

РИ-214

РИ-214

Радиовый институт им. В. Г. Хлопина

RI--214.

Б. А. Бибичев, В. В. Кожарин

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНО-РАСЧЕТНЫЙ МЕТОД
ОПРЕДЕЛЕНИЯ ВЫГОРАНИЯ
И ИЗОТОПНОГО СОСТАВА
ТОПЛИВА ВВЭР-440
ПО КОНЦЕНТРАЦИЯМ ^{134}Cs И ^{137}Cs

Препринт

Москва — ЦНИИатоминформ — 1990

УДК 621.039.524.4

Евблчев Б. А., Козарин В. В. Экспериментально-расчетный метод определения выгорания и изотопного состава топлива ВВЭР-440 по концентрациям ^{134}Cs и ^{137}Cs ; Препринт РИ-214. - М: ЦНИИатоминформ, 1990. - 25 с.

Рассмотрен экспериментально-расчетный метод определения выгорания и концентраций актиноидных элементов в твэлах и ОТЭС реакторов типа ВВЭР по экспериментальным значениям концентраций ^{134}Cs и ^{137}Cs в топливе. Показано, что погрешность расчета выгорания топлива и концентраций изотопов U и Pu в твэлах ВВЭР-440 составляет 1,3-4,9 % при условии, что погрешность измерения концентраций ^{134}Cs и ^{137}Cs составляет не более 1,7 и 1,2 %.

Bibichev B. A., Kosharin V. V. Experimental and computational method for determination of burn-up and isotopic composition of VVER-440 fuel using ^{134}Cs and ^{137}Cs concentrations; Preprint РИ-214. - М.: TsNIAtominform, 1990. - 25 p.

An experimental and computational method for determination of burn-up and actinoid concentrations in VVER fuel elements and assemblies using ^{134}Cs and ^{137}Cs concentrations in fuel is considered. It is shown that the error in calculation of fuel burn-up and U and Pu isotopes concentrations in VVER-440 fuel elements is 1,3-4,9 % provided that the error in ^{134}Cs and ^{137}Cs concentration measurements does not exceed 1,7 and 1,2 %.

①

Центральный научно-исследовательский институт
информации и технико-экономических исследований
во атомной науке и технике (ЦНИИатоминформ), 1990

Введение

Для проверки и уточнения реакторных программы необходимы экспериментальные данные о распределении выгорания топлива w и концентраций актиноидов n_A (A - массовое число нуклида) по высоте и поперечному сечению ОТВС. Получить такую информацию с помощью разрушающих методов достаточно сложно из-за большой трудоемкости и стоимости разрушающих измерений.

Для решения этих задач в [1] предложен метод изотопных корреляций (МКК). Этот метод основан на эмпирических зависимостях w и n_A от отношения активностей ^{134}Cs и ^{137}Cs в топливе, которое можно измерять в данной точке по высоте твэла или ТВС гамма-спектрометрическим методом без их разрушения.

Дальнейшее развитие МКК может быть связано с использованием результатов измерений концентраций некоторых долгоживущих продуктов деления или их отношений для расчета интегральной плотности потока нейтронов Φ , параметров спектра нейтронов и изотопного состава топлива [2-4]. Таким способом можно учесть локальные особенности спектра нейтронов, в котором формируется изотопный состав топлива в рассматриваемом твэле или ТВС. В двухгрупповом приближении для спектра нейтронов нахождение Φ и параметров спектра нейтронов сводится к нахождению плотности потока тепловых нейтронов Φ_0 и изотопности спектра нейтронов λ .

Выбор продуктов деления для вычисления Φ_n и α

Различные осколочные нуклиды, образовавшиеся в процессе выгорания топлива, имеют различные выходы при делении ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu и ^{238}U , различные периоды полураспада и различные зависимости сечений захвата нейтронов от энергии. Поэтому концентрации продуктов деления в общем случае должны зависеть от начального изотопного состава топлива, длительности облучения, а также от плотности потока и спектра нейтронов.

Поскольку история облучения ТВС (длительность облучения, относительная тепловая мощность в каждом периоде облучения) и начальный изотопный состав топлива известны из паспортных данных АЭС, то можно определять Φ_n и α по концентрациям или отношениям концентраций некоторых долгоживущих продуктов деления и вычислить изотопный состав топлива.

Наиболее пригодными для этой цели являются такие продукты деления, накопление которых в топливе различно зависит от Φ_n , α и концентрации ко. орых можно измерить гамма-спектрометрическим методом без разрушения твэлов и ТВС.

Наиболее полно этим требованиям удовлетворяет следующая пара изотопов Cs: ^{134}Cs и ^{137}Cs . Схема образования этих нуклидов приведена в /5/. ^{137}Cs является прямым продуктом деления ^{235}U , и концентрация его в топливе C_{137} в первом приближении по Φ_n пропорциональна флюенсу тепловых нейтронов /6/:

$$C_{137} \sim (b_{T,235}^f + d b_{S,235}^f) N_{235}(0) \Phi_n t, \quad (I)$$

где $b_{T,235}^f$ - эффективное сечение деления ^{235}U , усредненное по спектру нейтронов в тепловой группе; $b_{S,235}^f$ - эффективное сечение деления ^{235}U , усредненное по спектру нейтронов в энергетической группе; $N_{235}(0)$ - начальная концентрация ^{235}U в топливе; $\alpha = \Phi_S / \Phi_T$, где Φ_S - плотность потока быстрых нейтронов в интервале энергий 0,625 эВ < E < 10 МэВ.

Следует отметить, что для спектра нейтронов реактора ВВЭР-440 $b_{S,235}^f$ в несколько раз больше $d b_{S,235}^f$ (соответственно 236 и 70 с).

^{134}Cs образуется из ^{137}Cs в реакции (n, γ) . Аналогичное выражение для C_{134} во втором приближении по Φ_n имеет

следующий вид:

$$C_{134} \sim (\sigma_{T,133}^c + \alpha \sigma_{S,133}^c) (\sigma_{T,235}^f + \alpha \sigma_{S,235}^f) N_{235}(0) (\Phi_T t)^2, \quad (2)$$

где $\sigma_{T,133}^c$ и $\sigma_{S,133}^c$ - эффективные сечения захвата нейтронов на ^{133}Cs соответственно в тепловой и эпитепловой группах.

Для спектра нейтронов реактора ВВЭР-440 $\alpha \sigma_{S,133}^c$ значительно больше $\sigma_{T,133}^c$ (соответственно II5 и I5 б), поэтому $\sigma_{T,133}^c$ в (2) можно пренебречь и в этом случае получаем:

$$C_{134} \sim \alpha \sigma_{S,133}^c \sigma_{T,235}^f + \alpha \sigma_{S,235}^f N_{235}(0) (\Phi_T t)^2 \quad (3)$$

и
$$C_{134}/C_{137} \sim \alpha \sigma_{S,133}^c \Phi_T t. \quad (4)$$

Таким образом, если начальный изотопный состав и история облучения топлива известны, то по экспериментальным значениям C_{137} и C_{134} можно определить Φ_T и α . Если значение α известно из реакторно-физических расчетов, то для вычисления изотопного состава топлива достаточно определить только Φ_T по экспериментальному значению C_{137} или C_{134}/C_{137} .

Описание алгоритма вычисления Φ_T, α, w , концентраций актиноидов и продуктов делений

Изменение изотопного состава p актиноидов в процессе облучения топлива описывается следующей системой p уравнений:

$$\begin{aligned} dN_i(t)/dt = & -\lambda_i N_i(t) - (\sigma_i^c + \beta_i^f) \Phi_T N_i(t) + \\ & + \sum_{j=1}^{i-1} \lambda_{ji} N_j(t) + \sum_{j=1}^{i-1} \sigma_{ji}^c \Phi_T N_j(t) \end{aligned} \quad (5)$$

с начальными условиями $N_i(0) = N_{0i}$.

В системе уравнений (5) $N_i(t)$ - концентрация i -го нуклида в топливе (число ядер в элементарном объеме топлива); i меняется от 1 до p ; j принадлежит нуклиду - предшественнику i -го нуклида; $j < i$; λ_{ji} - постоянная α, β -распада или изомерного перехода j -го нуклида в i -й нуклид; σ_i^f, σ_i^c - одногрупповые сечения реакций $(n, f), (n, \sigma)$ i -го нуклида; σ_{ji}^c - одногрупповое сечение реакции (n, σ) или $(n, 2n)$ на

1-м нуклида с образованием 1-го нуклида. В двухгрупповом приближении для спектра нейтронов $\epsilon^{c,f} = \epsilon_1^{c,f} + \epsilon_2^{c,f}$.

В систему уравнений (5) были включены 16 актиноидов: ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{242}Am , ^{243}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm . Реакция (n , $2n$) учитывалась только на ^{238}U . При вычислении не учитывается деление ^{235}U , ^{238}Pu , ^{242}Am и ^{243}Cm . Аналитическое решение системы уравнений (5) в случае постоянства ϵ_{2n} приведено в /5/.

Накопление q продуктов деления можно описать следующей системой q уравнений /5/:

$$\begin{aligned} \frac{dC_1(t)}{dt} = & -\lambda_1 C_1(t) - \beta_1^c \Phi_T C_1(t) + \\ & + \sum_{l=1}^p Y_{1l} \beta_l^f \Phi_T N_l(t) + \sum_{m=1}^{l-1} \lambda_{m1} C_m(t) + \sum_{m=1}^{l-1} \beta_{m1}^c \Phi_T C_m(t) \end{aligned} \quad (6)$$

с начальными условиями $C_1(0) = C_{01}$.

В системе уравнений (6) C_1 - концентрация 1-го нуклида в топливе; l меняется от 1 до q ; m принадлежит ядру - предшественнику 1-го нуклида; $m < l$; Y_{1l} - независимый выход 1-го нуклида при делении l -го актиноида; λ_{m1} - постоянная распада m -го нуклида в 1-й; β_1^c - одногрупповое сечение реакции (n, γ') 1-го нуклида; β_{m1}^c - одногрупповое сечение реакции (n, γ') на m -м нуклиде с образованием 1-го.

В систему уравнений (6) включены только несколько долгоживущих продуктов деления, концентрация которых в топливе можно измерить гамма-спектрометрическим методом: ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{106}Ru , ^{144}Ce , а также предшественники этих нуклидов в цепочках радиоактивного распада и (n, γ')-реакции с периодом полураспада более суток (^{133}Xe , ^{133}Cs). Аналитическое решение системы уравнений (6) также приведено в /5/.

Для вычисления концентраций актиноидов и продуктов деления необходимы следующие величины и зависимости: зависимости $\beta_1^{c,f}$ и $\beta_{m1}^{c,f}$ от t или W для актиноидов и продуктов деления, число периодов облучения ТВС (n), длительности n -го периода облучения и охлаждения ($t_n^{одл}$ и $t_n^{охл}$).

Для упрощения вычислений для всех актиноидов, кроме ^{240}Pu , ^{242}Pu , использовались постоянные значения β_{γ} и β_{α} , которые были получены усреднением в интервале выгорания 0-50 кг/т U сечений, вычисленных по программе УНИРАСОС. Коэффициенты блошировки для ^{240}Pu , ^{242}Pu были получены с помощью

аппроксимации полиномами зависимостей $\sigma_{\gamma, 240}^C(N_{240})$ в $\sigma_{\gamma, 242}^C(N_{242})$, вычисленных также по этой программе.

Для продуктов деления использовались значения σ_T^C и резонансных интегралов Γ^C из файлов ENDF/V У. Для ^{133}Cs учитывалась блокировка $\Gamma_{\gamma, 133}^C$, так как от величины этого сечения зависит величина κ , определяемая по C_{134} . Зависимость $\Gamma_{\gamma, 133}^C(C_{134})$ для твэлов из UO_2 различного диаметра приведена в /6/. При вычислении $\Gamma_{\gamma, 133}^C(C_{134})$ в /6/ учитывается как эффект самоблокировки резонансов ^{133}Cs , так и эффект блокировки, связанный с частичным перекрытием основных резонансов (n, γ)-реакции на ^{133}Cs и ^{235}U .

Для реактора ВВЭР-440 зависимость $\Phi_T(t)$ определяется условием постоянства мощности:

$$\Phi_T(t) = \Phi_T(0) \frac{\sum_i E_i^f \sigma_{i1}^f n_i(0)}{\sum_i E_i^f \sigma_{i1}^f n_i(t)}, \quad (7)$$

где E_i^f - энергия, выделяемая при делении i -го нуклида; \sum_i - сумма по всем делющимся нуклидам; $\Phi_T(0)$ - значение Φ_T в начальный момент времени. Для упрощения расчетов зависимостью $\kappa(W)$ также пренебрегалось и использовалось постоянное значение κ , которое было получено усреднением зависимости $\kappa(W)$, вычисленной с помощью программы УНИРАСОС, в интервале выгорания 0-50 кг/т U.

Режим облучения ТВС состоит из нескольких периодов облучения длительностью около одного года с относительной тепловой мощностью P_n в n -м периоде и с остановкой реактора на перегрузку длительностью 30-60 сут после каждого периода облучения. В первом периоде облучения принимается $P_1 = 1$. При переходе от n -го периода облучения к $(n+1)$ -му значение Φ_T умножается на величину P_{n+1}/P_n . Значение P_n можно получить из данных АЭС о среднем выгорании топлива в ТВС в каждом периоде облучения по следующей формуле:

$$P_n = \frac{W_n - W_{n-1}}{W_1} \frac{t_1^{\text{обл}}}{t_n^{\text{обл}}}, \quad (8)$$

где \bar{w}_n - среднее выгорание топлива в ТВС после окончания n -го периода облучения.

Таким образом, рассматриваемая модель расчета изотопного состава топлива ВВЭР имеет два свободных параметра: $\Phi_T(0)$ и α , которые можно определить по экспериментальным значениям C_{137} и C_{134} .

Для реализации описанного выше алгоритма вычисления $\Phi_T(0)$, α , w и изотопного состава топлива реакторов ВВЭР написана программа ZOSRAT на языке ФОРТРАН IV. $\Phi_T(0)$ и α в этой программе вычисляются численно итерационным методом.

Структурная схема программы ZOSRAT приведена на рис. 1. Программа состоит из трех основных частей: подготовка входных данных; расчет концентраций актиноидов, продуктов деления и w ; вычисление поправок к $\Phi_T(0)$ и α . Периоды облучения разбиваются на временные интервалы t_k , в течение которых все переменные величины, входящие в уравнения (6), (7), сохраняются неизменными. Для сокращения времени вычислений было выбрано $t_k = 50$ сут, так как при изменении t_k от 10 до 50 сут расчетные значения концентраций всех актиноидов и продуктов деления, кроме ^{244}Cm и ^{106}Ru , изменяются менее чем на 1 %.

После вычисления концентраций актиноидов и продуктов деления с начальными значениями $\Phi_T(0)$ ($\Phi_T^0(0)$) и α (α^0) расчетные значения C_{137} и C_{134} сравниваются с экспериментальными и вычисляются поправки $\Delta\Phi_T(0)$ и $\Delta\alpha$ к $\Phi_T(0)$ и α .

При этом сначала вычисляется $\Delta\Phi_T(0)$ по $C_{137}^{\text{эксп}}$ и затем $\Delta\alpha$ по $C_{134}^{\text{эксп}}$ с найденным значением $\Phi_T(0)$. В качестве α^0 используется асимптотическое значение α ($\alpha_{\text{ас}}$), которое было вычислено по программе УНИРАСОС для данного обогащения топлива.

Результаты расчета изотопного состава топлива с асимптотическим значением α

Для оценки погрешности определения w_A в отработавшем топливе ВВЭР-440 экспериментально-расчетным методом были проведены измерения концентраций изотопов U, Pu, Am, Cm, а также $^{134,137}\text{Cs}$ в пробах топлива разрушающими методами. Для этого было отобрано 20 проб топлива с w от 20 до 40 кг/т U из трех ОТВС ВВЭР-440 Нововоронежской АЭС с начальным обогащением $\xi = 3,6$ %.

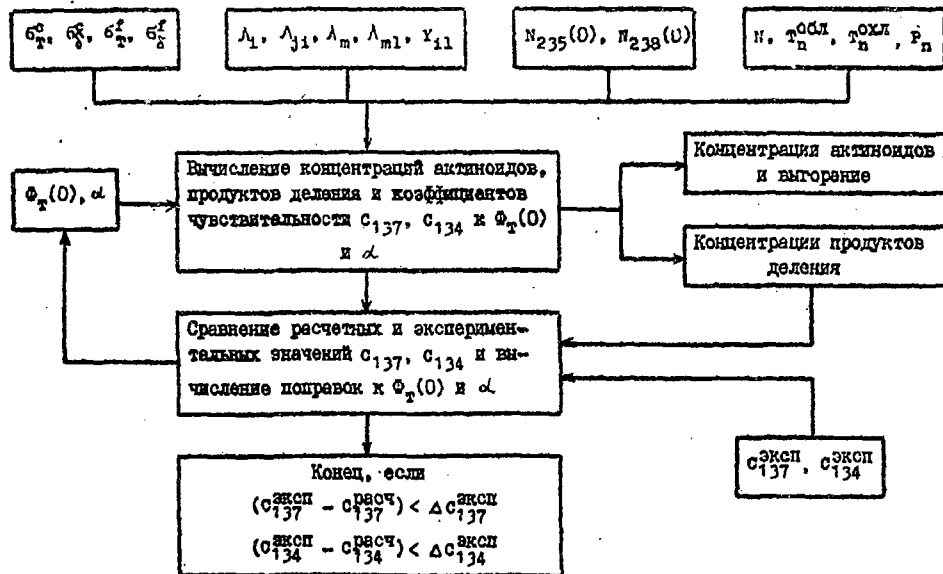


Рис. 1. Структурная схема программы SOKRAT

Пробы топлива представляли собой куски твэлов длиной несколько сантиметров, которые были вырезаны из твэлов внутренних рядов ТВС с асимптотическим спектром нейтронов (14 проб) и из твэлов внешнего ряда с неасимптотическим спектром нейтронов (6 проб). Каждый кусок твэла был растворен, и из раствора топлива были отобраны массовые алликваты для измерения концентраций изотопов U, Pu, Am, Cm, Nd и Cs в топливе /7/. Погрешность измерения концентраций изотопов U и Pu в различных пробах составила 0,4-2,0 %, Am и Cm - 4,0-30,0 % и W - 1,5-2,0 %. C_{137} и C_{134} измеряли гамма-спектрометрическим методом с погрешностью соответственно 1,2 и 1,7 %.

На рис. 2-6 приведены результаты расчета зависимостей $N_A(W)$ для топлива ВВЭР-440 с $\xi = 3,6$ % по программе SOSRAT с $\alpha = \alpha_{вс}$. На этих же рисунках приведены экспериментальные значения N_A в пробах топлива. Из рис. 2-6 видно, что для ряда нуклидов ($^{235,236}\text{U}$, $^{239,242}\text{Pu}$, ^{243}Am и ^{244}Cm) имеются систематические отклонения экспериментальных точек от расчетных кривых. Так, например, экспериментальные точки для ^{235}U находятся систематически ниже расчетных кривых, для ^{236}U - систематически выше и т. д. Аналогичные расхождения расчетных и экспериментальных значений N_A наблюдаются и в случае, когда расчетные значения N_A получены по программе УНИРАСОС /8/.

Средние относительные отклонения расчетных значений N_A , полученных по программам SOSRAT и УНИРАСОС, от $N_A^{\text{эксп}}$ в пробах с асимптотическим спектром нейтронов приведены в табл. I. Из этой таблицы видно, что для ряда нуклидов ($^{235,236}\text{U}$, $^{239,242}\text{Pu}$, ^{243}Am , ^{244}Cm) средние отклонения расчетных значений N_A , полученных как по программе SOSRAT, так и по программе УНИРАСОС, от $N_A^{\text{эксп}}$ значительно превышают $\Delta N_A^{\text{эксп}}$.

Можно также отметить, что значения $N_A^{\text{эксп}}$ для проб топлива с асимптотическим и неасимптотическим спектром нейтронов совпадают при близких значениях W в пределах разброса экспериментальных точек для всех нуклидов, кроме $^{239-241}\text{Pu}$. $N_A^{\text{эксп}}$ для проб топлива с неасимптотическим спектром нейтронов несколько меньше, чем для проб топлива с асимптотическим

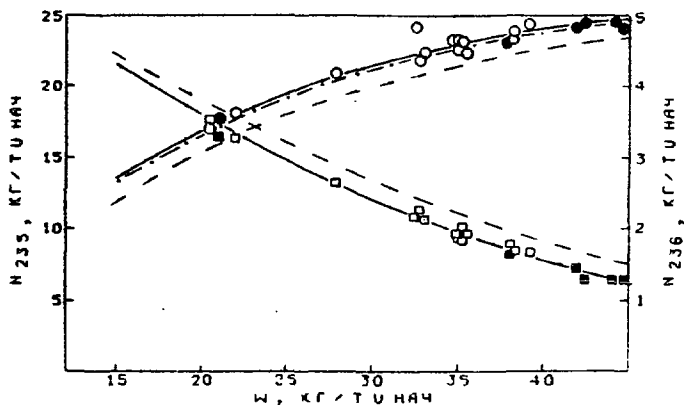


Рис. 2. Зависимости концентраций ^{235}U и ^{236}U (кг/т $\text{U}_{\text{нач}}$) от выгорания топлива:

- - - - расчет с неоткорректированными сечениями по программе SOSRAT; ——— расчет с откорректированными сечениями для асимптотического спектра нейтронов; - · - · - расчет с откорректированными сечениями для неасимптотического спектра нейтронов; □, ○ — экспериментальные значения соответственно N_{235} и N_{236} в пробах топлива с асимптотическим спектром нейтронов; ■, ● — экспериментальные значения соответственно N_{235} и N_{236} в пробах топлива с неасимптотическим спектром нейтронов

спектром, что связано с влиянием более мягкого спектра нейтронов в звенах внешнего ряда на накопление этих нуклидов.

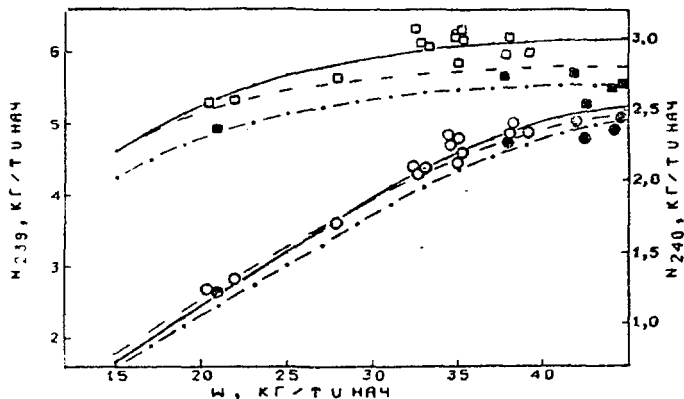


Рис. 3. Зависимость концентраций ^{239}Pu и ^{240}Pu (кг/т $U_{\text{нач}}$) от выгорания топлива:
 - - - - расчет с неоткорректированными сечениями по программе SOSRAT; — — — — расчет с откорректированными сечениями для асимптотического спектра нейтронов; - · - · - расчет с откорректированными сечениями для неасимптотического спектра нейтронов;
 □, ○ — экспериментальные значения соответственно N_{239} и N_{240} в пробах топлива с асимптотическим спектром нейтронов; ■, ● — экспериментальные значения соответственно N_{239} и N_{240} в пробах топлива с неасимптотическим спектром нейтронов

Корректировка эффективных сечений в случае асимптотического спектра нейтронов

Систематические отклонения расчетных значений N_A , полученных по программе SOSRAT с $\alpha = \alpha_{\text{ас}}$, от экспериментальных значений $N_A^{\text{эксп}}$ в пробах топлива с асимптотическим спектром нейтронов можно существенно уменьшить с помощью корректировки эффективных сечений /9/ по экспериментальным значениям

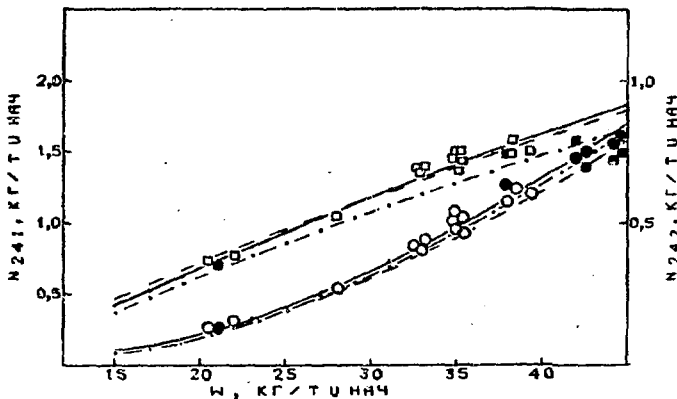


Рис. 4. Зависимости концентрации ^{241}Pu и ^{242}Pu (кг/т $\text{U}_{\text{нвч}}$) от выгорания топлива:
 - - - - расчет с нескорректированными сечениями по программе SOSRAT; — — — — расчет с скорректированными сечениями для асимптотического спектра нейтронов; - · - · - расчет с откорректированными сечениями для неасимптотического спектра нейтронов; \square, \circ - экспериментальные значения соответственно N_{241} и N_{242} в пробах топлива с асимптотическим спектром нейтронов; \blacksquare, \bullet - экспериментальные значения соответственно N_{241} и N_{242} в пробах топлива с неасимптотическим спектром нейтронов

$N_{\Lambda}^{\text{экс}}$ в пробах топлива. Методика корректировки \bar{b}_x и \bar{b}_y основана на МКК [9] и состоит в минимизации суммы квадратов отклонений $N_{\Lambda}^{\text{расч}}$ от $N_{\Lambda}^{\text{экс}}$ для n проб топлива с асимптотическим спектром нейтронов:

$$e(\vec{P}) = \sum_j \sum_i w_{j1} (N_{j1}^{\text{экс}} - N_{j1}(\vec{P}))^2 = \min, \quad (9)$$

где $N_{j1}^{\text{экс}}$ и $N_{j1}(\vec{P})$ - экспериментальные и расчетные значения концентрации i -го нуклида в j -й пробе; $\vec{P} = \{P_k; k = 1, \dots, L_p\}$ -

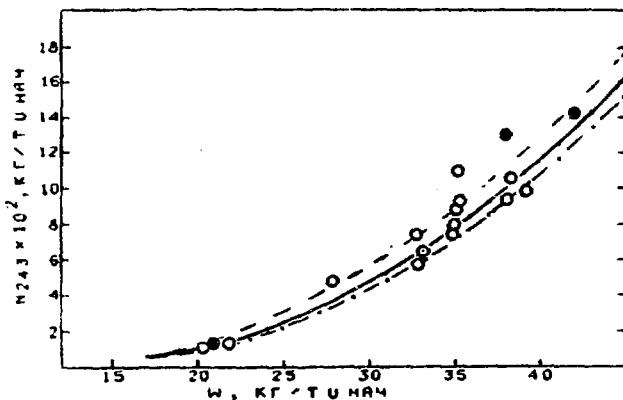


Рис. 5. Зависимость концентрации ^{243}Am (кг/т U_{NaCl}) от выгорания топлива:

--- расчет с неоткорректированными сечениями по программе SOSRAT; ——— расчет с откорректированными сечениями для асимптотического спектра нейтронов; - · - · - расчет с откорректированными сечениями для неасимптотического спектра нейтронов; O, ● - экспериментальные значения N_{243} соответственно в пробах топлива с асимптотическим и неасимптотическим спектром нейтронов

совокупность корректируемых параметров ($\delta C_T^{0,2}$, $\delta C_T^{0,2}$); $w_{j1} = (\Delta N_{j1}^{\text{эксп}})^{-2}$ - весовые множители ($\Delta N_{j1}^{\text{эксп}}$ - суммарная погрешность $N_{j1}^{\text{эксп}}$).

Функционал Φ нелинеен относительно параметров F . Поиск минимального значения функционала проводится с помощью линеаризации зависимости $N_{j1} = N_{j1}(F)$:

$$N_{j1}(F) = N_{j1}(F_0) + \sum_{k=1}^{l_p} \frac{\partial N_{j1}}{\partial F_k} \Delta F_k. \quad (10)$$

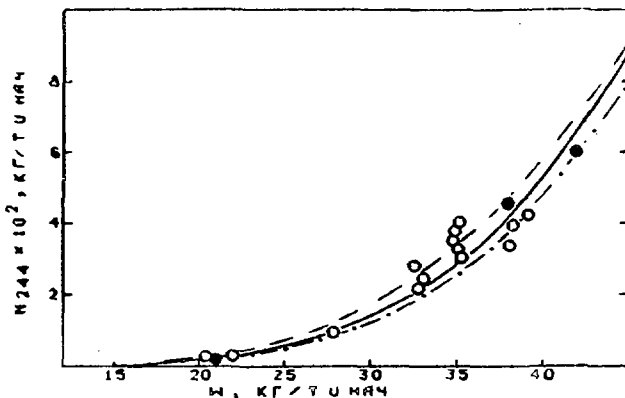


Рис. 6. Зависимость концентрации ^{244}Cm (кг/т $U_{\text{нач}}$) от выгорания топлива:

----- расчет с неоткорректированными сечениями по программе SOSRAT; ———— расчет с откорректированными сечениями для асимптотического спектра нейтронов; -·-·-·- расчет с откорректированными сечениями для неасимптотического спектра нейтронов; O, ● - экспериментальные значения N_{244} соответственно в пробах топлива с асимптотическим и неасимптотическим спектром нейтронов

где $\vec{P}_0 = \{P_k^0; k = 1, \dots, L_p\}$ - совокупность начальных значений корректируемых параметров; ΔP_k - поправки к начальным значениям параметров. Подставляя (10) в (9) и используя условие минимума функционала по приращению параметров:

$$\frac{\partial \theta}{\partial \Delta P_k} = 0; k = 1, \dots, L_p, \quad (\text{II})$$

получим систему линейных уравнений для определения ΔP_k :

Т а б л и ц а I

Средние относительные отклонения расчетных значений N_A , полученных по программам УНИРАСОС и СОСРАТ, от $N_A^{\text{ЭКСП}}$ в пробах топлива с асимптотическим спектром нейтронов

Изотоп	Средние погрешности измерения N_A , %	Средние отклонения $N_A^{\text{РАСЧ}}$ от $N_A^{\text{ЭКСП}}$, %		
		УНИРАСОС	СОСРАТ	СОСРАТ, откорр. сечения
^{235}U	0,4	- 10,5	- 11,6	+ 0,1
^{236}U	0,6	+ 4,7	+ 6,8	+ 0,2
^{239}Pu	0,8	- 0,8	+ 4,9	- 0,2
^{240}Pu	0,8	+ 3,1	+ 1,5	+ 0,2
^{241}Pu	1,5	- 2,1	+ 0,5	- 0,1
^{242}Pu	1,3	+ 6,2	+ 5,6	- 0,1
^{243}Am	5,8	- 20,4	- 17,6	+ 2,1
^{244}Cm	5,6	- 20,0	- 10,5	+ 2,6

$$\sum_j \sum_{k=1}^{L_p} \sum_i \bar{w}_{ji} \frac{\partial N_{ji}}{\partial P_k} \frac{\partial N_{ji}}{\partial P_1} \Delta P_k = \quad (12)$$

$$= \sum_j \sum_i \bar{w}_{ji} (N_{ji}^{\text{ЭКСП}} - N_{ji}(\bar{P}_0)) \frac{\partial N_{ji}}{\partial P_1}, \quad i = 1, \dots, L_p.$$

Для расчетов удобно преобразовать (12) к следующему виду:

$$\sum_j \sum_{k=1}^{L_p} \sum_i \bar{w}_{ji} \frac{\partial \ln N_{ji}}{\partial \ln P_k} \frac{\partial \ln N_{ji}}{\partial \ln P_1} \frac{\Delta P_k}{P_k} = \quad (13)$$

$$= \sum_j \sum_i \bar{w}_{ji} \frac{N_{ji}^{\text{ЭКСП}} - N_{ji}(\bar{P}_0)}{N_{ji}(\bar{P}_0)} \frac{\partial \ln N_{ji}}{\partial \ln P_1}, \quad i = 1, \dots, L_p,$$

где $\bar{w}_{ji} = (\Delta N_{ji}^{\text{ЭКСП}} / N_{ji}^{\text{ЭКСП}})^{-2}$.

Система уравнений (13) решалась по компактной схеме исключения. Значения $\Phi_T(0)$ и $N_{j1}(\bar{P}_0)$ для каждой пробы топлива вычисляются с помощью программы SOSRAT по $S_{137}^{\text{эксп}}$. Коэффициенты чувствительности $d \ln N_{j1} / d \ln P_k$ определяются по разностным формулам.

В результате решения системы уравнений (13) определяются значения параметров P_k :

$$P_k^1 = P_k^0 (1 + \Delta P_k / P_k^0), \quad k = 1, \dots, L_p, \quad (14)$$

где P_k^1 - откорректированные значения k -го параметра после первого шага корректировки. Полученные значения P_k^1 используются в качестве начальных значений параметров на втором шаге корректировки и т. д. Значения $\Phi_{T,j}(0)$ вычисляются один раз только перед первым шагом корректировки. Процесс корректировки заканчивается, когда средние относительные отклонения $N_A^{\text{расч}}$ от $N_A^{\text{эксп}}$ достигают минимального значения.

Перед началом корректировки необходимо из всей совокупности эффективных сечений, используемых в программе SOSRAT, выбрать набор корректируемых сечений. Число корректируемых сечений L не должно превышать число изотопов, концентрации которых были измерены в пробах топлива. В нашем случае $L < 10$, так как были измерены концентрации девяти актиноидов (^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{242}Pu , ^{243}Am , ^{244}Cm); C_{134} , C_{137} и экспериментальные значения концентраций ^{137}Cs использовались для вычисления $\Phi_T(0)$.

Для корректировки были выбраны следующие десять сечений: b_T^c для ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu ; b_8^c для ^{238}U , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{243}Am , ^{133}Cs и b_T^f для ^{235}U и ^{239}Pu . Расчет коэффициентов чувствительности N_A к b_T^c и b_8^c показал, что именно эти сечения наиболее сильно влияют на расчет изотопного состава топлива. При корректировке b_8^c для ^{240}Pu , ^{242}Pu и ^{133}Cs корректировались соответственно значения $b_{8,240}^c(0)$, $b_{8,242}^c(0)$ и $b_{8,133}^c(0)$.

Для оценки погрешности откорректированных значений b_T^c и b_8^c была проведена аналогичная корректировка тех же сечений по экспериментальным значениям $N_A^{\text{эксп}}$ в каждой из четырнадцати проб топлива с асимптотическим спектром нейтронов. По результатам корректировки были вычислены средние значения откорректированных сечений по всем пробам топлива \bar{b}_T^c и \bar{b}_8^c и средние квадратические отклонения b_T^c и b_8^c от \bar{b}_T^c и \bar{b}_8^c .

Результаты корректировки σ_T и σ_0 по $N_{ji}^{\text{эксп}}$ в каждой пробе топлива приведены на рис. 7-10 и в табл. 2. На рис. 7-10 приведены гистограммы распределения $\Delta R_{kj}/R_k^0 = (R_{kj} - R_k^0)/R_k^0$ для некоторых из корректируемых параметров ($\sigma_{1,235}^c$, $\sigma_{1,235}^f$, $\sigma_{0,240}^c$, $\sigma_{1,239}^c$), а в табл. 2 средние отклонения \bar{X}_k откорректированных значений R_{kj} от R_k^0 . Значения \bar{X}_k показаны стрелками на рис. 7-10. В табл. 2 приведены также средние квадратические отклонения $S_x(R_k)$ откорректированных значений R_{kj} для j -й пробы топлива от средних значений \bar{R}_k по всем пробам топлива и погрешности откорректированных параметров $\xi(\bar{R}_k)$ при доверительной вероятности $\Phi = 0,95$: $\xi(R_k) = t(\Phi, 1) S_x(R_k)/n$, где $t(\Phi, 1)$ - коэффициент Стьюдента при доверительной вероятности $\Phi = 0,95$ в числе степеней свободы $1 - n - 1$.

Значения $\Delta R_k/R_k^0$, полученные в результате корректировки R_k по совокупности экспериментальных значений $N_{ji}^{\text{эксп}}$ для четырнадцати проб топлива, также показаны стрелками на рис. 7-10. Следует отметить, что все значения $\Delta R_k/R_k^0$, полученные по совокупности значений $N_{ji}^{\text{эксп}}$, совпадают с \bar{X}_k в пределах $\xi(\bar{R}_k)$.

Результаты расчета зависимостей $N_A(w)$ по программе ZOSRAT с откорректированными сечениями и $\alpha = \alpha_{\text{ас}}$ приведены на рис. 2-6. Из этих рисунков видно, что в результате корректировки сечений значительно уменьшены систематические отклонения экспериментальных точек от расчетных кривых для всех куклидов, для которых эти отклонения наблюдались. Средние относительные отклонения расчетных значений N_A , полученных по программе ZOSRAT с откорректированными сечениями, от экспериментальных значений $N_A^{\text{эксп}}$ в пробах топлива с асимптотическим спектром нейтронов приведены в табл. 1. Из этой таблицы видно, что средние отклонения $N_A^{\text{расч}}$ от $N_A^{\text{эксп}}$ сравнимы с $\Delta N_A^{\text{эксп}}$.

Корректировка эффективных сечений в случае неасимптотического спектра нейтронов

Из-за водных эзоров между ТВС спектр нейтронов в твэлах внешнего ряда должен быть несколько мягче, чем в твэлах внутренних рядов. Поэтому для расчета N_A в твэлах внешнего

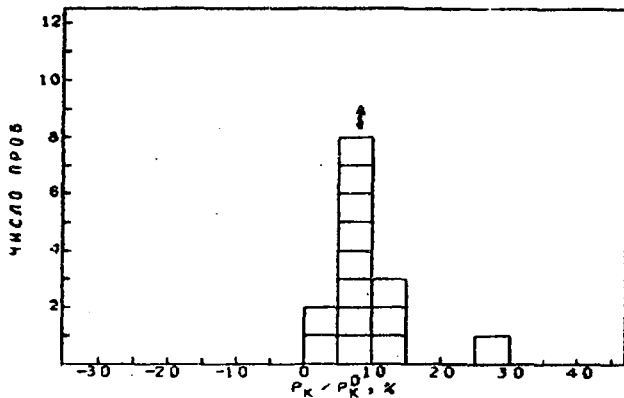


Рис. 7. Гистограмма распределения $\Delta B_{T,235}^G / B_{T,235}^G$

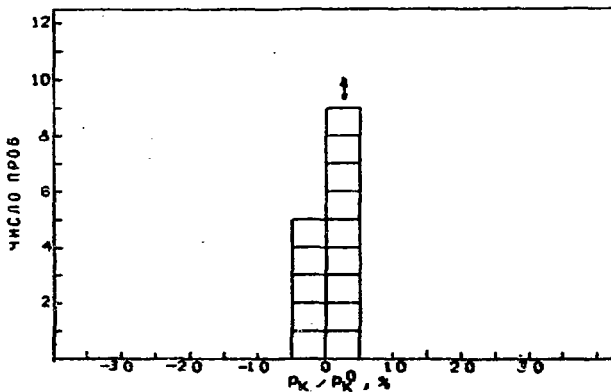


Рис. 8. Гистограмма распределения $\Delta B_{T,235}^T / B_{T,235}^T$

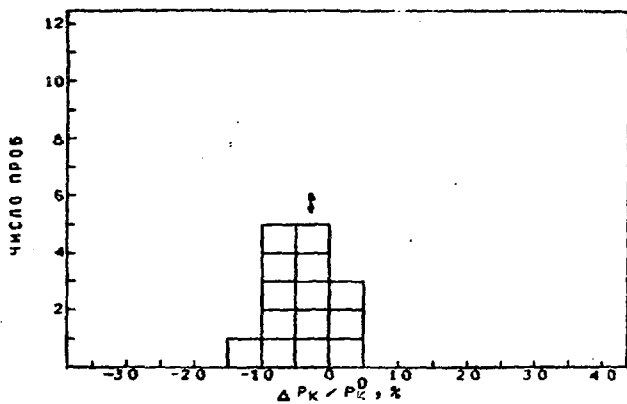


Рис. 9. Гистограмма распределения $\Delta b_{0,240}^c / b_{0,240}^c$

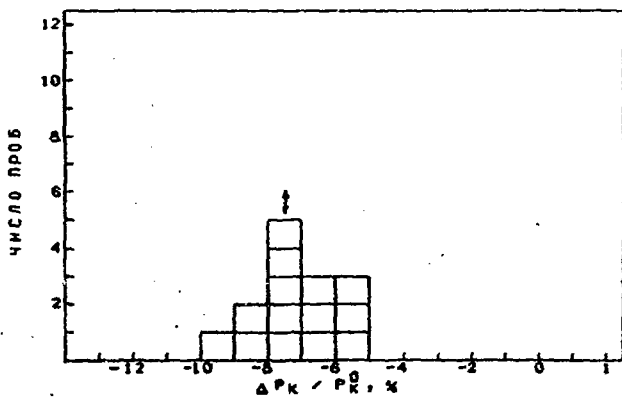


Рис. 10. Гистограмма распределения $\Delta b_{T,239}^c / b_{T,239}^c$

Т а б л и ц а 2
 Результаты корректировки β_T и β_0 по экспериментальным
 значениям N_A в пробах топлива

Корректи- руемый параметр	Пробы топлива из твэлов внутренних рядов			Пробы топлива из твэлов внешнего ряда		
	X_k , %	$S_T(P_k)$, %	$\xi(P_k)$, %	X_k , %	$S_T(P_k)$, %	$\xi(P_k)$, %
$\beta_{T,235}^c$	+ 8,7	6,4	3,7	+ 9,1	2,1	2,2
$\beta_{T,235}^f$	+ 1,2	1,7	1,0	+ 3,2	5,7	6,0
$\beta_{T,239}^c$	- 7,1	1,3	0,7	- 6,2	5,7	5,9
$\beta_{T,239}^f$	-27,4	9,6	5,5	-20,1	37,9	39,8
$\beta_{T,241}^c$	- 5,9	3,3	1,9	- 0,8	5,1	5,4
$\beta_0^c, 238$	-14,7	6,8	3,9	-14,7	6,8	3,9
$\beta_0^c, 240$	- 4,1	4,3	2,5	- 4,1	4,3	2,5
$\beta_0^c, 242$	-22,7	10,5	6,1	-22,7	10,5	6,1
$\beta_0^c, 243$	- 0,3	15,3	8,8	- 0,3	15,3	8,8
$\beta_0^c, 133$	+ 4,8	7,9	4,6	+ 4,8	7,9	4,6
α	Не корректировалось			- 6,9	0,2	0,2

ряда была сделана корректировка α и β_T ($\beta_{T,235}^c$, $\beta_{T,235}^f$, $\beta_{T,239}^c$, $\beta_{T,239}^f$, $\beta_{T,241}^c$) по экспериментальным значениям $N_A^{\text{эксп}}$ для шести проб топлива, полученных из твэлов внешнего ряда. Результаты этой корректировки приведены в табл. 2. Из таблицы видно, что откорректированные значения β_n для неасимптотического спектра нейтронов несколько больше, чем для асимптотического, а α соответственно на 6,9 % меньше. Поскольку значения $N_A^{\text{эксп}}$ были получены для небольшого числа проб топлива с неасимптотическим спектром нейтронов, то $\xi(\beta_k)$ в этом случае значительно больше, чем для проб топлива с асимптотическим спектром.

Результаты расчета зависимостей $N_A(\beta)$ по программе SOSRAT для неасимптотического спектра нейтронов приведены на рис. 2-6. Из этих рисунков видно, что расчетные зависимости $N_A(\beta)$ хорошо предсказывают величину различия $N_A^{\text{ЭКСП}}$ в твэлах внешнего и внутренних рядов для всех нуклидов, кроме ^{243}Am и ^{244}Cm . Для этих нуклидов разброс экспериментальных точек при близких значениях выгорания больше различия расчетных значений N_{243} , N_{244} для проб топлива с асимптотическим и неасимптотическим спектром нейтронов.

Результаты расчета изотопного состава топлива по концентрациям ^{134}Cs и ^{137}Cs

Набор откорректированных сечений для асимптотического и неасимптотического спектра нейтронов использовался далее для расчета выгорания и изотопного состава во всех двадцати пробах топлива по $\sigma_{134}^{\text{ЭКСП}}$ и $\sigma_{137}^{\text{ЭКСП}}$. В качестве примера в табл. 3 приведены экспериментальные значения выгорания и концентрации ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu в двадцати пробах топлива, а также отклонения расчетных значений этих величин от экспериментальных в каждой пробе топлива и средние квадратические отклонения по всем пробам топлива (СКО). Из табл. 3 видно, что отклонения расчетных значений β , N_{235} , N_{239} , N_{241} от экспериментальных приблизительно одинаковы для проб топлива с асимптотическим и неасимптотическим спектром нейтронов. СКО расчетных значений β и N_{235} , N_{239} , N_{241} от экспериментальных по всем пробам топлива составляет 1,5-3,8 %.

Оценка погрешности определения выгорания и концентраций актиноидов в пробах топлива и твэлах экспериментально-расчетным методом

Имеются два основных источника погрешности определения выгорания и концентрации актиноидов в топливе экспериментально-расчетным методом: погрешность измерения σ_{137} , σ_{134} и погрешность вычисления $\Phi_T(0)$, α и изотопного состава топлива по $\sigma_{137}^{\text{ЭКСП}}$ и $\sigma_{134}^{\text{ЭКСП}}$. В модели расчета $\Phi_T(0)$, α и изотопного состава топлива также имеются несколько источников погрешности: погрешность расчета эффективных сечений; погрешность

Т а б л и ц а - 3

Отклонения расчетных значений выгорания и концентраций ^{235}Pu , ^{239}Pu , ^{241}Pu от экспериментальных значений этих величин в пробах топлива (пробы 1 - 14 получены из твэлов внутренних рядов ТВС, пробы 15 - 20 - из твэлов внешнего ряда ТВС

Номер пробы	расч	Откл. расч. знач., %	^{235}Pu		^{239}Pu		^{241}Pu	
			расч	Откл. расч. знач., %	расч	Откл. расч. знач., %	расч	Откл. расч. знач., %
1	20,4	0,1	17,60	0,7	5,28	- 0,1	0,725	0,2
2	21,6	1,6	16,76	- 1,7	5,36	- 1,3	0,789	- 0,6
3	27,2	1,6	13,34	- 0,4	5,60	0,3	1,036	0,6
4	33,5	- 3,0	10,59	2,8	6,14	2,5	1,359	0,7
5	32,3	0,9	10,89	3,4	5,94	3,0	1,281	4,9
6	34,5	- 4,2	10,13	4,0	6,33	- 4,3	1,423	- 3,2
7	34,7	0,2	9,96	- 3,8	6,23	- 1,0	1,430	2,4
8	34,2	2,0	10,18	- 8,2	6,20	1,1	1,405	6,7
9	35,6	- 1,4	9,55	- 2,9	6,12	- 4,8	1,450	- 5,9
10	35,3	- 0,2	9,55	4,3	5,93	4,1	1,397	2,4
11	36,5	- 3,5	9,26	3,1	6,41	- 2,1	1,544	- 2,8
12	38,3	- 5,4	8,37	1,2	6,05	2,5	1,557	1,6
13	38,5	- 1,0	8,32	6,2	6,11	- 2,3	1,569	- 6,1
14	38,2	1,0	8,29	0,0	5,90	1,6	1,525	- 0,7
15	21,0	0,0	17,12	- 3,4	4,77	3,7	0,681	4,7
16	38,4	- 0,9	8,37	- 1,4	5,47	3,5	1,405	5,0
17	42,7	- 2,1	6,87	- 5,1	5,62	- 6,0	1,595	- 3,8
18	41,8	0,3	6,94	4,9	5,32	6,8	1,505	4,7
19	43,9	- 1,0	6,36	2,5	5,48	0,9	1,605	- 1,4
20	44,4	- 0,4	6,23	3,8	5,48	1,9	1,619	- 0,6
СКО, %	1,5		3,8		3,3		3,7	

П р и м е ч а н и е . Экспериментальные значения w , N_{235} , N_{239} и N_{241} приведены в к/г $U_{\text{нач}}$; отклонения расчетных значений от экспериментальных вычислялись по формуле $(N_{\text{расч}} - N_{\text{эксп}})/N_{\text{эксп}}$.

ядерно-физических констант; погрешность данных по истории облучения топлива (относительная тепловая мощность исследуемого твэла в каждом периоде облучения); приближенная, используемая в программе СОСРАТ при расчете изотопного состава топлива (двухгрупповое приближение для спектра нейтронов, независимость σ и σ_T от выгорания топлива и т. д.).

Эти источники погрешности в модели расчета изотопного состава топлива приводят к систематическим и случайным отклонениям расчетных значений выгорания и концентраций актиноидов, полученных с помощью программы СОСРАТ, от результатов измерения этих величин в пробах топлива радиохимическими методами.

Как было показано выше, с помощью корректировки эффективных сечений можно устранить все источники систематической погрешности в модели расчета изотопного состава топлива. Поскольку погрешности откорректированных сечений известны, суммарную погрешность определения N_A или w в пробе топлива для твэла с $\xi = 3,5\%$ можно оценить по формуле

$$\frac{N_A}{N_A} = \sqrt{\sigma^2(\sigma_k) + \varepsilon^2(c_{137}^{\text{эксп}}, c_{134}^{\text{эксп}})}, \quad (16)$$

где

$$\sigma(\sigma_k) = \sqrt{\sum_{k=1}^{L_p} \left(\frac{\partial \ln N_A}{\partial \ln \sigma_k} \frac{\Delta \sigma_k}{\sigma_k} \right)^2}. \quad (17)$$

$$\varepsilon(c_{137}, c_{134}) = \sqrt{\left(\frac{\partial \ln N_A}{\partial \ln c_{137}} \frac{\Delta c_{137}^{\text{эксп}}}{c_{137}^{\text{эксп}}} \right)^2 + \left(\frac{\partial \ln N_A}{\partial \ln c_{134}} \frac{\Delta c_{134}^{\text{эксп}}}{c_{134}^{\text{эксп}}} \right)^2}, \quad (18)$$

$\sigma_k \cdot \Delta \sigma_k$ - k -е откорректированное сечение и его погрешность;

$\Delta c_{137}^{\text{эксп}}/c_{137}^{\text{эксп}}$, $\Delta c_{134}^{\text{эксп}}/c_{134}^{\text{эксп}}$ - относительные погрешности $c_{137}^{\text{эксп}}$ и $c_{134}^{\text{эксп}}$. Коэффициенты чувствительности $\partial \ln N_A / \partial \ln \sigma_k$, $\partial \ln N_A / \partial \ln c_{137}$ и $\partial \ln N_A / \partial \ln c_{134}$ можно вычислять по программе SOSRAT.

Т а б л и ц а 4

Основные составляющие суммарной погрешности вычисления выгорания и концентрации актиноидов в пробах топлива или твэлах с асимптотическим спектром нейтронов и $w = 35$ кг/т U по $c_{137}^{\text{эксп}}$ и $c_{134}^{\text{эксп}}$

N_A или w	$\theta(\sigma_k)$, %	ξ , %	$\Delta N_A / N_A$ или $\Delta w / w$, %
w	0,07	1,3	1,3
^{235}U	2,10	1,7	2,7
^{236}U	2,10	0,5	2,2
^{239}Pu	4,20	1,4	4,5
^{240}Pu	4,80	1,0	4,9
^{241}Pu	4,10	2,1	4,7
^{242}Pu	3,70	3,2	4,9
^{243}Am	6,60	4,5	8,0
^{244}Cm	9,40	6,7	11,6

В табл. 4 приведены значения $\Delta w/w$, $\Delta N_A/N_A$ и составляющие этих погрешностей, вычисленные по формулам (17) - (18), для проб топлива или твэлов с асимптотическим спектром нейтронов, $\xi = 3,6$ % и $w = 35$ кг/т U. Из этой таблицы видно, что погрешность расчета выгорания и концентраций изотопов U и Pu составляет 1,3 - 4,9 % и основной вклад в $\Delta N_A/N_A$ вносит $\theta(\sigma_k)$. Вклад этой составляющей пренебрежимо мал только в $\Delta w/w$. Поэтому, если требуется определить экспериментально-расчетным методом только выгорание топлива, то корректировка сечений не нужна. Следует также отметить, что значения $\Delta w/w$ и $\Delta N_A/N_A$, приведенные в табл. 4, справедливы при условии, что погрешность измерения c_{137} и c_{134} составляет соответственно не более 1,2 и 1,7 %.

Для оценки погрешности расчета концентраций актиноидов в твэлах с неавсплотируемым спектром нейтронов необходима экспериментальная информация об изотопном составе топлива для значительного числа проб, полученных из таких твэлов.

Экспериментально-расчетный метод определения выгорания и изотопного состава топлива предполагается использовать для получения информации о распределении плотности потока тепловых нейтронов, жесткости спектра нейтронов, выгорания и концентрации актиноидов по сечению ОТЭС ВВЭР-440 и ВВЭР-1000, а также для неразрушающего контроля содержания делющихся изотопов в ОТЭС энергетических реакторов на заводах по переработке топлива АЭС.

Список литературы

1. Биличев Б. А., Майоров В. П., Протасенко Ю. М., Федотов П. И. Измерение выгорания топлива и содержания изотопов урана и плутония в ТВС ВВЭР-440 по отношению активности ^{134}Cs и ^{137}Cs . - Ат. энергия, 1988, т. 64, вып. 2, с. 147-150.
2. Биличев Б. А., Ловинко А. В., Майоров В. П. и др. Полуаналитический метод расчета изотопного состава урана и плутония в облученном топливе ВВЭР. - Ат. энергия, 1980, т. 48, вып. 5, с. 294-297.
3. Walewiec. Определение изотопного состава и содержания плутония на основе измерения отношения активностей $^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ и $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$. - Jaderna Energia, 1985, vol. 31, n 3, p. 105-109.
4. Зарипкая Т. С., Рудик А. П., Крутлов А. К., Рубцов П. А. Расчетно-экспериментальный метод определения ^{237}Np в отработавшем ядерном топливе. - Ат. энергия, 1982, т. 52, вып. 1, с. 60-62.
5. Ксеношкин В. М., Рубцов П. М., Ружанский П. А., Сидоренко В. Д. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива: Справочник. - М.: Энергоатомиздат, 1983.
6. Mehner M. C. Effective resonance integral of ^{133}Cs in reactor fuel elements. - Radiochem. Radionucl. Letters, 1980, vol. 43, n 1, p. 77-84.

7. Степанов А. В. и др. Определение выгорания и изотопного состава отработавшего топлива ВВЭР-440. - Ат. энергия, 1963, т. 55, вып. 3, с. 141-145.
8. Пшенин В. В. Описание програма: УНЬРАСОС и КАССЕТА. - ВАНТ. Сер.: Физика и техника ядерных реакторов, 1985, вып. 4, с. 3-9.
9. Luffin J., Szatmeri E., Vanuxem J. Adjustment of a burn-up code on chemical and isotopic analyses of irradiated fuels. - J. Nucl. Energy, 1972, vol. 26, p. 627-637.

Редактор И. П. Девя

Подп. в печ. 13.04.90. Т-08284. Формат 60 x 90 1/16
Офсет. печ. Печ. л. 1,5. Уч.-изд. л. 1,3. Тираж 130 экз.
Зак. № 151 Цена 20 коп. Индекс 3634

Отпечатано в Радиовом институте им. В. Г. Хлопина
197022, Ленинград, ул. Рахтгена, д. 1

2. коп.

Индекс 3624

Препринт ФН-214. И., 1990, 1-25