)
69	0.172(46)	11.77(28)	4.692(95)	940.86(42)

Таблица 4. Изотопный состав плутония (мас%)

№ образца	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
21	1.95(19)	54.11(11)	23.04(8)	14.65(12)	6.25(4)
149	1.91(19)	52.36(8)	23.95(8)	14.82(5)	6.96(8)
162	2.35(9)	50.51(11)	24.46(9)	14.89(10)	7.79(10)
79	2.82(10)	49.57(11)	25.92(9)	13.42(10)	8.27(10)
57	1.55(9)	56.84(13)	22.29(14)	14.06(11)	5.26(10)
135	1.02(9)	61.30(9)	21.72(14)	12.34(6)	3.62(5)
182	0.86(9)	67.63(11)	18.72(9)	10.59(10)	2.20(10)
69	1.35(10)	60.44(11)	21.27(9)	13.04(10)	3.90(10)

Таблица 5. Массовое содержание плутония [кг/(т U_{исх})]

№ образца	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
21	0.227(24)	6.308(14)	2.686(10)	1.708(12)	0.728(5)
149	0.228(23)	6.246(9)	2.857(9)	1.768(20)	0.830(9)
162	0.280(28)	6.019(8)	2.915(12)	1.775(20)	0.928(12)
79	0.329(33)	5.785(7)	3.025(13)	1.566(12)	0.965(14)
57	0.164(16)	6.019(8)	2.361(15)	1.489(12)	0.557(9)
135	0.0884(88)	5.315(10)	1.883(16)	1.070(5)	0.314(4)
182	0.0733(73)	5.769(9)	1.597(8)	0.903(6)	0.1876(85)
69	0.143(14)	6.408(11)	2.255(13)	1.382(12)	0.413(11)

пление изотопов ¹⁴⁵Nd и ¹⁴⁶Nd. В расчетах не учитывали влияние радиационного захвата нейтронов на убыль мониторов выгорания вследствие малого значения сечений захвата нейтронов.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Полученные результаты представлены в табл. 2–15. В скобках указаны значения суммарной абсолютной погрешности в единицах последнего раз-

Таблица 6. Изотопный состав америция и кюрия (мас%)

№ образца	²⁴¹ Am	^{242m} Am	²⁴³ Am	²⁴⁴ Cm	²⁴⁵ Cm	²⁴⁶ Cm
21	30.96(10)	0.69 (1)	68.34(10)	93.3(46)	6.16(12)	0.54(7)
149	31.98(8)	0.52(1)	67.51(8)	95.4(47)	4.11(11)	0.49(8)
162	36.73(12)	0.20(5)	63.07(12)	94.0(47)	5.55(11)	0.45(8)
79	37.84(10)	0.24 (1)	61.92(10)	94.4(47)	5.28(11)	0.32(8)
57	34.84(5)	0.660(9)	64.50(8)	97.3(48)	2.7(5)	–
135	47.53(7)	1.060(9)	51.41(7)	95.82(48)	3.69(6)	0.49(7)
182	63.74(12)	1.480(7)	34.78(12)	96.16(48)	3.56(7)	0.28(4)
69	40.53(10)	0.97(2)	58.50(10)	93.7(47)	5.75(11)	0.55(6)

Таблица 7. Массовое содержание америция, кюрия, нептуния [кг/(т U_{исх.})]

№ образца	²³⁷ Np	²⁴¹ Am	^{242m} Am · 10 ³	²⁴³ Am	²⁴⁴ Cm	²⁴⁵ Cm × 10 ²	²⁴⁶ Cm × 10 ⁴
21	1.43 (10)	0.0650 (17)	1.45 (10)	0.1435 (87)	0.0718 (36)	0.473 (9)	4.2 (4)
149	1.46 (10)	0.0672 (14)	1.09 (10)	0.1418 (90)	0.0877 (44)	0.378 (7)	4.5 (4)
162	1.49 (10)	0.0918 (61)	0.50 (6)	0.1576 (63)	0.1222 (61)	0.722 (14)	5.8 (6)
79	1.59 (11)	0.1627 (81)	1.03 (10)	0.266 (13)	0.1888 (94)	1.056 (21)	6.4 (6)
57	1.110 (78)	0.0557 (28)	1.05 (8)	0.1032 (52)	0.0486 (24)	0.135 (3)	–
135	0.780 (56)	0.0380 (19)	0.85 (5)	0.0412 (20)	0.01348 (67)	0.052 (1)	0.68 (7)
182	0.710 (50)	0.0446 (27)	1.04 (10)	0.0243 (12)	0.00675 (33)	0.0250 (5)	0.21 (2)
69	1.030 (71)	0.0486 (24)	1.16 (10)	0.0702 (42)	0.0224 (11)	0.138 (3)	1.32 (13)

Таблица 8. Изотопный состав неодама (мас%)

№ образца	¹⁴² Nd	¹⁴³ Nd	¹⁴⁴ Nd	¹⁴⁵ Nd	¹⁴⁶ Nd	¹⁴⁸ Nd	¹⁵⁰ Nd
21	0.66 (2)	21.65 (8)	23.40 (8)	20.14 (9)	18.42 (12)	10.61 (12)	5.12 (10)
149	0.70 (1)	21.31 (16)	23.75 (13)	20.06 (14)	18.48 (10)	10.60 (13)	5.10 (10)
162	0.72 (1)	20.85 (9)	24.18 (9)	19.93 (6)	18.59 (7)	10.61 (11)	5.12 (10)
79	0.77 (1)	19.76 (9)	25.58 (13)	19.64 (10)	18.86 (10)	10.48 (12)	4.91 (10)
57	0.54 (10)	22.66 (12)	22.80 (8)	20.38 (10)	18.22 (7)	10.49 (11)	4.91 (10)
135	0.48 (1)	24.18 (11)	21.43 (10)	20.64 (12)	17.98 (16)	10.43 (12)	4.86 (10)
182	0.32 (1)	25.54 (9)	20.26 (9)	20.90 (6)	17.78 (7)	10.41 (13)	4.80 (10)
69	0.39 (1)	23.71 (9)	21.79 (13)	20.58 (10)	18.08 (10)	10.53 (11)	4.93 (9)

Таблица 9. Массовое содержание неодама [кг/(т U_{исх.})]

№ образца	¹⁴² Nd	¹⁴³ Nd	¹⁴⁴ Nd	¹⁴⁵ Nd	¹⁴⁶ Nd	¹⁴⁸ Nd	¹⁵⁰ Nd
21	0.0294 (9)	0.965 (9)	1.043 (10)	0.898 (9)	0.821 (8)	0.473 (5)	0.228 (2)
149	0.0318 (9)	0.969 (9)	1.080 (11)	0.912 (9)	0.840 (8)	0.482 (5)	0.232 (2)
162	0.0339 (9)	0.981 (9)	1.137 (11)	0.937 (9)	0.874 (8)	0.499 (5)	0.241 (2)
79	0.0386 (9)	0.992 (10)	1.284 (13)	0.986 (9)	0.947 (9)	0.526 (5)	0.246 (2)
57	0.0206 (6)	0.864 (8)	0.869 (8)	0.777 (8)	0.695 (7)	0.400 (4)	0.187 (2)
135	0.0155 (5)	0.779 (8)	0.690 (7)	0.665 (6)	0.579 (6)	0.336 (3)	0.157 (2)
182	0.0077 (3)	0.618 (6)	0.490 (5)	0.506 (5)	0.430 (4)	0.252 (2)	0.116 (1)
69	0.0131 (5)	0.797 (8)	0.733 (7)	0.692 (7)	0.608 (6)	0.354 (3)	0.166 (2)

ряда результата для доверительной вероятности 0.95. Величина выгорания топлива, рассчитанная с использованием метода накопления продуктов деления, представлена в табл. 16, выгорание изотопов ²³⁵U, ²³⁸U, ²³⁹Pu и ²⁴¹Pu, их вклад в общее выгорание, рассчитанные с использованием МТА, приведены в табл. 17.

Отсутствие данных по массовому содержанию нуклида ²⁴²Cm связано с тем, что со времени выгрузки ТВС из реактора до радиохимического анализа топлива прошло более 28 периодов его полураспада. Содержание ²⁴³Cm и ²⁴⁴Pu в анализируемых образцах оказалось ниже пределов чувствительности применяемых методик анализа.

Таблица 10. Изотопный состав цезия и церия (мас%)

№ образца	¹³³ Cs	¹³⁴ Cs	¹³⁵ Cs	¹³⁷ Cs	¹⁴⁰ Ce	¹⁴⁴ Ce	¹⁴⁴ Ce
21	38.93 (14)	3.43 (10)	13.96 (11)	43.68 (18)	43.00 (16)	39.28 (16)	17.71 (10)
149	38.74 (19)	4.25 (10)	13.36 (12)	43.66 (14)	43.01 (45)	39.28 (45)	17.71 (5)
162	39.19 (9)	3.42 (5)	12.79 (7)	44.61 (11)	43.02 (22)	39.29 (22)	17.69 (5)
79	39.37 (10)	3.41 (5)	11.99 (7)	45.23 (11)	42.89 (22)	39.31 (22)	17.80 (5)
57	39.66 (23)	4.27 (5)	14.21 (20)	41.86 (18)	42.89 (20)	39.31 (22)	17.80 (10)
135	39.43 (23)	5.18 (5)	15.17 (20)	40.22 (11)	42.81 (20)	39.27 (22)	17.92 (10)
182	38.63 (9)	4.96 (5)	17.70 (7)	38.71 (11)	42.77 (22)	39.26 (22)	17.97 (10)
69	37.97 (10)	5.97 (5)	15.74 (7)	40.31 (11)	42.89 (22)	39.29 (22)	17.82 (5)

Таблица 11. Массовое содержание цезия и церия [кг/(т U_{исх})]

№ образца	¹³³ Cs	¹³⁴ Cs	¹³⁵ Cs	¹³⁷ Cs	¹⁴⁰ Ce	¹⁴² Ce	¹⁴⁴ Ce
21	1.328 (46)	0.117 (6)	0.476 (19)	1.490 (50)	1.540 (50)	1.407 (50)	0.634 (51)
149	1.416 (50)	0.155 (7)	0.488 (19)	1.596 (50)	1.558 (50)	1.423 (50)	0.642 (52)
162	1.471 (51)	0.128 (6)	0.480 (18)	1.675 (50)	1.640 (51)	1.498 (60)	0.674 (55)
79	1.462 (50)	0.127 (6)	0.445 (16)	1.680 (67)	1.729 (60)	1.585 (61)	0.718 (56)
57	1.253 (43)	0.135 (6)	0.449 (16)	1.323 (53)	1.285 (53)	1.178 (50)	0.533 (50)
135	1.078 (38)	0.142 (7)	0.415 (17)	1.100 (44)	1.095 (44)	1.004 (50)	0.458 (37)
182	0.848 (34)	0.109 (5)	0.389 (16)	0.850 (40)	0.832 (40)	0.764 (38)	0.350 (35)
69	1.110 (36)	0.174 (8)	0.460 (17)	1.178 (47)	1.149 (46)	1.053 (53)	0.477 (38)

Таблица 12. Изотопный состав самария (мас%)

№ образца	¹⁴⁷ Sm	¹⁴⁸ Sm	¹⁴⁹ Sm	¹⁵⁰ Sm	¹⁵¹ Sm	¹⁵² Sm	¹⁵⁴ Sm
182	37.84 (12)	13.33 (8)	0.46 (1)	30.55 (8)	1.67 (2)	12.68 (9)	3.47 (7)
135	34.21 (12)	15.71 (10)	0.40 (1)	32.07 (9)	1.48 (3)	12.30 (8)	3.83 (6)
69	33.48 (14)	16.19 (10)	0.39 (1)	32.38 (8)	1.44 (2)	12.22 (8)	3.90 (6)
57	30.96 (12)	17.84 (11)	0.35 (1)	33.43 (9)	1.31 (2)	11.95 (8)	4.16 (6)
21	28.23 (10)	19.64 (10)	0.31 (1)	34.57 (10)	1.16 (2)	11.67 (8)	4.42 (6)
149	28.02 (12)	19.77 (12)	0.30 (1)	34.66 (8)	1.15 (2)	11.66 (9)	4.44 (7)
162	26.83 (10)	20.55 (12)	0.29 (1)	35.16 (9)	1.09 (2)	11.52 (9)	4.56 (7)
79	25.75 (10)	21.26 (11)	0.27 (1)	35.61 (8)	1.03 (2)	11.41 (9)	4.66 (8)

Таблица 13. Массовое содержание самария [кг/(т U_{исх})]

№ образца	¹⁴⁷ Sm	¹⁴⁸ Sm	¹⁴⁹ Sm	¹⁵⁰ Sm	¹⁵¹ Sm	¹⁵² Sm	¹⁵⁴ Sm
182	0.2543 (46)	0.0896 (16)	0.00309 (11)	0.2053 (37)	0.01122 (20)	0.0852 (15)	0.0233 (12)
135	0.2565 (47)	0.1178 (25)	0.00299 (11)	0.2405 (40)	0.01110 (20)	0.0922 (16)	0.0287 (15)
69	0.2630 (47)	0.1272 (23)	0.00306 (10)	0.2544 (46)	0.01131 (21)	0.0960 (17)	0.0306 (17)
57	0.2692 (50)	0.1551 (28)	0.00304 (10)	0.2907 (50)	0.01139 (22)	0.1039 (18)	0.0362 (20)
21	0.2776 (50)	0.1932 (33)	0.00305 (10)	0.3399 (55)	0.01148 (25)	0.1148 (20)	0.0435 (22)
149	0.2980 (52)	0.2103 (38)	0.00319 (13)	0.3686 (66)	0.01223 (22)	0.1240 (22)	0.0472 (24)
162	0.2882 (52)	0.2208 (41)	0.00312 (10)	0.3777 (60)	0.01171 (22)	0.1237 (22)	0.0490 (26)
79	0.2804 (51)	0.2315 (42)	0.00294 (10)	0.3878 (70)	0.01122 (20)	0.1243 (22)	0.0507 (25)

Вклад нуклидов урана в суммарное выгорание ОЯТ в исследованных образцах по данным представленным в табл. 17 составляет 64.66–75.3%. Зависимость изменения содержания ²³⁵U и ²³⁶U в облученном ядерном топливе от величины его выгорания представлена на рис. 3.

Количество ²³⁵U с ростом величины выгорания ядерного топлива уменьшается и при выгорании 46.3 кг/(т U_{исх}) составляет около 11.5% от его начального содержания. Доля ²³⁶U возрастает с ростом величины выгорания топлива.

Таблица 14. Изотопный состав европия (мас%)

№ образца	¹⁵¹ Eu	¹⁵³ Eu	¹⁵⁴ Eu	¹⁵⁵ Eu
182	1.87 (2)	81.24 (10)	11.78 (8)	5.11 (7)
135	1.54 (2)	80.46 (10)	13.13 (8)	4.87 (6)
69	1.48 (2)	80.34 (10)	13.38 (9)	4.80 (7)
57	1.24 (2)	79.75 (10)	14.34 (9)	4.67 (7)
21	1.01 (1)	79.10 (10)	15.36 (10)	4.53 (7)
149	0.99 (1)	79.06 (11)	15.40 (10)	4.55 (6)
162	0.88 (1)	78.84 (9)	15.85 (10)	4.43 (6)
79	0.79 (1)	78.58 (10)	16.24 (10)	4.39 (6)

Таблица 15. Массовое содержание европия [кг/(т U_{исх})]

№ образца	¹⁵¹ Eu×10 ⁴	¹⁵³ Eu×10 ²	¹⁵⁴ Eu×10 ³	¹⁵⁵ Eu×10 ³
182	4.60 (18)	1.99 (10)	2.89 (14)	1.25 (11)
135	4.29 (16)	2.24 (11)	3.66 (18)	1.35 (12)
69	4.09 (16)	2.22 (11)	3.70 (18)	1.33 (12)
57	3.38 (14)	2.17 (11)	3.90 (19)	1.27 (11)
21	2.83 (12)	2.22 (11)	4.31 (21)	1.27 (11)
149	2.68 (12)	2.14 (11)	4.16 (21)	1.23 (11)
162	2.28 (10)	2.05 (10)	4.12 (21)	1.15 (10)
79	1.53 (6)	1.52 (7)	3.14 (16)	0.85 (7)

Таблица 16. Выгорание топлива [кг/(т U_{исх})]

№ образца	¹⁴⁵⁺¹⁴⁶ Nd	¹⁴⁸ Nd	¹³⁷ Cs	Среднее значение
21	41.5 (12)	41.5 (12)	41.6 (12)	41.5 (1)
149	41.6 (13)	42.2 (13)	42.1 (13)	42.0 (8)
162	43.8 (14)	44.7 (14)	44.2 (14)	44.2 (15)
79	46.2 (14)	46.2 (14)	46.6 (14)	46.3 (4)
57	36.2 (12)	36.1 (12)	36.4 (12)	36.2 (2)
135	30.2 (9)	30.0 (9)	29.2 (9)	29.8 (20)
182	23.1 (7)	22.6 (7)	23.2 (7)	23.0 (8)
69	31.4 (9)	31.1 (9)	31.9 (9)	31.5 (12)

Таблица 17. Выгорание изотопов ²³⁵U, ²³⁸U, ²³⁹Pu и ²⁴¹Pu, их доли делений в общем выгорании

№ образца	Вклад в суммарное выгорание, %				Суммарное выгорание, кг/(т U _{исх})
	²³⁵ U	²³⁸ U	²³⁹ Pu	²⁴¹ Pu	
21	53.66	11.00	30.82	4.52	41.1(14)
149	53.72	11.00	30.57	4.71	42.0(14)
162	53.03	11.02	30.89	5.06	43.8(14)
79	54.51	11.00	29.48	5.01	45.9 (14)
57	57.78	10.92	27.60	3.70	35.9(13)
135	62.41	10.83	24.15	2.61	28.8(10)
182	64.51	10.79	22.82	1.88	23.7(9)
69	58.75	10.90	27.27	3.08	31.9(12)

Зависимость накопления нуклидов плутония в анализируемых образцах от величины выгорания топлива представлена на рис. 4 и 5.

Видно, что накопление нуклидов плутония происходит равномерно во всем изученном диапазоне РАДИОХИМИЯ том 62 № 5 2020

не величин выгорания ядерного топлива. Наиболее быстрыми темпами происходит накопление ²⁴²Pu.

Зависимость, представленная на рис. 6, показывает, что с ростом глубины выгорания топлива

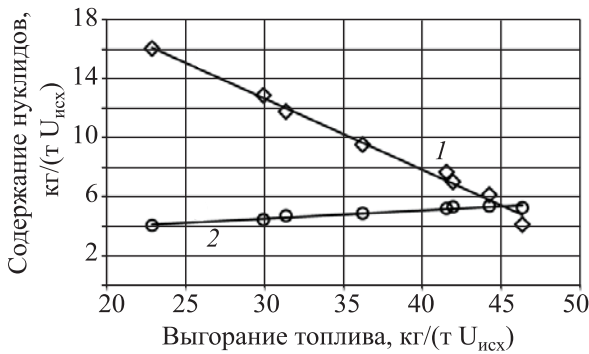


Рис. 3. Изменение содержания ^{235}U (1) и ^{236}U (2) в ОЯТ от выгорания топлива.

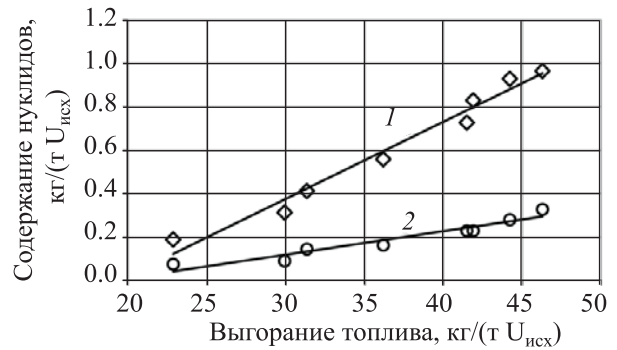


Рис. 4. Изменение содержания ^{242}Pu (1) и ^{238}Pu (2) в ОЯТ от выгорания топлива.

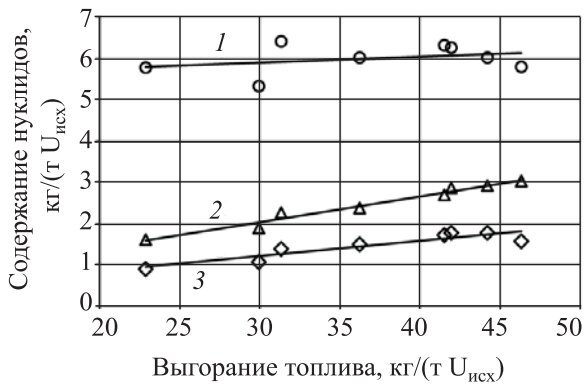


Рис. 5. Изменение содержания ^{239}Pu (1), ^{240}Pu (2), ^{241}Pu (3) в ОЯТ от выгорания топлива.

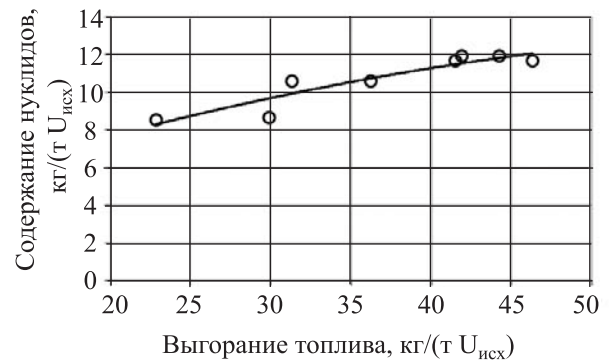


Рис. 6. Суммарное накопление нуклидов плутония в ОЯТ от выгорания топлива.

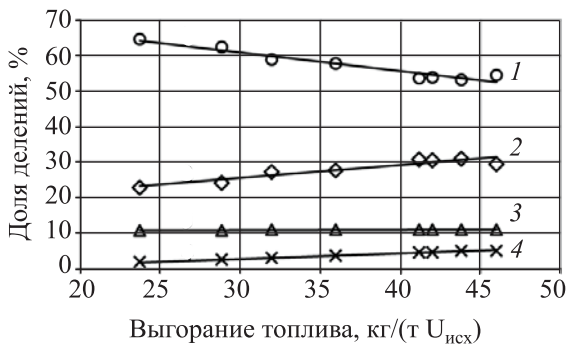


Рис. 7. Вклад нуклидов ^{235}U (1), ^{239}Pu (2), ^{238}U (3), ^{241}Pu (4) в суммарную величину выгорания топлива.

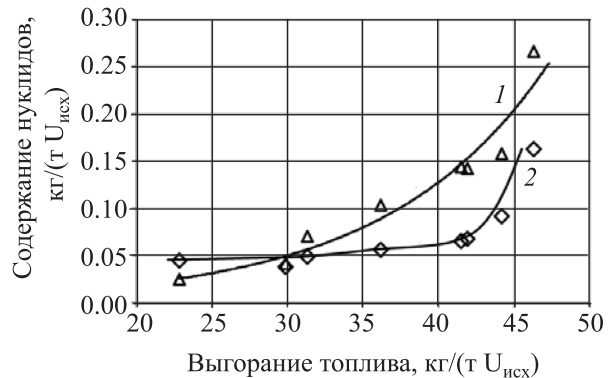


Рис. 8. Зависимость содержания ^{243}Am (1), ^{241}Am (2) в ОЯТ от выгорания топлива.

суммарное содержание нуклидов плутония увеличивается.

Суммарное накопление нуклидов плутония при выгорании 41.5 кг/(т $U_{\text{исх}}$) составляет 11.657 кг/(т $U_{\text{исх}}$) и при дальнейшем росте выгорания изменяется незначительно.

Вклад нуклидов урана и плутония в суммарное выгорание топлива представлен на рис. 7. С

ростом величины выгорания возрастают вклады нуклидов ^{239}Pu , ^{241}Pu в суммарную величину выгорания, вклад ^{235}U уменьшается, а ^{238}U остается неизменным.

Зависимости, представленные на рис. 8 и 9, свидетельствуют о том, что при величинах выгорания свыше 40 кг/(т $U_{\text{исх}}$) заметно возрастает содержание нуклидов америция и кюрия в ОЯТ.

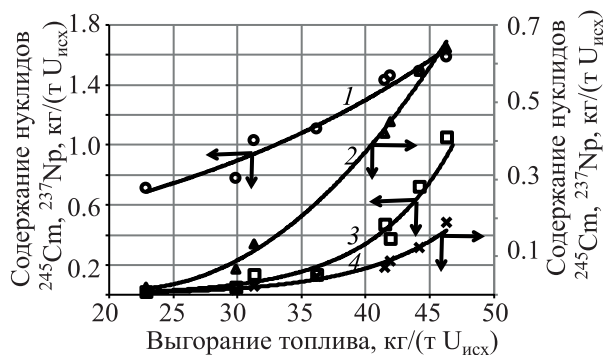


Рис. 9. Зависимость содержания ^{237}Np (1), $^{246}\text{Cm} \times 10^3$ (2), $^{245}\text{Cm} \times 10^2$ (3), ^{244}Cm (4) в ОЯТ от выгорания топлива.

Содержание ^{237}Np с ростом величины выгорания увеличивается равномерно. При выгорании 46.3 кг/(т $U_{\text{исх}}$) содержание ^{244}Cm составляет 0.1888, ^{243}Am – 0.266 и ^{237}Np – 1.59 кг/(т $U_{\text{исх}}$).

Зависимости накопления нуклидов неодима от величины выгорания ядерного топлива представлены на рис. 10.

Накопление нуклидов неодима в облученном ядерном топливе происходит линейно во всем диапазоне величин выгорания. Данный характер зависимости позволяет использовать их для определения глубины выгорания ядерного топлива.

Представленный объем экспериментальных данных может быть использован для верификации топливных и трансмутационных расчетных кодов, обоснования оптимального количества сборок с отработавшем ядерным топливом, размещенных в мокрых и сухих хранилищах, что в конечном счете будет способствовать повышению эффективности обращения с ОЯТ и снижению затрат на его хранение и переработку.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кузнецов В.М., Хвостова М.С. // Энергия: экономика, техника, экология. 2014. № 1. С. 23.
2. Муратова О.Э. // Энергия: экономика, техника, экология. 2011. № 6. С. 30.

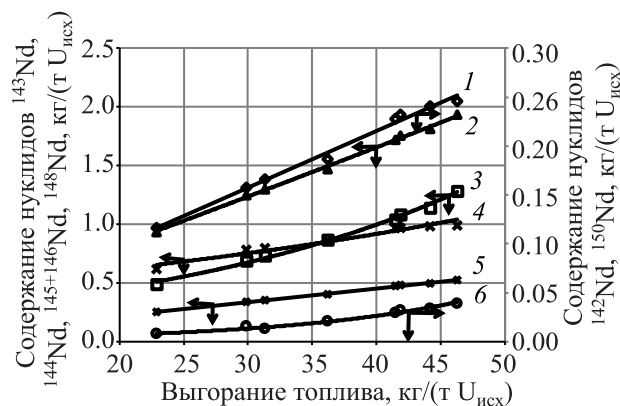


Рис. 10. Зависимость содержания ^{150}Nd (1), $^{145+146}\text{Nd}$ (2), ^{144}Nd (3), ^{143}Nd (4), ^{148}Nd (5), ^{142}Nd (6) в ОЯТ от выгорания топлива.

3. Внуков В.С., Рязанов Б.Г. // Атом. энергия. 2001. Т. 91, № 4. С. 263.
4. Внуков В.С., Куликов В.И., Чукасли Л.И. // Изв. вузов. Ядер. энергетика. 2015. № 2. С. 108.
5. Wolf S.F., Bowers D.L., Cunnane J.C. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2005. Vol. 263, N 3. P. 581.
6. Guoshun Y., Chunming Z., Xinyi P. // Procedia Eng. 2012. Vol. 43. P. 297.
7. Kanda K. // Nucl. Eng. 1994. Vol. 40, N 3. P. 9.
8. Advances in Application of Burnup Credit to Enhance Spent Fuel Transportation, Storage, Reprocessing and Disposition: Proc. Technical Committee Meet. Held in London, Aug. 29–Sept. 02. 2005: IAEA-TECDOC-1547. May 2007.
9. Neuber J.C. Workshop on Criticality Safety/Burnup Credit (BUC) in Spent Fuel Handling and Storage. Prague: State Office for Nuclear Safety, March 19–23. 2007.
10. Barkauskas V., Plukiene R., Plukis A. // Nucl. Eng. Des. 2016. Vol. 307. P. 197.
11. Ерин Е.А., Момотов В.Н., Волков А.Ю., Хамдеев М.И., Куприянов В.Н., Шадрин А.Ю., Двоглазов К.Н. // Радиохимия. 2017. Т. 59, № 4. С. 325.
12. Колтунов В.С. Кинетика реакций актиноидов. М.: Атомиздат, 1974. 312с.
13. Михайлов В.А. Аналитическая химия нептуния. М.: Наука, 1971. 218 с.
14. Фролов А.А., Андрейчук Н.Н., Ротманов К.В. // Радиохимия. 1991. Т. 33, № 3. С. 104.
15. Васильев В.Я., Андрейчук Н.Н., Фролова Л.М., Фролов А.А., Ротманов К.В. // Радиохимия. 1985. Т. 27, № 3. С. 327.
16. Ротманов К.В., Андрейчук Н.Н., Васильев В.Я. // Радиохимия. 1993. Т. 35, № 4. С. 135.