

УДК 539.1.074.55

НЕРАЗРУШАЮЩИЙ КОНТРОЛЬ ВЫГОРАЮЩЕГО ПОГЛОТИТЕЛЯ В МАТЕРИАЛАХ И ИЗДЕЛИЯХ ДЛЯ ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ

А.П. Омельник, В.В. Левенец, А.А. Щур

Национальный научный центр "Харьковский физико-технический институт",
61108, г. Харьков, Украина, ул. Академическая, 1.

E-mail: analytics@kipt.kharkov.ua

Поступила в редакцию 14 декабря 2005 г.

В работе продемонстрированы возможности разработанных в ННЦ ХФТИ аналитических установок для контроля выгорающих поглотителей на основе гадолиния. Отработана методика контроля состава выгорающего $UO_2-Gd_2O_3$ топлива с использованием метода рентгеновской флуоресценции с возбуждением рентгеновской трубкой на малогабаритной установке многоэлементного анализа "Элеан-2". Разработана и создана установка, отработана методика для одновременного неразрушающего контроля поверхностной плотности оболочки тепловыделяющего элемента и концентрации введённого в оболочку поглощающего элемента гадолиния, в которой применены методы рентгенорадиометрии и рентгеновской флуоресценции с возбуждением радиоизотопным источником.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: гадолиний, уран, выгорающий поглотитель, характеристическое рентгеновское излучение, K-, L-серия, поверхностная плотность.

С целью увеличения длительности кампании атомного реактора, для компенсации реактивности, выравнивания мощности по объему зоны и поддержания температурного коэффициента реактивности на заданном уровне в последнее время активно используются выгорающие поглотители (ВП). Долгое время в качестве ВП применялся ^{10}B преимущественно в виде соединения B_4C [1 с.137]. Поскольку бор несовместим с UO_2 , его обычно вводят в состав отдельных стержней выгорающего поглотителя [2 с.248, 3]. Среди известных поглотителей нейтронов ^{10}B заметно уступает гадолинию [4 с.206]. Гадолиний имеет уникальные свойства, связанные с высоким сечением поглощения нейтронов и скоростью выгорания, близкой (при оптимальном составе) к скорости выгорания ^{235}U . Эти свойства в сочетании с хорошей совместимостью с UO_2 и тем, что при его облучении не возникают дочерние продукты с высоким сечением захвата тепловых нейтронов, делают Gd привлекательным и перспективным ВП. Природный Gd состоит из семи стабильных изотопов, из них только ^{155}Gd и ^{157}Gd , имеющие максимальные сечения захвата нейтронов, пригодны для применения. При наличии гадолиниевого ВП для контролируемого изменения реактивности при выгорании ^{235}U необходимо точное знание скорости выгорания изотопов Gd.

ВП могут быть в виде композиции поглотитель-топливо, в виде легированных топливных оболочек, в виде пластин и стержней введённых в активную зону [5]. Основные недостатки ВП как самостоятельного конструкционного элемента: он занимает полезное место в тепловыделяющих сборках, увеличивая тем самым линейную мощность твэлов; в сборки вводится поглощающий нейтроны конструкционный материал; необходимо транспортировать и хранить облученные ВП. Работы по использованию Gd, как поглотителя нейтронов привели к созданию конструкции твэлов, в которых Gd вводится в виде порошка Gd_2O_3 непосредственно в порошок UO_2 перед изготовлением топливных таблеток. Совместимость Gd_2O_3 с UO_2 позволила объединить твэл с ВП в единый твэл-поглощающий элемент. Поскольку Gd находится в топливе, не требуется изменение размеров и конструкций тепловыделяющихборок. В странах бывшего СССР накоплен значительный опыт по применению ВП (реакторы ВВЭР, РБМК, судовые реакторы). Так, например, в России в настоящее время эксплуатируется 6 ледоколов и одно судно, на которых установлено 11 реакторов типа КЛТ-40. Активная зона подобного типа реакторов содержит около 167 кг урана с 90% обогащением, а в качестве выгорающего поглотителя используется естественный гадолиний [6]. Поглощающие стержни представляют собой цилиндрические трубы из нержавеющей стали с внешним диаметром 5,4 мм толщиной стенки 0,14 мм заполненные естественной смесью изотопов гадолиния. На протяжении нескольких последних лет топливные таблетки для реакторов типов ВВЭР, РБМК находящихся в эксплуатации в Украине и России с добавкой выгорающего поглотителя из оксида гадолиния выпускаются на Ульбинском (Казахстан) предприятии.

На всём протяжении разработок элементов с ВП проводились исследования направленные на их совершенствование, изучались их химические, теплофизические, механические свойства, процесс выгорания в зависимости от различных параметров (концентрация, размеры частиц, месторасположение в активной зоне) [7, 8, 9]. В последнее время перспективным является использование твэлов с профилированным содержанием Gd по их длине. Для разработки и производства таких элементов требуется неdestructивный, точный, экспрессный аналитический контроль как при отработке технологии изготовления, так и на различных стадиях производства. К настоящему времени установки для такого контроля разработаны такими фирмами, как, например, «General Electric», «Джапан ньюклар фьюэл» (Япония). Фирмой «General Electric» разработана установка комплексного

контроля твэлов с $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ топливом, в которой определение содержания Gd в таблетках и его распределение по длине твэла проводят магнитным методом [10] с помощью электромагнитов со сверхпроводящими обмотками. Принцип действия аппаратуры основан на регистрации различия в магнитной восприимчивости Gd_2O_3 и UO_2 (примерно в 170 раз). Задача осложняется из-за наличия в таблетках металлических включений, в частности железа. В среднем топливо содержит 0,01 % таких включений. В устройстве используется гамма-плотномер, состоящий из радиоизотопного источника излучения ^{137}Cs активностью $3,7 \times 10^{10}$ Бк, и блока детектирования с кристаллом из NaJ.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Малогабаритная аналитическая установка рентгенофлуоресцентного многоэлементного анализа «Элеан-2»

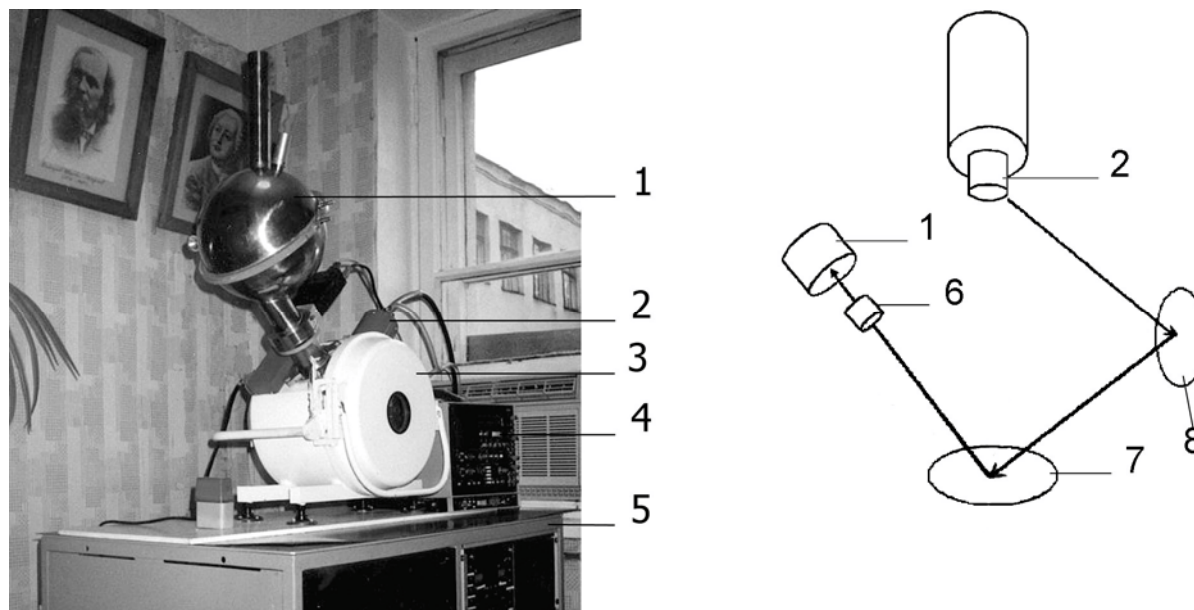


Рис. 1. Внешний вид и рентгенооптическая схема установки «Элеан-2».

- 1 – блок детектирования рентгеновского излучения, 2 – рентгеновская трубка с кожухом, 3 – измерительная камера, 4 – многоканальный амплитудный анализатор, 5 – блок питания рентгеновской трубки, 6 – коллиматор, 7 – измеряемый образец, 8 – вторичный излучатель.

Для неразрушающего контроля содержания гадолиния и урана в топливных таблетках может быть использован метод энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного анализа с возбуждением рентгеновской трубкой. В предлагаемой работе анализ материала топливных элементов проводился на установке «Элеан-2», разработанной и изготовленной в ННЦ ХФТИ [11]. Внешний вид установки показан на рис. 1. Установка предназначена для экспрессного автоматизированного определения массовой концентрации элементов, содержащихся в анализируемом веществе в диапазоне от 10^{-4} мас.% до 100 мас.%. За одно измерение может анализироваться до 15 элементов от К до U в порошкообразных, твердых и жидких пробах.

Облучение образца производится квазимонохроматическим поляризованным излучением. Это излучение формируется за счёт выбора рентгеноспектральной схемы рентгеновской трубки – вторичный излучатель – образец на основе трех взаимно перпендикулярных осей, а также с помощью одного из шести сменных вторичных излучателей, изготовленных из особоличистых материалов. Блок вторичных излучателей, позволяет получать квазимонохроматическое характеристическое рентгеновское излучение К-серии в диапазоне энергий от 10 до 35 кэВ. Это дает возможность определять элементы от К до Cd по К – серии и от Sn до U по L – серии и создавать оптимальные условия анализа для отдельных групп элементов. Характеристическое рентгеновское излучение К- и L-серий анализируемых элементов с энергией от 3 кэВ до 25 кэВ регистрируется блоком детектирования с Si(Li) кристаллом. Анализируемые образцы устанавливаются в кассету находящуюся в измерительной камере.

Процесс измерения полностью автоматизирован и управляется через персональный компьютер с помощью разработанного для этой цели программного обеспечения. До начала измерений составляется файл задания для работы программы, в котором можно задать следующие параметры: номер позиции в кассете для объектов (1 из 16 возможных); материал вторичного излучателя (1 из 6 возможных); напряжение на рентгеновской трубке; ток рентгеновской трубки; время набора спектра; количество повторов набора спектра; имена файлов, под которыми будут записаны спектры на магнитный носитель информации. После составления задания и запуска

программы на выполнение все последующие операции по измерению проходят в автоматическом режиме без участия оператора установки. Экспрессность анализа – до 10 объектов в час (производительность зависит от состава анализируемой пробы и от требуемой точности анализа).

Экспериментальная установка "УКРТ-1"

Как уже было указано выше, применение ВП возможно в виде использования легированных поглощающим элементом (гадолинием) топливных оболочек, например, труб, в которые помещено топливо. При производстве таких труб ставятся довольно жёсткие требования к контролю таких параметров, как толщина стенок и концентрация в них гадолиния. Как правило, требуется постоянство толщины и концентрации гадолиния по всей поверхности трубы. В связи с повышением требований к качеству конечного продукта, а также из-за высокой стоимости такого производства возникает потребность в выполнении высокоточного неразрушающего экспрессного анализа концентрации легирующей добавки с одновременным контролем толщины каждого изделия из таких материалов. В настоящее время уже достаточно хорошо отработаны вопросы определения толщины изделий, отработаны методические вопросы, определены метрологические характеристики, налажен выпуск необходимого оборудования. Также существует значительное количество приборов, использующих разные методы для анализа концентрации легирующих редкоземельных элементов (к которым относится Gd) в металлах и сплавах. Тем не менее, в случаях использования этих методов контроля они применяются по отдельности и осуществляют контроль одного параметра. В ННЦ ХФТИ разработан способ одновременного определения толщины (поверхностной плотности) исследуемых образцов и концентрации гадолиния в них [12]. Для реализации предложенного способа была разработана и создана экспериментальная установка и отработана методика, предназначенная для осуществления контроля толщины стенок труб и для определения распределения в них гадолиния для ряда материалов, используемых в ядерной энергетике.

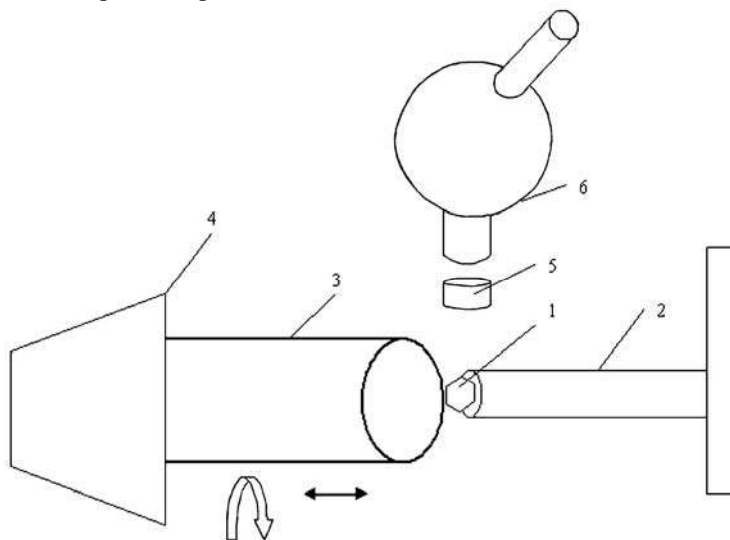


Рис.2. Схема установки для контроля оболочки тепловыделяющего элемента.

1 – радиоизотопный источник, 2 – держатель, 3 – контролируемый объект, 4 – узел передвижения объекта, 5 – коллиматор, 6 – блок детектирования.

Схема установки представлена на рис.2. Установка содержит радиоизотопный источник рентгеновского излучения ^{241}Am ; блок детектирования рентгеновского излучения с кристаллом на основе сверхчистого германия, или на основе кремния, легированного литием; спектрометрический тракт в линии с персональным компьютером. Источник укреплен на держателе и находится строго на оси измеряемой трубы. Источник излучения, образец, детектор размещаются на одной прямой. Перед входным окном блока детектирования установлен свинцовый коллиматор с отверстием диаметром 0,5 см. Механизмы движения в установке позволяют производить перемещение исследуемых объектов вдоль оси и вращать их. Регистрируемые спектры рентгеновского излучения обрабатываются на персональном компьютере с выдачей информации по двум контролируемым параметрам – толщине изделия и концентрации гадолиния.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Анализ ВП в ядерном топливе

При проведении анализа ядерного топлива, содержащем выгорающий поглотитель, были выбраны следующие параметры работы установки "Элеан-2": напряжение на аноде рентгеновской трубки – 50 кВ, ток трубки – 20 мА, вторичный излучатель – олово (энергия его $K_{\alpha 1}$ - линии равна 25,267 кэВ), время набора одного

спектра - 10 минут. На рис.3 приведен спектр смеси порошков окислов гадолиния и урана. Так как линии L-мультиплетов анализируемых элементов и линии K-мультиплета от вторичного излучателя из олова, не интерферируют между собой, то это упрощает обработку спектрометрической информации, снижает требования к величине энергетического разрешения применяемого блока детектирования, позволяет достичь высоких аналитических показателей по чувствительности и точности анализа. Этому способствует также подавление фона в канале регистрации характеристического излучения, связанное с применяемой в установке рентгенооптической схемой, основанной на взаимоперпендикулярном расположении осей пучков первичного излучения рентгеновской трубки, излучения вторичного излучателя и оси детектора.

Анализ проводился по методу внешнего стандарта. Для этого из порошков окислов гадолиния и урана был изготовлен набор калибровочных образцов, перекрывающих диапазон концентраций Gd от 0,1 мас.% до 10 мас.%. Спектры рентгеновского излучения обрабатывались на компьютере с помощью разработанной для этой задачи программы. В диапазоне исследуемых концентраций был построен градуировочный график, где была представлена зависимость отношения площади линий L α -серии гадолиния к площади линий L α -серии урана от значения концентрации гадолиния. Затем при тех же условиях были измерены топливные таблетки, содержащие ВП. Концентрация Gd определялась при использовании полученного градуировочного графика. Определение погрешности анализа осуществлялось в соответствии с требованиями нормативных документов путем измерения серий эталонных образцов (более 20 раз). Это позволило выяснить, что основной вклад в погрешность анализа дает этап пробоподготовки, и это связано с неоднородностью анализируемого объекта. Во всем диапазоне определяемых концентраций погрешность не зависит от нее и составляет 3% - 5% в диапазоне концентраций Gd от 10 мас.% до 1 мас.%. Полученные значения удовлетворяют требованиям на погрешность анализа при аттестации таких материалов.

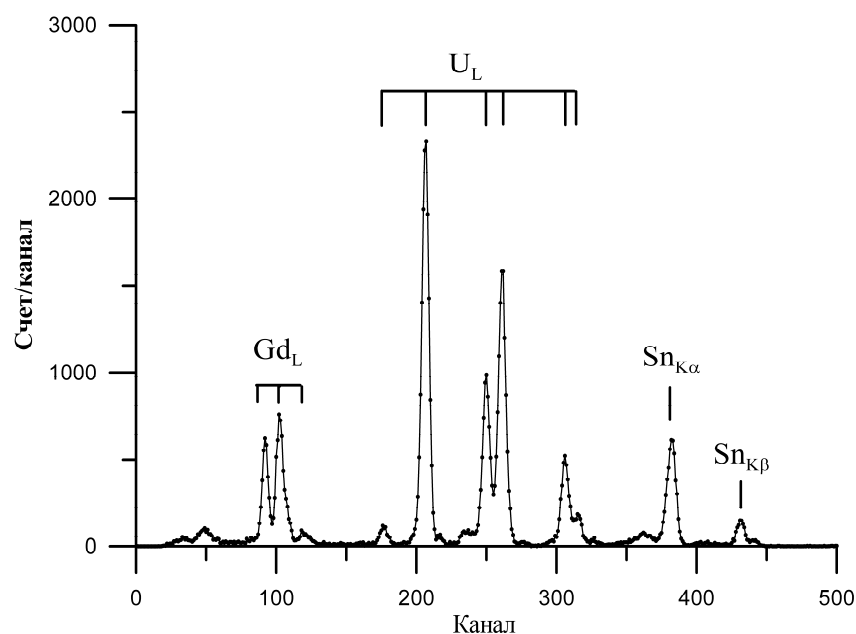


Рис. 3. Спектр характеристического рентгеновского излучения порошка $UO_2 + Gd_2O_3$.

Контроль оболочки тепловыделяющего элемента, содержащей ВП

На созданной установке "УКРТ-1" контролировались концентрация Gd и толщина трубы (чехла для топливных таблеток) из хромо-никелевой аустенитной стали, содержащей Gd в качестве ВП и имеющей толщину стенки примерно 0,05 см. Процесс контроля осуществлялся следующим образом. Вначале устанавливали контрольный образец известной толщины и состава и проводили набор спектра. По площади пиков, соответствующих энергиям 26,4 кэВ и суммарной площади пиков 42,99 кэВ и 42,30 кэВ (соответствующих линиям $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ характеристического рентгеновского излучения гадолиния) были определены интенсивности потока квантов с энергией ниже и выше K-края поглощения Gd. Затем устанавливался исследуемый образец. С помощью системы передвижения выбирался подлежащий контролю участок объекта и для него определялись аналогичные величины. По формулам, приведенным в [12, 13], вычислялись концентрация гадолиния и величина поверхностной плотности в выбранном участке изделия. Система передвижения позволяет проводить контроль определяемых параметров как по длине трубы, так и по её окружности. Тестовые измерения экспериментальной трубной заготовки показали, что её толщина в различных участках и концентрация гадолиния находится в заданных пределах. Сравнение полученных

значений концентрации и толщины с данными, полученными в ЦЗЛ другими способами выявило согласие в пределах погрешностей используемых методов.

ВЫВОДЫ

Созданные установки и отработанные аналитические методики позволяют определять концентрацию выгорающего поглотителя в уран-гадолиниевом топливе, а также проводить одновременный контроль толщины (поверхностной плотности) топливных чехлов в виде труб и концентрацию в них гадолиния.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гоzi М., Кахан Т. Управление ядерными реакторами. – Москва: Атомиздат, 1960. – 175с.
2. Ма Б.М. Материалы ядерных энергетических установок. – Москва: Энергоатомиздат, 1987. – 408с.
3. Казанский Ю.А. и др. Саморегулируемый реактор сверхмалой мощности для теплоснабжения «Мастер ИАТЭ» // Известия вузов. Сер. Ядерная энергетика. - 2003. – №3. – С.246-253.
4. Урсу И. Физика и технология ядерных материалов. – Москва: Энергоатомиздат, 1988. – 480с.
5. Горский В. В. Применение гадолиния в легководных реакторах // Атомная техника за рубежом. – 1987. – №3. – С.3-11.
6. Makarov V.I., Pologikh B.G., Khlopkin N.S., Mitenkov F.M., Panov Yu.K., Polinichev V.I., Yakovlev O.A.. Experience in building and operating of reactors system for civilian ships // Atomic Energy. – 2000. – V.89. – №3. – P.26-33.
7. Fukushima S., Ohmichi T., Maeda A. et. al. The effect of gadolinium content on the thermal conductivity of nearstochiometric (U, Gd)O₂ solid solution // J. Nucl. Mater. – 1982. – V.105. – P.201-210.
8. Beals R., Handwerk J. Solid solutions in the system urania-rare-earth oxides: I, UO₂-Gd_{1,5} // J. Amer. Ceram. Soc. – 1965. – V. 48. – №5. – P.271-274.
9. Ho S., Radford K. Structural chemistry of solid solution in the UO₂-Gd₂O₃ system // Nucl. Technol. – 1986. – V.73. – №3. – P.350-360.
10. Горский В. В. Неразрушающий контроль содержания делящихся материалов и гадолиния в твэлах LWR // Атомная техника за рубежом. – 1983. – № 9. – С.3–9.
11. Левенец В.В., Щур А.А., Омельник А.П., Запорожченко В.А. Анализ элементного состава платино-родиевых сплавов методом РФА // Заводская лаборатория. – 2003. – Т.69. – №5. – С.17-20.
12. Способ рентгенорадиометрического анализа. А.с. №1759143 G01N 23/223. Омельник А.П., Левенец В.В. (СССР).
13. Омельник А.П., Левенец В.В., Щур А.А. и др. Анализ гадолиния в реакторных сталях ядерно-физическими методами // ВАИТ. Сер. Вакуум, сверхпроводники, чистые металлы. – 2000. – №5(11). – С.76-78.

NONDESTRUCTIVE CONTROL OF THE BURNABLE ABSORBER IN MATERIALS AND PRODUCTS FOR NUCLEAR POWER

O.P. Omelnyk, V.V. Levenets, A.O. Shchur

National Science Center "Kharkov Institute of Physics and Technology"

6110. Academic 1 street, Kharkiv, Ukraine.

E-mail: analytics@kipt.kharkov.ua

This article demonstrates the possibilities of analytical installations developed in NSC KIPT for control of burnable absorbers on basis of gadolinium. The technique is developed for elemental content control of burning out UO₂-Gd₂O₃ fuel using the method of X-ray fluorescence with excitation by X-ray tube on small-sized installation of the multielemental analysis "ELEAN-2". The installation is developed and technique is checked for simultaneous nondestructive control of surface density of fuel cladding and concentration of the absorbing element gadolinium entered into a fuel cladding. This installation uses the methods of X-ray radiometry and X-ray fluorescence with excitation of X-ray emission by a radioisotope source.

KEY WORDS: gadolinium, uranium, burnable absorber, characteristic X-ray emission, K-, L-series, surface density.