

СРАВНИТЕЛЬНЫЙ АНАЛИЗ НЕРАЗРУШАЮЩИХ МЕТОДОВ КОНТРОЛЯ ^{235}U И ^{239}Pu В КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛАХ ПРИ ВЫСОКОМ УРОВНЕ ГАММА-ФОНА

М.Ю. Калёнова, А.В. Ананьев, П.Б. Басков, С.В. Складаров

*АО «Ведущий научно-исследовательский институт химической технологии»
115409 Россия, г. Москва, Каширское шоссе, д.33. ГК «Росатом»*



Рассмотрены потенциально возможные методы определения малых количеств делящихся материалов (ДМ) (0,001 масс. %) в условиях высокого гамма-фона, проведено их сравнение и выбор наиболее оптимального варианта контроля ядерных материалов (ЯМ) в отработанных тепловыделяющих сборках (ОТВС). С помощью численного моделирования установлено, что установка, основанная на методе пассивного нейтронного контроля, может использоваться для косвенного обнаружения ДМ при известных величинах выгорания и выдержки отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Проведено сравнение двух типов детекторов: ^3He -счетчики и камеры деления на основе ^{235}U . Показана перспективность использования ^3He -счетчиков на основе счетчика нейтронов СНМ-18 и отмечены недостатки пассивного контроля.

Наиболее оптимальным для решения поставленной задачи является метод активного нейтронного контроля. Расчетная модель установки показывает превышение сигнала над тройной погрешностью фона (внешнего и собственного от изотопов Cm) более 12-ти раз. Для повышения эффективности регистрации сигнала в состав установки внесены модификации, учитывающие неоднородность геометрического положения конструкционных материалов (КМ) в измерительной камере. Предложенная методика позволяет оперативно узнать содержание ^{239}Pu , ^{242}Cm , ^{244}Cm в ОТВС. После определения количества ^{239}Pu возможна оценка содержания других изотопов (Am, U, Np) за счет постоянства отношения массы ^{239}Pu к массе выявляемого актинида.

Ключевые слова: делящиеся материалы, активный контроль, ОТВС, конструкционный материал, ^3He -счетчик, гамма-фон.

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время в России реализуется проектное направление «Прорыв» в рамках ФЦП «Ядерные энерготехнологии нового поколения на период 2010 – 2015 гг. и на перспективу до 2020 года». Проектом предусмотрено создание опытно-демонстрационного энергетического комплекса с ЗЯТЦ на базе реактора БРЕСТ-ОД-300, включая пристанционный модуль переработки и обращения с облученным ядерным топливом (ОЯТ) и радиоактивными отходами.

© М.Ю. Калёнова, А.В. Ананьев, П.Б. Басков, С.В. Складаров, 2017

Ключевым параметром в разработке технологии переработки нитридного ОЯТ является количество потерь делящихся материалов, которое совместно с отходами не должно превышать 0,1%. Эта величина связана с целесообразностью максимального использования энергетического потенциала урана и плутония и с соблюдением принципов радиационно-эквивалентного захоронения РАО. Предполагается, что пирохимический передел нитридного ОЯТ будет включать в себя разборку ОТВС; механическую резку твэлов; отделение ОЯТ от КМ твэлов растворением последних в расплаве цинка; перегонку насыщенного раствора КМ в цинке, в результате чего чистый цинк вновь отправляется на растворение оболочек, а в кубовом остатке образуется крупка с составом, идентичным исходной стали ЭП-823, загрязненная ДМ. На доочистку должны поступать КМ твэлов внутрикассетного дожигаания америция, представляющие собой фрагменты стали ЭП-823 размером до 35 мм. Схема процесса представлена на рис. 1. Регламентированные потери актинидов совместно с отходами на данных технологических операциях не должны превышать 0,001%.

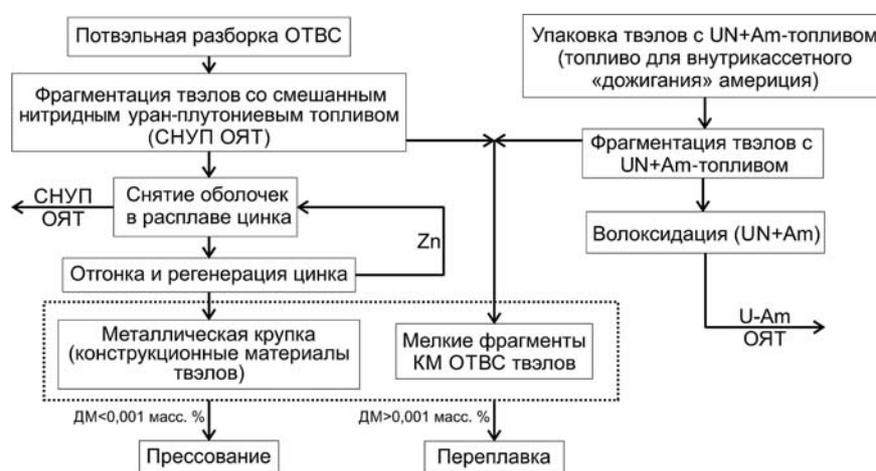


Рис. 1. Схема образования конструкционных материалов ОТВС и твэлов в пирохимическом переделе переработки нитридного ОЯТ

При обнаружении в КМ оболочек твэлов ДМ более указанной величины требуется производить их доизвлечение. В качестве базового варианта в аппаратурно-технологическую схему заложен процесс индукционно-шлакового переплава (ИШП) и оборудование для компактизации мелких фрагментов каркаса ОТВС, КМ твэлов U-Am-топлива и СНУП ОЯТ, характеризующихся высокой наведенной активностью (гамма-фоном). Определяющим фактором при выборе способа обращения с КМ ОТВС является содержание актинидов (U, Pu, Np, Cm, Am).

Рассмотрены различные варианты неразрушающих методов контроля и сопутствующего аппаратурного обеспечения, так как на данный момент нет утвержденных методик, позволяющих достоверно определить содержание изотопов U, Pu, Am, Cm и Np в КМ ОТВС в малых концентрациях до 0,001 масс.%. Задача заключалась в сравнении и выборе оптимального метода неразрушающего контроля ДМ в КМ ОТВС при высоком уровне гамма-фона (^{60}Co – 16 Ки/кг, ^{54}Mn – 160 Ки/кг). Дополнительной сложностью при решении задачи является различная конфигурация исходных материалов (табл. 1), влияющая как на пространственное размещение анализируемых КМ внутри приемной емкости, так и на коэффициент ее заполнения, при этом экспозиция измерения, согласно технологическим требованиям, не превышает 20 мин.

Таблица 1

Характеристика исходных материалов

Характеристика	Значение	Характеристика	Значение
Уровень удельной наведенной активности КМ, Ки/кг	385	Материал	Сталь ЭП-823, плотность 7,75 г/см ³
КМ оболочек твэлов (крупка), крупность, мкм	≈10	Приемная емкость	Сталь 12Х18Н10Т, объем 100 л, диаметр 340 мм, высота 1350 мм, толщина стенки 5 мм
КМ ОТВС и твэлов СНУП и U-Am, крупность, мм	до 35	Масса загрузки КМ (однократная), кг	25 – 30

ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ НЕРАЗРУШАЮЩИХ МЕТОДОВ КОНТРОЛЯ ДЕЛЯЩИХСЯ МАТЕРИАЛОВ В КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛАХ

Обнаружение и контроль ДМ в отходах возможны за счет регистрации собственного нейтронного или γ -излучения от урана или плутония, однако не все актиниды обладают высоким выходом нейтронов, а их фотонное излучение имеет сравнительно низкую энергию [1] и может экранироваться слоями поглощающих излучение материалов и наружными слоями ДМ.

Альтернативой системам пассивного контроля являются активные методы обнаружения ДМ, заключающиеся в облучении контролируемого объекта зондирующим излучением и регистрации ответного излучения [2, 3]. Детектирование излучения возможно как в режиме реального времени, так и через некоторое время после активации образца. В настоящее время КМ ОТВС, содержащие следы нитридного ОЯТ, загружают в приемную емкость – металлический бидон объемом 100 л. Розовая масса загрузки КМ составляет от 25-ти до 30-ти кг, при этом целевое минимально регистрируемое количество ДМ составляет ≤ 300 мг. На основании известных значений удельных активностей основных элементов, входящих в состав КМ (при условии выгорания 8% атомов и шести месяцев послереакторной выдержки ОТВС), были вычислены общие активности изотопов КМ и соответствующие им мощности доз (табл. 2).

Таблица 2

Активность и мощность доз по изотопам КМ [4]

Изотоп	⁵⁴ Mn	⁵⁵ Fe	⁶⁰ Co	⁵⁸ Co	Сумма
Активность изотопов в 30 кг КМ, Ки	~5000	~6000	~360	~40	–
K_γ	4,83	6,25	13,2	4,7	–
E_γ , МэВ	0,8	0,006	1,17; 1,33	0,8	–
M_d , кР/ч	~200	~400	~50	~2	~700

Расчет мощности дозы изотопа проводили в предположении точечного изотропного источника [5] по формуле

$$M_d = A \times K_\gamma / R^2, \tag{1}$$

где M_d – мощность дозы (Р/ч); A – активность (мКи); K_γ – γ -постоянная для каждого изотопа; R^2 – квадрат расстояния от точечного источника, равный 100 см².

Для выбора оптимального метода контроля ДМ в КМ полученные теоретические оценки мощности дозы уточнялись с помощью компьютерного моделирования, использующего открытое ПО GEANT4 [6].

ПАССИВНЫЙ МЕТОД КОНТРОЛЯ ДМ В КМ

Пассивные методы заключаются в непосредственной регистрации и определении характеристик ионизирующих излучений от источника [7, 8]. Они широко используются в области учета и контроля ЯМ, безопасности и нераспространения, в первую очередь, за счет относительно простой реализации, дешевизны и надежности. Но при контроле содержания малых количеств ДМ в КМ собственное γ -излучение ^{239}Pu (регистрируемое, например, по линии 413,7 кэВ) трудно выделить вследствие высокой наведенной активности изотопов, входящих в состав КМ. Кроме того, испускание нейтронов ^{239}Pu в результате спонтанного деления весьма незначительно из-за малой вероятности данного процесса $\sim 0,02$ н/(с·г) [1], что делает практически невозможным пассивный нейтронный контроль прямого определения ^{239}Pu . Количественно оценить содержание актинидов можно косвенным путем в предположении заранее известного отношения $m_{^{239}\text{Pu}} / (m_{^{242}\text{Cm}} + m_{^{244}\text{Cm}})$, зависящего от глубины выгорания топлива и времени выдержки ОЯТ [9]. Таким образом, выполнена оценка возможности реализации пассивного нейтронного контроля ДМ в КМ за счет регистрации нейтронов спонтанного распада изотопов ^{242}Cm и ^{244}Cm [10]. Нейтронный выход КМ, содержащих 0,001 масс. % ДМ, и его компоненты представлены в табл. 3.

Таблица 3

Общий нейтронный поток от КМ, содержащего 3 г ОЯТ (по данным НИКИЭТ им. Н.А. Доллежала)

Изотоп	I – интенсивность нейтронного выхода, н/(с·г)	m – масса нуклида в КМ с ОЯТ, г	Выход нейтронов, н/с
^{238}U	0,0136	2,2	0,03
^{239}Pu	0,023	0,26	0,006
^{240}Pu	929	0,1	93
^{242}Pu	1680	0,014	23,5
^{241}Pu	0,04	0,013	0,0005
^{238}Pu	2550	$\sim 0,003$	~ 8
^{241}Am	1	$\sim 0,003$	$\sim 0,003$
^{235}U	0,0003	$\sim 0,002$	$6,5 \cdot 10^{-7}$
^{243}Am	4	$\sim 0,002$	0,007
^{244}Cm	10000000	$\sim 0,0004$	~ 3900
^{242}Cm	22000000	$4,5 \cdot 10^{-5}$	~ 990
Сумма	–	–	~ 5000

Из данных таблицы видно, что выход нейтронов спонтанного деления изотопов ОЯТ составляет около 5000 н/с и определяется изотопами кюрия.

Расчетная модель представляет собой полиэтиленовый ($0,93\text{г/см}^3$) цилиндр с отверстием для установки приемной емкости, содержащей КМ ОТВС и окруженной свинцовой защитой необходимой толщины. Нейтронные детекторы расположены по периметру.

Была оценена толщина свинцовой защиты детектора от 1 МэВ гамма-квантов источника в предположении точечного изотропного источника согласно выражению

$$x = -\ln(\Phi/\Phi_0) / \mu = 17 \text{ см}, \quad (2)$$

где Φ_0 – 670 кР/ч; Φ – 1Р/ч; μ – линейный коэффициент ослабления гамма-излучения в свинце, равный $0,8 \text{ см}^{-1}$. Данное значение μ , соответствующее прохожде-

нию 1МэВ гамма-квантов через свинец, было выбрано исходя из подавляющего вклада изотопов ^{54}Mn и ^{60}Co в мощность дозы от 30 кг КМ (см. табл. 2). Полученное теоретическое значение необходимой толщины свинцовой защиты уточнено с использованием методов расчетного моделирования (табл. 4).

Таблица 4

**Мощность дозы КМ с ОЯТ.
L = 21 см соответствует началу свинцовой защиты**

Расстояние от центра зоны с КМ L, см	21	26	30	34	38	42
Расчетная мощность дозы, Р/ч	~250 тыс.	~8 тыс.	~360	~20	~2	~1

Поскольку выпускаемые пропорциональные ^3He -счетчики способны работать в гамма-полях с мощностью дозы до 10 Р/ч, выбранная толщина свинцовой защиты должна составлять не менее 20 см (табл. 4). Различие между аналитической оценкой (17 см) и расчетной величиной (22 см) объяснимо как равномерным распределением гамма-источника по объему КМ в контейнере, так и основным вкладом высокоэнергетичных гамма-квантов ^{60}Co в мощность дозы за свинцовой защитой.

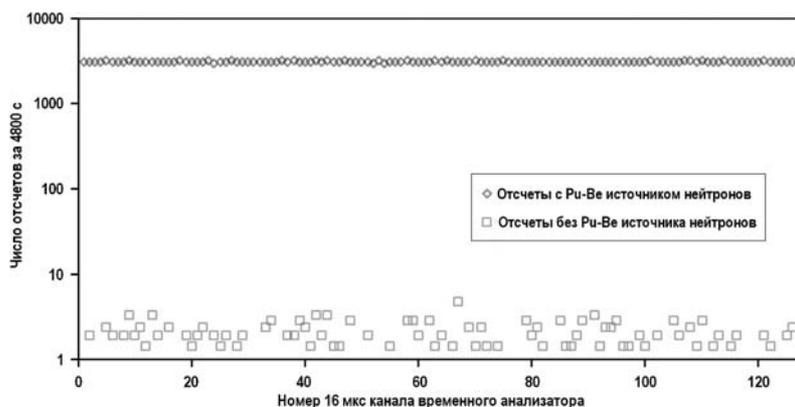
Для выбора оптимального положения нейтронных детекторов выполнено моделирование переноса собственного нейтронного излучения нитридного ОЯТ. Расчеты показали, что максимальная плотность потока тепловых нейтронов достигается на расстоянии 3 см за свинцовой защитой, что определяет положение нейтронных детекторов в установке.

В качестве альтернативы ^3He -счетчикам, представляющим собой алюминиевые цилиндры ($H = 50$ см, $R = 1,5$ см, $m_{\text{He}} = 0,17$ г), рассмотрены камеры деления на основе ^{235}U (5 г ^{235}U в единичной камере деления) с аналогичными геометрическими размерами, определены их расчетные оценки скорости счета. Полученные расчетные результаты показали нецелесообразность использования камер деления по сравнению с ^3He -счетчиками.

Выполнено численное моделирование переноса излучения от 2 МэВ изотропного источника нейтронов. Расчет показывает, что за 1000 с измерения число отсчетов, регистрируемое ^3He -счетчиком, окруженным 3 см полиэтилена, составляет ~ 140000, а для камеры деления данная величина меньше на полпорядка. Таким образом, нейтронное излучение КМ с ОЯТ может служить критерием определения содержания ^{239}Pu при заранее известном отношении изотопов и равномерном распределении ОЯТ в КМ ОТВС.

Для определения возможных погрешностей детектирования ДМ в КМ с использованием метода пассивного нейтронного контроля варьировалось положение нейтронного источника в КМ ОТВС. Энергетический спектр нейтронного источника полагался максвелловским со средним значением энергии 2 МэВ. Такой выбор обусловлен тем, что спектр нейтронов мгновенного деления хорошо описывается функцией Уатта [11]. Установлено, что положение источника влияет на результаты измерений. Отношение максимального сигнала к минимальному составляет 1,5 раза, т.е. ошибка детектирования количества плутония может превышать 50%.

Для проверки расчетов провели опыт с использованием модифицированного счетчика нейтронов СНМ-18 и Pu-Be-источника с выходом нейтронов 10^5 н/с. ^3He -счетчик, окруженный полиэтиленом, располагали вертикально; на расстоянии 50 см от него размещали Pu-Be-источник нейтронов. Количество отсчетов, зарегистрированное нейтронным детектором за 4800 с при использовании 128-канального временного анализатора с шириной окна 16 мкс (рис. 2), составляет ~ 400 тысяч, что дает скорость счета ~ 83 отсч/с; при этом фон счетчика составил 207 отсчетов за то же время измерения ($V_{\text{сч.ест}} = 0,04$ отсч/с).

Рис. 2. Скорость счета ^3He -счетчика при наличии и отсутствии Pu-Be-источника

Следовательно, в случае наличия нейтронного источника интенсивностью 5000 н/с, скорость счета нейтронного детектора составит ~ 4 отсч/с, что в 100 раз превышает собственный фон счетчика. Очевидно, что при естественном уровне фона и обязательном выполнении ряда условий контроля возможно обнаружение ДМ в КМ ОТВС пассивным нейтронным способом за счет детектирования нейтронов кюрия и постоянства отношения $m_{239\text{Pu}}/m_{\text{См}}$.

МОДИФИЦИРОВАННЫЙ АКТИВНЫЙ НЕЙТРОННЫЙ КОНТРОЛЬ ДМ В КМ

Одними из наиболее чувствительных методов обнаружения малых количеств ДМ являются методы активного нейтронного контроля, например, метод дифференциального затухания нейтронов [12]. Суть метода состоит в облучении исследуемого объекта замедленными и термализованными в измерительной камере нейтронами импульсного нейтронного генератора (ИНГ) и регистрации откликов нейтронов вынужденного деления детектором быстрых нейтронов (осуществляется регистрация надкадмиевых нейтронов детекторами медленных нейтронов за кадмиевым фильтром), скорость счета которых позволяет получить информацию о количестве ДМ в исследуемом объекте [13, 14].

Качественно временная зависимость плотности потока тепловых нейтронов в измерительной камере установки описывается уравнением баланса нейтронного потока [15]. Временная зависимость плотности потока тепловых нейтронов может быть представлена формулой

$$\Phi(t) = A \cdot \exp(-\alpha t) + B \cdot \exp(-\beta t) + \Phi_0, \quad (3)$$

где A , B – предэкспоненциальные множители; α – константа спада нейтронов, определяемая толщиной замедлителя за кадмиевым барьером; β – константа спада термализовавшихся нейтронов ДМ, определяемая общим количеством замедлителя системы; Φ_0 – сумма откликов запаздывающих нейтронов, нейтронов спонтанного деления различных нуклидов, (α, n) -реакций, а также фон помещения.

Отношение числа нейтронов деления к числу нейтронов источника дает нормированное число нейтронов деления (нормированный амплитудный коэффициент B/A), не зависящее от выхода нейтронов нейтронного генератора. Указанная величина B/A может быть связана с массой ДМ, размещенных в контейнере [16, 17].

На основании известных данных по установке активного нейтронного контроля в 60-литровом контейнере [18] смоделирована конструкция установки обнаружения ДМ в КМ ОТВС (рис. 3).

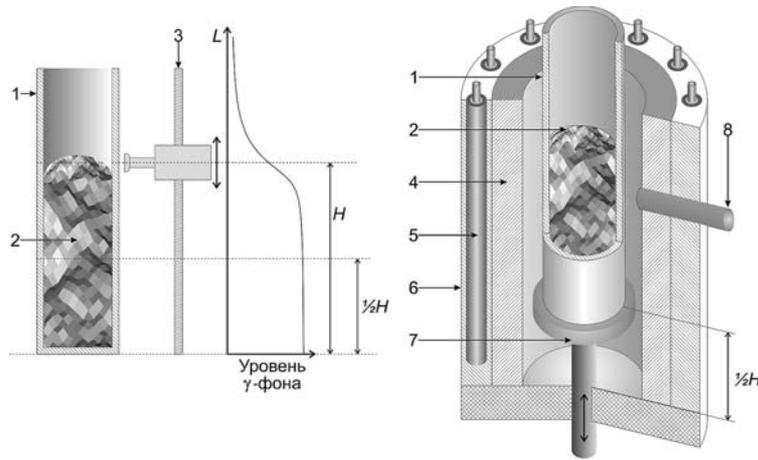


Рис. 3. Установка активного нейтронного контроля ДМ в КМ: 1 – приемная емкость; 2 – КМ; 3 – гамма-сканер; 4 – свинцовая защита; 5 – ^3He -счетчик в кадмиевой оболочке (15 штук); 6 – замедлитель из полиэтилена; 7 – подвижный пьедестал; 8 – 14 МэВ ИНГ

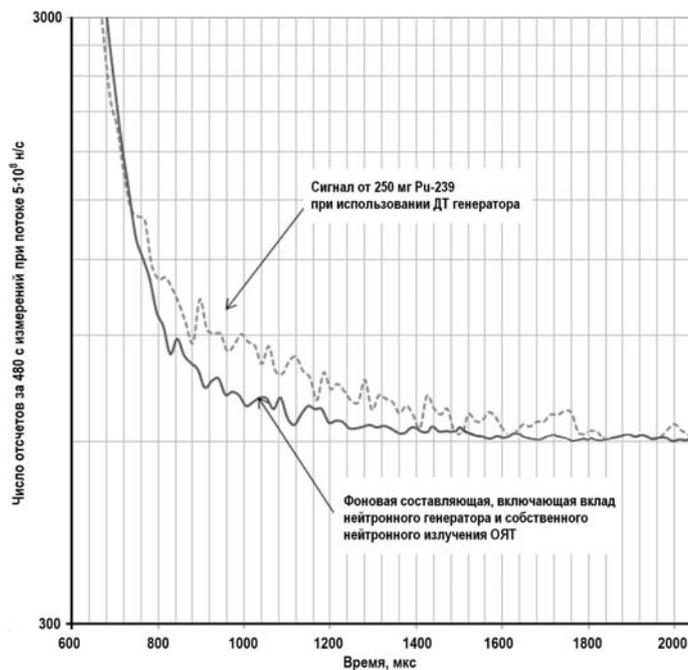


Рис. 4. Расчетные результаты активного нейтронного контроля. Флуктуации сигнала и фона определяются малой статистикой (n,p)-реакций на ^3He -счетчиках при моделировании Монте-Карло

Определены скорости счета ^3He -счетчиков при наличии 25 кг КМ в приемной емкости (рис. 4), при этом с учетом полученных ранее результатов пассивного нейтронного контроля фоновый сигнал и отклик от ДМ при использовании дейтерий-тритиевого генератора включают в себя собственное нейтронное излучение КМ ОТВС.

Возможный алгоритм определения количества ДМ в КМ ОТВС с использованием установки активного нейтронного контроля выглядит следующим образом.

1. Поступающую приемную емкость (100-литровый бидон) необходимо дистанционно сканировать по высоте с использованием спектрометра-радиометра. Зависимость числа отсчетов по высоте емкости (аналогично рис. 3) покажет распреде-

ление КМ внутри 100-литрового контейнера.

2. Проводится измерение фона при отсутствии 100-литровой емкости в экспериментальном помещении и выключенном ИНГ за выбранное время t (например, 16 мин).

3. Проводятся аналогичные п. 2 измерения при работающем ИНГ (вычисляются амплитудный коэффициент второй экспоненты (B), амплитудный коэффициент первой экспоненты (A) и их отношение B/A).

4. Емкость помещается в установку нейтронного контроля; с помощью подвижного дна 100-литровый контейнер располагается напротив нейтронных детекторов так, чтобы свинцовая защита полностью перекрывала активную часть контейнера, определенную в п. 1.

5. При установке контейнера нейтронные детекторы выключены во избежание их засветки, далее они включаются и проводится измерение фона за время t при выключенном ИНГ.

6. Полученные скорости счета в пп. 2 и 5 сравниваются друг с другом и вычисляется отношение разности (сигнал-фон) к тройной погрешности фона ($3 \cdot \text{фон}^{1/2}$). Если это отношение превышает единицу, то, используя калибровочную зависимость и измеренную разницу (сигнал-фон), можно определить содержания ^{239}Pu пассивным способом в случае выполнения условий, указанных ранее. Если же полученные результаты вызывают сомнение, то проводятся измерения с использованием активного нейтронного контроля.

7. Фиксируются число отсчетов второй экспоненты (B), амплитудный коэффициент A и их отношение B/A при наличии 100-литровой емкости с КМ, содержащим ОЯТ, и работающем ИНГ; далее берется разность $(B/A)_{\text{сигнал}} - (B/A)_{\text{фон}}$. Разность (сигнал-фон) сравнивается с тройной погрешностью фона аналогично п. 6.

8. Полученная разность (сигнал-фон) в п. 7 соотносится с калибровочной кривой, и вычисляется масса ^{239}Pu .

9. Возможные погрешности измерения, в первую очередь, определяются статистикой и пропорциональны квадратному корню из своего значения.

Проведена оценка превышения сигнала над тройной погрешностью фона, согласно [19], по формуле

$$\sum_{800}^{2048} \text{Сигнал} / \left(3 \cdot \sqrt{\sum_{800}^{2048} \text{Фон}} \right), \quad (4)$$

где $\Sigma \text{Сигнал}$ – количество зафиксированных отсчетов с 800 мкс при наличии КМ и трех граммов ОЯТ в измерительной емкости (250 мг ^{239}Pu); $\Sigma \text{Фон}$ – количество зафиксированных отсчетов фона с 800 мкс.

Двенадцатикратное превышение сигнала над тройной погрешностью фона соответствует величине минимально детектируемой массы $\text{ДМ} \sim 20$ мг ^{239}Pu за время регистрации, равное 8 мин.

Ключевой особенностью предложенной модели установки активного нейтронного контроля ДМ в КМ ОТВС является использование свинца, в том числе и в качестве размножителя нейтронов источника за счет (n, xn) -реакций. Расчетное моделирование показывает увеличение числа нейтронов до 60% при использовании 14 МэВ нейтронного генератора. При наличии 14 МэВ-источника [20] нейтроны, образовавшиеся в результате (n, xn) -реакций, после термализации будут также вызывать вынужденное деление ядер плутония, что увеличивает эффективность предлагаемого метода. Поскольку кроме ^{239}Pu в ОЯТ содержится ^{241}Pu , ^{235}U , т.е. изотопы, также делящиеся тепловыми нейтронами, регистрируемый сигнал будет включать в себя

вклад данных нуклидов. Получены расчетные оценки долей данных нуклидов в общем количестве мгновенных нейтронов деления: ^{239}Pu – 94%, ^{241}Pu – 5,7%, ^{235}U – 0,3%.

Как и при пассивном нейтронном контроле, для выяснения влияния размещения ДМ на регистрируемый сигнал варьировалось положение ДМ внутри измерительной емкости. Было выполнено сравнение отклика ^3He -счетчиков при равномерном размещении ДМ и положении ДМ в центре емкости, при этом для наглядности не учитывался нейтронный фон от изотопов Cm (рис. 5).

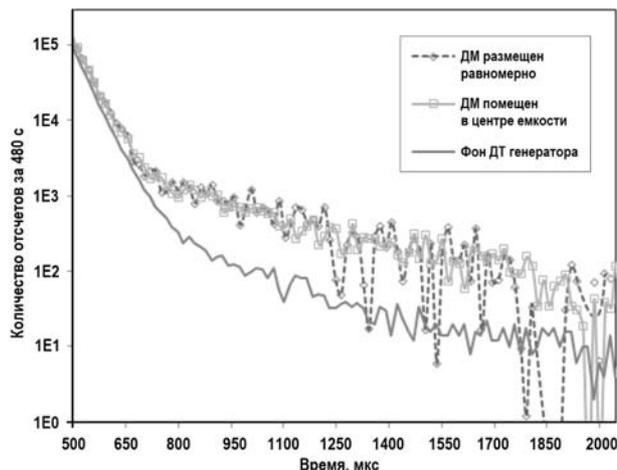


Рис. 5. Влияние положения ДМ на отклик ^3He -счетчиков при активном нейтронном контроле. Флуктуации сигнала и фона определяются малой статистикой (п,р)-реакций на ^3He -счетчиках при моделировании Монте-Карло

Источник задавался точечным изотропным, имитирующим работу 14 МэВ ИНГ, что на отклик ^3He -счетчиков положение ДМ внутри приемной емкости не влияет, поэтому погрешность измерения при использовании активного нейтронного контроля будет существенно ниже, чем при пассивном.

Установлено, что положение КМ ОТВС внутри приемной емкости может варьироваться за счет неравномерности размещения, что затрудняет достоверное обнаружение количества актинидов. Для исключения этой погрешности дно пьедестала сделано подвижным, что позволяет по результатам предварительного гамма-сканирования выставить центр массы КМ напротив ^3He -счетчиков и ИНГ для повышения эффективности регистрации сигнала. Из [21] известно о применении данной технологии при анализе цементированных РАО, направляемых на хранение. По высоте контейнера с РАО движется гамма-спектрометр-радиометр, измеряющий активность емкости. В области локализации активных нуклидов фиксируется сигнал; таким образом, получается «портрет» пространственного размещения РАО в емкости. С учетом пространственного распределения КМ приемная емкость за счет подвижного пьедестала выставляется так, чтобы центр масс КМ с ОЯТ находился посередине ^3He -счетчиков и напротив ИНГ. Данное технологическое решение позволяет увеличить эффективность регистрации нейтронов вынужденного деления ДМ в КМ.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнено сравнение неразрушающих методов контроля ДМ в ОТВС при высоком уровне гамма-фона от наведенной активности изотопов КМ для решения задачи контроля содержания малых концентраций ДМ (0,001 масс. %) в КМ ОТВС и твэлов массой до 30 кг. Показана возможность использования пассивного метода для детектирования актинидов косвенным способом за счет определения содержания ^{242}Cm и ^{244}Cm по

собственному нейтронному излучению. К недостаткам данного способа следует отнести высокую погрешность определения содержания ДМ в зависимости от его положения внутри приемной емкости. При этом тип топлива, выдержка и выгорание предполагаются заранее известными.

Показано, что оптимальным для решения поставленной задачи является метод активного нейтронного контроля. Расчетная модель установки демонстрирует более чем 12-кратное превышение сигнала над тройной погрешностью фона, что говорит о явном детектировании минимального количества ДМ. Преимуществами предложенного способа в сравнении с пассивным являются более высокая точность и меньшее время обнаружения. Кроме того, установка активного нейтронного контроля позволяет проводить измерения и в пассивном режиме, т.е. определять содержание Cm. Зная содержание ^{242}Cm , ^{244}Cm и ^{239}Pu , можно найти отношение $m_{^{239}\text{Pu}} / (m_{^{242}\text{Cm}} + m_{^{244}\text{Cm}})$, что позволяет достоверно оценить массы любых других актинидов, входящих в КМ ОТВС и твэллов с ОЯТ. Для исключения погрешности измерений, вызванной неравномерностью расположения КМ в модели установки, предусмотрен подвижный пьедестал, позволяющий выставить центр масс напротив ^3He -счетчиков и ИНГ для повышения эффективности регистрации сигнала, при этом требуется предварительное гамма-сканирование по высоте приемной емкости.

Сравнение различных типов детекторов (^3He -счетчики и камеры деления) показало перспективность использования ^3He -счетчиков на основе существующего счетчика нейтронов СНМ-18 при наличии свинцовой защиты необходимой толщины (не менее 20 см).

Литература

1. *Reilly Doug, Ensslin Norbert*. Passive nondestructive assay of Nuclear Materials. – Los Alamos National Laboratory, 1991. – 700 p.
2. *Бежунов Г.М., Кулабухов Ю.С. Матвеевко, И.П., Михайлов Г.М., Поплавко В.Я., Соловьев Н.А.* Активная система с импульсным нейтронным генератором для измерения количества делящихся материалов в контейнерах с отходами. / Трехсторонний семинар по оценке содержания и наличных количеств ядерных материалов в оборотах и отходах, 14-18 октября 2002 г. – Обнинск: ФЭИ, 2003. – С. 205-217.
3. *Runkle R.C., Chichester D.L, Thompson S.J.* Rattling nucleons: New developments in active interrogation of special nuclear material // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2011. – Vol. 663. – PP. 75-95.
4. *Блохин Д.А., Чернов В.М., Блохин А.И.* Ядерно-физические свойства ферритно-мартенситных сталей ЭК-181 и ЭП-823 при нейтронном облучении в реакторе БРЕСТ-300-ОД // ВАНТ. Серия: Материаловедение и новые материалы. – 2015. – № 3 (82). – С. 110-127.
5. *Лощаков И.И.* Введение в дозиметрию и защита от ионизирующих излучений. – СПб.: Издательство политехнического университета, 2008. – 145 с.
6. *Agostinelli S., Allison J.R., et al.* // Nucl. Instr. & Meth. in Phys. Res. A. – 2003. – Vol. 506. – PP. 250-303.
7. Passive Non-Destructive Assay based on gamma-ray spectrometry to verify UO_2 samples in the form of powder and pellet // Annals of Nuclear Energy. – 2016. – Vol. 87. – P. 2.
8. *Dubia C., Ridnick T., Israelashvili I., Bagi J., Huszti J.* A method for the estimation of fissile mass by measuring the number of neutron signals within a specific time interval // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 2012. – Vol. 673. – PP. 111-115.
9. Calculation of the Radionuclides in PWR Spent Fuel Samples for SFR Experiment Planning, Sandia National Laboratories, USA 2004. – 103 p.
10. *Mason J.A., Bondar L., Hage W., Pedersen B.H.* The advantages of neutron multiple correlation analysis. In: Proceedings of the 15th ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management. – Rome, 1993. – P. 355.
11. Таблицы физических величин. Справочник. / Под ред. акад. И.К. Кикоина. – М.: Атомиздат, 1976. – 1009 с.
12. *Raoux A.C., Lyoussi A., Passard C.* Transuranic waste assay by neutron interrogation and

online prompt and delayed neutron measurement // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 2002. – Vol. 207. – PP. 186-194.

13. Jordan K.A., Vujic J., Gozani T. Remote thermal neutron die-away measurements to improve Differential Die-Away Analysis // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2007. – Vol. 579. – PP. 407-409.

14. Jordan K.A., Vujic J., Phillips E., Gozani T. Improving differential die-away analysis via the use of neutron poisons in detectors // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. – 2007. – Vol. 576. – PP. 404-406.

15. Исаков А.И., Казарновский М.В., Медведев Ю.А., Метелкин Е.П. Нестационарное замедление нейтронов. Основные закономерности и некоторые положения. – М.: Наука, 1984. – 264 с.

16. Bogolubov Ye.P., Korotkov S.A., Korytko L.A. Method and system based on pulsed neutron generator for fissile material detection in luggage // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. – 2004. – Vol. 213 – PP. 439-444.

17. Batyaev V.F., Bochkarev O.V., Sklyarov S.V. Fissile materials detection via neutron differential die-away technique. // International Journal of Modern Physics. – Singapore, 2014. – Vol. 27. – PP. 1460130-1-1460130-8.

18. Batyaev V.F., Bochkarev O.V., Sklyarov S.V., Romodanov V.L., Chernikova D.N. Monitoring fissile and matrix materials in closed containers by means of pulsed neutron sources // Atomic Energy. – 2013. – Vol. 115. – No 2. – PP. 99-104.

19. Прохоров Ю.В. Вероятность и математическая статистика. / Энциклопедия. – М.: Большая Российская энциклопедия, 1999. – 914 с.

20. Курьянов Г.И. Генераторы быстрых нейтронов. – М.: Энергоатомиздат, 1990. – 224 с.

21. Van Iseghem P. Overview of Radioactive Waste Characterization at SCK-CEN / IAEA LABONET Meeting, Vienna 2013.

Поступила в редакцию 10.01.2017 г.

Авторы

Калёнова Майя Юрьевна, начальник отд. № 6 «Химические технологии ЗЯТЦ»
E-mail: kalenovam@yandex.ru

Ананьев Алексей Владиленович, директор по научной работе, д-р хим. наук
E-mail: ananievav@vniit.ru

Басков Петр Борисович, начальник лаборатории ВП-4, канд. техн. наук
E-mail: baskovpb@vniit.ru

Скляр Сергей Вячеславович, инженер лаборатории ВП-4, аспирант НИЯУ «МИФИ»
E-mail: svskl@mail.ru

UDC 621.039.5

IRRADIATED FUEL ASSEMBLY ^{235}U AND ^{239}Pu NON-DESTRUCTIVE CONTROL METHODS COMPARATIVE ANALYSIS AT HIGH GAMMA BACKGROUND LEVEL

Kalenova M.Yu., Ananiev A.V., Baskov P.B., Sklyarov S.V.

JSC «Leading Research Institute of Chemical Technology»
33 Kashirskoye shosse, Moscow, 115409 Russia

ABSTRACT

The potential small amounts (0,001 wt. %) of fissile materials determining methods at a high gamma background discussed and compared, the most appropriate for SFA nuclear material control was chosen. Passive neutron control possibility use for fissile materials Indirect detection (by ^{239}Pu) with ^{242}Cm , ^{244}Cm pre-determination shown by numerical

simulation. It is necessary to perform a number of conditions: $^{244}\text{Cm}/^{242}\text{Cm}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ ratio must be constant and known in advance; fissile materials should be evenly distributed within the container; background level should be significantly lower than its neutron radiation. Two detector types during passive method simulation setup were compared (^3He -counters and ^{235}U -based fission chambers). ^3He -counters use prospects are shown. Neutron coincidence method with Am-Li and Pu-Be isotopic neutron sources does not allow to reliably determine the fissile materials content due to registered couples small amount. It was revealed that an active neutron monitoring method is optimal for the task. The calculated installation model shows more than 12 times signal excess on triple background error, indicating uniquely fissile materials (for ^{239}Pu) minimum amount detection, wherein specimen vessel position does not affect on the recorded signal. Given the original structural material geometrical position heterogeneity in installation design amended as a pedestal moving bottom, allowing to set the specimen mass center in front of the ^3He -counters and neutron source to increase signal registration efficiency, wherein it requires a preliminary gamma scanning height receptacle to determine structural materials spatial distribution. The direct detection, higher accuracy, less time detection and passive mode workability are proposed method advantages. After ^{239}Pu determination evaluate the other isotopes content (Am, Cm, U, Np) is possible due to constant weight ratio ^{239}Pu to detected actinide mass, depending on fuel burn-up degree and post-reactor excerpt. Thus, the proposed method allows to quickly find ^{239}Pu , ^{242}Cm , ^{244}Cm content in SFA.

Key words: fissile materials, active control, SFA, structural materials, ^3He -counter, gamma background.

REFERENCES

1. Reilly Doug, Ensslin Norbert. Passive nondestructive assay of Nuclear Materials. Los Alamos National Laboratory, 1991. 700 p.
2. Bezhunov G.M., Kulabukhov Yu.S., Matveenkov I.P., Mychaylov G.M., Poplavko V.Y., Soloviev N.A. *Aktivnaya sistema s impul'snym neytronnym generatorom dlya izmereniya kolichestva delyashchikhsya materialov v konteynerakh s otkhodam* [Active system with a pulsed neutron generator for measuring the amount of fissionable materials in waste containers]. A tripartite seminar on the evaluation of the content and quantities of nuclear materials in circulation and waste, October 14-18, 2002. Obninsk. FEI Publ., 2003, pp. 205-217 (in Russian).
3. Runkle R.C., Chichester D.L, Thompson S.J. Rattling nucleons: New developments in active interrogation of special nuclear material. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 2011, v. 663, pp. 75-95.
4. Blokhin D.A., Chernov V.M., Blokhin A.I. *Yaderno-fizicheskiye svoystva ferritno-martensitnykh staley EK-181 I EP-823 pri neytronnom obluchenii v reaktore BREST-300-OD* [Nuclear-physical properties of ferritic-martensitic steels EC-181 and EP-823 under neutron irradiation in the BREST-300-OD reactor]. *VANT. Ser. Materialovedeniye i novyye materialy*, 2015, no. 3 (82), pp. 110-127 (in Russian).
5. *Vvedeniye v dozimetriyu i zashchita ot ioniziruyushchikh izlucheniyy*. [Introduction to dosimetry and protection from ionizing radiation.] St. Petersburg. Technical University Publ., 2008, 145p. (in Russian).
6. Agostinelli S., Allison J.R., Amako K., +121 authors, last Zschesche D. GEANT4 – a simulation toolkit. *Nucl. Instr. & Meth. in Phys. Res. A*. 2003, v. 506, pp. 250-303.
7. Passive Non-Destructive Assay based on gamma-ray spectrometry to verify UO_2 samples in the form of powder and pellet. *Annals of Nuclear Energy*. 2016, v. 87, p. 2.
8. Dubia C., Ridnick T., Israelashvili I., Bagi J., Huszti J. A method for the estimation of fissile mass by measuring the number of neutron signals within a specific time interval. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2012, v. 673, pp. 111-115.
9. Calculation of the Radionuclides in PWR Spent Fuel Samples for SFR Experiment Planning,

Sandia National Laboratories, USA 2004. 103 p.

10. Mason J.A., Bondar L., Hage W., Pedersen B.H. The advantages of neutron multiple correlation analysis. In: Proc. of the 15th ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management. Rome, 1993, p. 355.

11. *Tablitsy fizicheskikh velichin*. [Tables of physical quantities. Handbook]. Moscow. Atomizdat Publ., 1976. 1009 p. (in Russian).

12. Raoux A.C., Lyoussi A., Passard C. Transuranic waste assay by neutron interrogation and online prompt and delayed neutron measurement. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2002, v. 207, pp 186-194.

13. Jordan K.A., Vujic J., Gozani T. Remote thermal neutron die-away measurements to improve Differential Die-Away Analysis. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 2007, v. 576, pp. 404-406.

14. Jordan K.A., Vujic J., Phillips E., Gozani T. Improving differential die-away analysis via the use of neutron poisons in detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 2007, v. 576, pp. 404-406.

15. Isakov A.I., Kazarnovski M.V., Medvedev U.A., Metelkin E.V. p Transient slowing down neutrons. Basic laws and some provisions. Moscow. Nauka Publ., 1984. 264 p. (in Russian).

16. Bogolubov Ye.P., Korotkov S.A., Korytko L.A. Method and system based on pulsed neutron generator for fissile material detection in luggage. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*. 2004, v. 213, pp. 439-444.

17. Batyaev V.F., Bochkarev O.V., Sklyarov S.V. Fissile materials detection via neutron differential die-away technique. *International Journal of Modern Physics*, Singapore. 2014, v. 27, pp. 1460130-1-1460130-8.

18. Batyaev V.F., Bochkarev O.V., Sklyarov S.V., Romodanov V.L., Chernikova D.N. Monitoring fissile and matrix materials in closed containers by means of pulsed neutron sources. *Atomic Energy*. 2013, v. 115, no. 2, pp. 99-104.

19. Prokhorov Yu.V. *Veroyatnost' i matematicheskaya statistika*. [Probability and mathematical statistics]. Encyclopedia. Moscow. Bolshaya Rossiyskaya Encyclopediya Publ., 1999. 914 p. (in Russian).

20. Kir'yanov G.I. *Generatory bystrykh neytronov*. [Fast neutron generators] Moscow. Energoatomizdat Publ., 1990. 224 p. (in Russian).

21. Van Iseghem P. Overview of Radioactive Waste Characterization at SCK-CEN. IAEA LABONET Meeting, Vienna 2013.

Authors

Kalenova Maya Yurievna, Head of Department

E-mail: kalenovamu@yandex.ru

Ananiev Aleksey Vladilenovich, Research Director, Dr. Sci. (Chemistry)

E-mail: ananievav@vniit.ru

Baskov Petr Borisovich, Head of Laboratory, Cand. Sci. (Engineering)

E-mail: baskovpb@vniit.ru

Sklyarov Sergey Vyacheslavovich, Engineer, PhD Student NRNU «MEPhI»

E-mail: svskl@mail.ru