

# ПРИМЕНЕНИЕ МАТЕМАТИЧЕСКОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ ДЛЯ РАСШИРЕНИЯ ОБЛАСТИ ПРИМЕНИМОСТИ МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЙ МАССЫ $^{235}\text{U}$ В ТВЕРДЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДАХ

**Н.С. Рыков, Г.М. Бержунов, В.М. Горбачев**

*АО «ГНЦ РФ-ФЭИ им. Лейпунского»*

*249033, г. Обнинск, Калужской обл., пл. Бондаренко, 1*



При определении массы (активности)  $^{235}\text{U}$  в твердых радиоактивных отходах  $\gamma$ -спектрометрическим методом используется известная зависимость абсолютной эффективности от энергии и пространства для конкретных условий измерения. Система ISOCS позволяет обойтись без трудоемких и затратных по времени градуировочных измерений с использованием стандартных образцов при получении кривой абсолютной эффективности, поскольку применяется так называемый «охарактеризованный» детектор, имеющий файл с набором эффективностей для различных геометрий измерений.

Во многих случаях создание набора стандартных образцов с параметрами, перекрывающими диапазон измерения массы  $^{235}\text{U}$  в диапазонах изменения влияющих факторов, включая плотность, неравномерность, изотопный состав, геометрию и т.д., является очень дорогостоящим, а чаще всего невозможным. Исходя из этого был принят расчетно-экспериментальный подход с применением результатов, полученных методом Монте-Карло по программе MCNP с вариацией основных влияющих параметров в широких диапазонах.

Выполнены расчеты спектров  $\gamma$ -квантов, регистрируемых детектором, от контейнера, в котором находились отходы, различающиеся по плотности содержимого контейнера (плотность вычислялась с учетом содержащегося в отходах урана) – от 0.016 до 1 г/см<sup>3</sup>, по массе урана в отходах – от 0.64 г до 2 кг, по материалу матрицы – графит, целлюлоза, кварц, целлюлоза с 20% железных опилок.

Определены границы применимости разрабатываемой методики измерений урансодержащих отходов по матрице материала (~ 2.2%), ее плотности (~ 10%) и оценен вклад неопределенности массы урана в контейнере (5% для плотных матриц, 10% для пористых матриц) в получаемый результат.

**Ключевые слова:** неразрушающий анализ ядерных материалов, твердые радиоактивные отходы, масса урана,  $\gamma$ -спектрометрия, система ISOCS, кривая абсолютной эффективности, метод Монте-Карло, программа MCNP, методика измерений, диапазон методики измерений.

## ВВЕДЕНИЕ

Целью контроля контейнеров с урансодержащими твердыми радиоактивными отходами (ТРО) является определение массы (активности)  $^{235}\text{U}$  в контейнерах. Блок детектирования высокого разрешения и программное обеспечение In Situ Object Counting Systems (ISOCS) [1, 2] компании Canberra являются системой, позволяющей за приемлемое время решить поставленные задачи. Градуировка по эффективности системы проводится с использованием математического аппарата, реализованного в данном программном обеспечении (ПО). В соответствии с законом «Об обеспечении единства измерений» [3] требуется разработка и аттестация в установленном порядке методики измерений (МИ). При разработке МИ массы (активности)  $^{235}\text{U}$  в ТРО с матрицами из легких материалов (хлопчатобумажные, резинотехнические изделия, мусор и т.п.) для проведения исследований использовались имеющиеся в АО «ГНЦ РФ-ФЭИ» образцы хорошо охарактеризованного изотопного состава и массы урана (паспортные данные о массе и изотопном составе урана в них получены разрушающими методами) в виде раствора уранилнитрата. Кюветы из пластмассы диаметром 20 мм с толщиной стенки 3 мм содержали 8 мл раствора уранилнитрата с массой урана от 0.4 до 2 г. Общее число использованных кювет 10 штук. Применение небольших кювет с раствором уранилнитрата позволило минимизировать эффект самоэкранировки  $\gamma$ -излучения в образце. При реальных измерениях пространственное распределение использованных образцов по измеряемой матрице и вращение объекта измерений (контейнера с ТРО) позволили достичь высокого уровня гомогенности ядерных материалов (ЯМ) в образцах с точки зрения регистрации гамма-излучения с энергией 185.7 кэВ.

Используемая при разработке МИ методика [4 – 6] предполагает отсутствие значимого количества твердых включений значительных размеров (несколько миллиметров и более) из материала с высоким  $Z$  в матрице ТРО и соблюдение требования равномерности распределения по объему как плотности ТРО, так и массы (активности)  $^{235}\text{U}$ . В реальности включения все же имеются, и их влияние необходимо оценивать. В программной части системы ISOCS есть подпрограмма косвенной оценки этого фактора – «Тестер отношений». Для снижения влияния неравномерности распределения массы (активности)  $^{235}\text{U}$  в матрице ТРО на результаты измерения контейнер (здесь и далее под контейнером подразумевается 120-литровая бочка) в процессе измерения вращается.

При определении массы (активности)  $^{235}\text{U}$  в ТРО  $\gamma$ -спектрометрическим методом требуется использование известной зависимости абсолютной эффективности от энергии и пространства для конкретных условий измерения. Применение ISOCS позволяет обойтись без трудоемких и затратных по времени градуировочных измерений с использованием стандартных образцов (СО) при получении кривой абсолютной эффективности, поскольку применяется так называемый «охарактеризованный» детектор, имеющий файл с набором эффективностей для различных геометрий измерений.

Во многих случаях создание набора аттестованных объектов (АО) с параметрами, перекрывающими диапазон измерения массы  $^{235}\text{U}$  в диапазонах изменения влияющих факторов, включая плотность, неравномерность, изотопный состав, геометрию и т.д., является очень дорогостоящим, а чаще всего невозможным. По этой причине в мировой практике развивается применение расчетных методов для моделирования экспериментов [7 – 9]. Правомочность их использования подтверждена многочисленными исследованиями. Поэтому для разработки МИ был принят расчетно-экспериментальный подход. В дополнение к результатам выполненных измерений использовались расчетные данные, полученные методом Монте-Карло по программе MCNP [10 – 14] с вариацией основных влияющих параметров в широких диапазонах.

В измерениях использовались однотипные контейнеры с модельными матрицами разной плотности – от 0.016 г/см<sup>3</sup> до 0.708 г/см<sup>3</sup>. Для диапазона массы  $^{235}\text{U}$  от 0.25 до

1.8 г (20 – 140 кБк) включительно измерения проводились непосредственно на моделях с АО. В диапазоне массы  $^{235}\text{U}$  в ТРО от 1.8 до 100 г (140 ч 8000 кБк) исследования выполнялись расчетными методами ввиду отсутствия представительных СО.

### АППАРАТУРА, ИСПОЛЬЗУЕМАЯ ПРИ ИЗМЕРЕНИЯХ

Для выполнения исследований использовалась система ISOCS в следующей комплектации:

- тележка мобильного перемещения с системой позиционирования блока детектирования;
- блок детектирования (заранее охарактеризованный производителем) высокого разрешения коаксиального типа производства фирмы Canberra;
- боковая защита и набор коллиматоров;
- портативная спектрометрическая станция InSpector-2000;
- персональный компьютер с предустановленным программным обеспечением для набора и анализа спектров Genie-2000 и программой «Мастер геометрий» системы ISOCS.

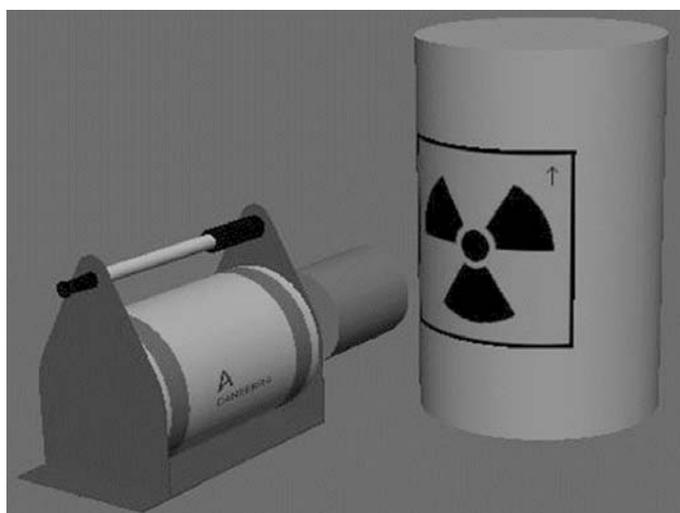


Рис. 1. Схема геометрии измерений в ISOCS

Геометрия измерений, реализованная программными средствами системы ISOCS, представлена на рис. 1. Кристалл блока детектирования торцом направлен в геометрический центр боковой поверхности бочки. Расстояние от поверхности бочки до среза блока детектирования 33 см. При этом расстоянии детектор видит весь объем бочки через использованный коллиматор. Бочка с матрицами (моделями) ТРО – это цилиндр со стальной стенкой толщиной 1 мм, внутренним диаметром 463 мм и высотой 720 мм.

Для выполнения анализа при помощи программы «Мастер геометрий» используются  $\gamma$ -пики в диапазоне 140 – 220 кэВ, в котором находятся основные  $\gamma$ -пики  $^{235}\text{U}$ . Для количественного анализа  $^{235}\text{U}$  используется интенсивный и хорошо выделяемый  $\gamma$ -пик 185.7 кэВ.

Для энергетической градуировки  $\gamma$ -спектрометра применяются источники из комплекта ОСГИ и (или) образцы урана. После анализа  $\gamma$ -спектра урана подпрограмма «Тестер отношений» позволяет, анализируя пики  $^{235}\text{U}$  143.8, 163.3 и 185.7 кэВ, определять степень однородности распределения  $^{235}\text{U}$  в измеряемом контейнере с ТРО.

Для измерений контейнер с ТРО устанавливался на платформу, оснащенную устройством вращения, которая обеспечивала его равномерное вращение. Масса контейнера с ТРО измерялась напольными весами CAS тип DBII-150 с диапазоном взве-

шивания 10 – 150 кг. Плотность матрицы определялась из весовых измерений при условии полного заполнения объема бочек.

### МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ДЕТЕКТОРА

Для программы MCNP была создана математическая модель системы детектор-контейнер. Для упрощения расчетов предполагалось, что внешние рассеиватели излучения (стены) отсутствуют. При этом в модели присутствовали как сам контейнер, в котором размещались различные материалы, имитирующие матрицу предполагаемых отходов, так и свинцовый коллиматор детектора, аналогичный использованному в измерениях.

Поперечный разрез выбранной модели HPGe-детектора представлен на рис. 2.

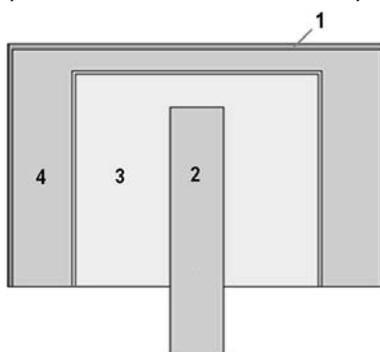


Рис. 2. Поперечный разрез модели блока детектирования детектора: 1 – алюминиевая крышка с углеродным окном; 2 – канал для подвода проводов к кристаллу детектора; 3 – кристалл детектора; 4 – вакуумный зазор

Конструкция детектора в выбранной модели отражает его характеристики, известные из приводимых фирмой Capbeta описаний. Для уточнения геометрических параметров кристалла и подтверждения правильности созданной модели детектора были измерены спектры источника  $^{152}\text{Eu}$  из комплекта образцовых спектрометрических  $\gamma$ -источников (ОСГИ). Было проведено две серии измерений:

- образец находился напротив детектора на его оси на расстоянии 33 см от торца;
- образец смещен на 20 см по оси, перпендикулярной оси детектора.

Условия экспериментов были смоделированы в программе расчета MCNP на основе созданной модели детектора. В случае измерения  $^{152}\text{Eu}$  определялась площадь пиков 121.8, 344.3 и 778.9 кэВ в виде отношения регистрируемой площади пика на один испущенный квант, помноженной на общее число  $\gamma$ -квантов, испущенных источником за время измерений. Эти пики были выбраны в связи с высокой интенсивностью (более 10%). Линии 121.8 и 344.2 кэВ были выбраны, так как в этом энергетическом диапазоне находятся основные  $\gamma$ -линии, характерные для  $^{235}\text{U}$ . По этим же линиям определялась площадь кристалла. Линия 778.8 кэВ использовалась для верификации модели в более высокоэнергетическом диапазоне и определения толщины кристалла.

Для подтверждения точности созданной модели сравнивались расчетный и измеренный спектры от СО урана массой 134.66 г и обогащением по  $^{235}\text{U}$  89.2% (на расстоянии 33 см от детектора до образца) для трех основных  $\gamma$ -пиков изотопа  $^{235}\text{U}$  с энергиями 143.8, 163.3 и 185.7 кэВ.

Для подбора диаметра и высоты германиевого кристалла их значения варьировались от 60 до 65 мм (диаметр) и от 30 до 35 мм (толщина). В таблице 1 приведено сравнение результатов расчетов и экспериментов с  $^{152}\text{Eu}$  из комплекта ОСГИ и СО урана.

Величина  $\delta S$  берется из результатов обработки спектра (реально набранного или смоделированного) программой «Набор и анализ гамма-спектров» комплекса Genie-2000 [15]. Из таблицы видно, что использованный подход моделирования обеспечивает согласующиеся с экспериментом данные по площадям регистрируемых пиков в широком

диапазоне энергий для подобранных размеров детектора  $\varnothing 61$  мм и толщиной 31,9 мм.

Таблица 1

**Площади пиков, полученные в результате расчета и эксперимента**

Энергия, кэВ	$S_{и}$	$\delta S_{и}, \%$	$S_{р}$	$\delta S_{р}, \%$	$(1 - S_{р} / S_{и}) \cdot 100$
<b><math>^{152}\text{Eu}</math> по центру</b>					
121.8	16155	0.83	16335	0.85	-1.11
344.2	6458	1.29	6524	1.28	-1.02
778.8	1422	2.83	1384	2.82	2.67
<b><math>^{152}\text{Eu}</math> со смещением</b>					
121.8	11635	0.985	10789	0.79	7.27
344.2	4481	1.55	4555	1.23	-1.65
778.8	1000	3.44	1018	2.82	-1.80
<b>Стандартный образец урана</b>					
143.8	29945	0.63	29850	0.62	0.32
163.3	16188	0.88	16092	0.88	0.59
185.7	195800	0.23	197341	0.23	-0.79
Примечание. $S_{и}$ – S измеренная; $S_{р}$ – S рассчитанная					

**МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ СИСТЕМЫ ИЗМЕРЕНИЙ**

При создании модели расчета спектров от контейнеров с отходами с вариацией влияющих факторов использовался вариант, позволяющий оптимизировать расчет с точки зрения скорости набора требуемой статистики регистрируемых импульсов в получаемых спектрах.

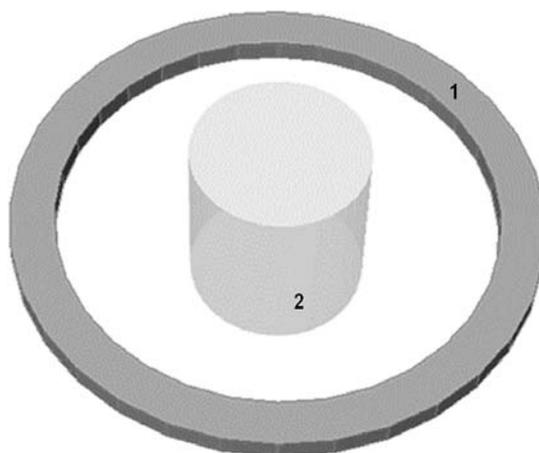


Рис. 3. Расчетная геометрия при моделировании спектров от контейнера с отходами: 1 – детектор в форме кольца со свинцовым коллиматором; 2 – контейнер с отходами

Для увеличения статистики расчетов и симуляции эффекта вращения контейнера детектор представлялся в виде кольца вокруг контейнера (рис. 3) на расстоянии 33 см от наружной поверхности контейнера в центральной по высоте области. Кольцо имело вы-

соту германия 6.1 см и толщину 3.19 см в оболочке из алюминия в соответствии с размерами реального детектора, определенными в измерениях с  $\gamma$ -источниками ОСГИ. В такой геометрии все параметры детектора моделировались в соответствии с экспериментом, а эффективность (эффективная площадь детектора) оказалась в 96 раз выше, чем в эксперименте. В дальнейшем этот коэффициент эффективности учитывался при сравнении абсолютных значений результатов модельных расчетов и экспериментов. Верхний и нижний слои кольца в модели состояли из свинца и моделировали коллиматор.

Контейнер задавался в виде цилиндра со стальной стенкой толщиной 1 мм, в котором моделировались различные отходы, содержащие различное количество ЯМ. По радиусу и высоте образец соответствовал реальному контейнеру, использованному в эксперименте.

Число разыгранных историй  $\gamma$ -квантов было от  $2 \cdot 10^7$  до  $4 \cdot 10^7$ , число регистрируемых импульсов в пике полного поглощения с энергией 185.7 кэВ составляло  $\sim 10^5$ . Число разыгрываемых историй варьировалось в зависимости от плотности исследуемой матрицы и массы урана в контейнере. Выходы  $\gamma$ -квантов для  $^{235}\text{U}$  брались из справочной литературы [16 – 19].

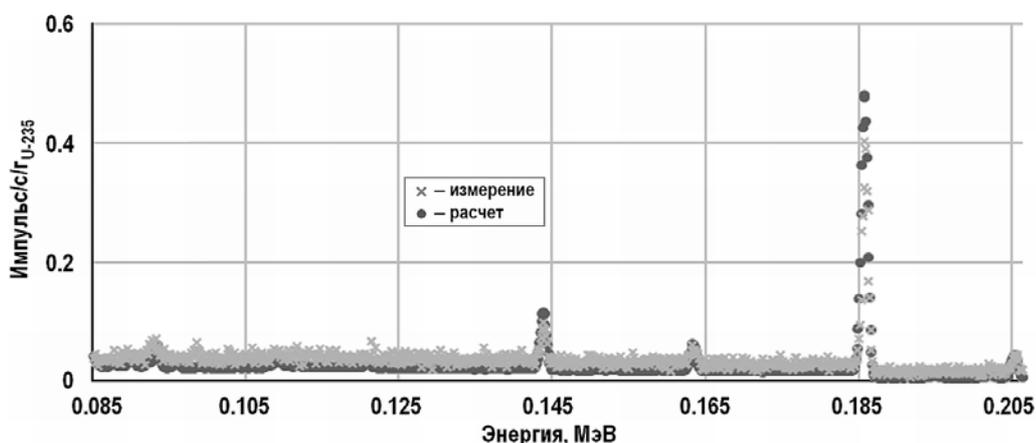


Рис. 4. Сравнение измеренного и расчетного спектров  $\gamma$ -квантов от контейнера с целлюлозой. Плотность материала отходов  $0.708 \text{ г/см}^3$

На рисунке 4 представлено сравнение спектров, полученных экспериментальным и расчетным способами для контейнера с матрицей из целлюлозы плотностью  $0.708 \text{ г/см}^3$  с  $0.611 \text{ г } ^{235}\text{U}$ . В расчете уран распределен равномерно по матрице, обогащение по  $^{235}\text{U}$  6.51% масс., в эксперименте уран с обогащением 6.51% масс. размещен квазиравномерно по объему матрицы в виде пузырьков с раствором уранилнитрата. Число энергетических каналов в эксперименте и расчете равно 8192, энергетическое разрешение детектора в расчете соответствовало разрешению использованного в измерениях спектрометра.

Для удобства анализа данные приведены в абсолютных единицах (число импульсов в энергетическом канале на  $1 \text{ г } ^{235}\text{U}$  в секунду). Из полученных данных видно, что основные  $\gamma$ -линии в интересующем диапазоне энергий совпадают по энергии и площади. Небольшое превышение расчетных интенсивностей  $\gamma$ -линий в сравнении с измеренными обусловлено самоэкранировкой излучения в растворах уранилнитрата. После учета данного эффекта поправкой на самоэкранировку в растворах в измеренных спектрах расхождение для интенсивности регистрации пика с энергией 185.7 кэВ расчета и эксперимента не превышало 10% для всех рассмотренных плотностей отходов в контейнерах.

Таким образом, использованная программа и выбранная модель позволяют правильно

моделировать измерение спектров  $\gamma$ -излучения детектором высокого разрешения на реальных сложных объектах, имитирующих отходы, за разумное время расчета.

### РАСЧЕТНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ РАЗЛИЧНЫХ ФАКТОРОВ НА РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Рассчитывались спектры  $\gamma$ -квантов, регистрируемых детектором, от контейнера, в котором находились отходы, различающиеся по

- плотности содержимого контейнера (плотность вычислялась с учетом содержащегося в отходах урана) – от 0.016 до 1 г/см<sup>3</sup>;
- массе урана в отходах – от 0.64 г до 2 кг;
- материалу матрицы – графит, целлюлоза, кварц, целлюлоза с 20% железных опилок.

Определялось влияние вариации перечисленных факторов на определяемую интенсивность пика с энергией 185.7 кэВ и область применимости методики измерений. Результаты приведены на графиках и в таблицах ниже. Интенсивность пика (имп./с/г) <sup>235</sup>U вычислялась суммированием импульсов в области пика с вычетом фоновой составляющей. Поскольку в программе расчета выдается относительная величина имп./историю, вводился коэффициент, равный выходу квантов рассматриваемой линии на 1 г <sup>235</sup>U в секунду, деленному на долю  $\gamma$ -квантов с энергией 185.7 кэВ в исходном разыгрываемом спектре (зависит от изотопного состава урана и табличных значений выходов линий  $\gamma$ -квантов для учитываемых изотопов) и на коэффициент, учитывающий отношение эффективности кольцевого детектора в расчете к эффективности реального детектора в эксперименте. Это позволяет упростить анализ влияния факторов и сравнивать расчет с экспериментом.

### ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ ПЛОТНОСТИ СОДЕРЖИМОГО КОНТЕЙНЕРА С ОТХОДАМИ

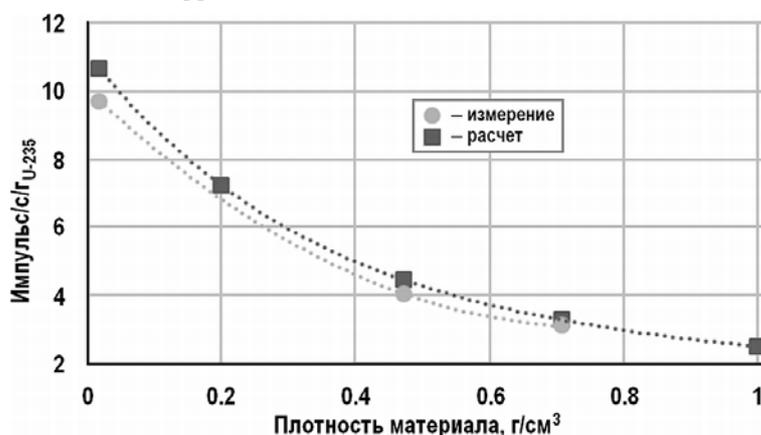


Рис. 5. Зависимость интенсивности счета в пике 185.7 кэВ от плотности материала отходов в виде целлюлозы с малым количеством урана (~1 г <sup>235</sup>U)

На рисунке 5 и в табл. 2 приведены результаты расчетов и измерений интенсивности отсчетов в пике 185.7 кэВ с вычетом фона для отходов в виде целлюлозы, содержащей 0.313 г <sup>235</sup>U (эксперимент – уран с обогащением 6.51% вес. 4.81 г) и 1 г <sup>235</sup>U (расчет – 20 г урана с обогащением 5% вес.). Плотность материала отходов менялась от 0.016 до 1 г/см<sup>3</sup>. Результаты измерений поправлены на эффект самопоглощения излучения в образцах в виде раствора уранилнитрата. Значения приведены к абсолютной величине имп./с/г <sup>235</sup>U.

Из рисунка 4 и табл. 2 видно, что в пределах 10% результаты расчетов и измерений совпадают для всего диапазона плотностей материала. Очевидно, что при таких малых количествах урана в контейнере 120 л поглощением излучения с энергией 185.7 кэВ в самом уране можно пренебречь, если уран находится в нелокализованной форме. Видно также, что при увеличении плотности матрицы интенсивность регистрации  $\gamma$ -кван-

тов с энергией 185.7 кэВ существенно снижается.

Таблица 2

**Интенсивность счета в пике 185.7 кэВ с вычетом фона для различной плотности целлюлозы в контейнере (эксперимент – 0,313 г  $^{235}\text{U}$ , 4.81 г урана; расчет – 1 г  $^{235}\text{U}$ , 20 г урана)**

Плотность материала отходов, г/см <sup>3</sup>	Интенсивность счета в пике 185.7 кэВ		
	Расчет	Эксперимент	Разница (%)
0.016	10.67	9.72	0.95 (9.77)
0.2	7.219	–	–
0.471	4.46	4.056	0.404 (9.96)
0.708	3.279	3.107	0.172 (5.54)
1	2.511	–	–

Для всех диапазонов по плотности расчетного диапазона при разработке МИ необходимо принимать неисключенную систематическую погрешность (НСП) совпадения расчета и эксперимента, равную ~ 10%.

### ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ ТИПА МАТРИЦЫ

Матрица отходов может быть различной по элементному составу, в том числе в ней могут быть отдельные фракции – ветошь, перчатки, бетон, мусор и т.д. Не исключается также наличие металлической стружки, опилок или влаги. В большинстве случаев элементный состав матрицы определяется элементами с атомным номером до кальция, но в отдельных случаях имеются примеси элементов с  $Z$  до железа.

Для оценки влияния типа матрицы (элементного состава) были выполнены расчеты для отходов в виде целлюлозы ( $\text{C}_6\text{H}_{10}\text{O}_5$ ), кварца ( $\text{SiO}_2$ ), графита, смеси 80% целлюлозы и 20% железа. Плотность для всех вариантов отходов составляла 0.708 г/см<sup>3</sup>, при которой эффект от различия элементного состава максимален в диапазоне, представленном в измерениях. Результаты приведены в табл. 3.

Таблица 3

**Интенсивности счета в пике 185.7 кэВ с вычетом фона для различных матриц отходов и разных масс урана в контейнере (плотность материала отходов 0.708 г/см<sup>3</sup>)**

Масса урана, г	Состав матрицы			
	Целлюлоза $\text{C}_6\text{H}_{10}\text{O}_5$	Графит С	Кварц $\text{SiO}_2$	80% целлюлозы + 20% железа
	Интенсивность счета в пике 185.7 кэВ			
1	3.367	–	–	3.301
500	3.22	3.292	3.272	3.15
	Разница от целлюлозы, %			
500	–	–0.072 (–2.2)	–0.052 (–1.6)	0.07 (2.2)

Из таблицы видно, что химический состав матрицы в диапазоне атомных номеров элементов от углерода вплоть до железа слабо влияет на интенсивность счета в пике 185.7 кэВ (~ 2% для исследованных матриц в сравнении с матрицей из целлюлозы). Это обусловлено тем, что массовый коэффициент ослабления для линии 185.7 кэВ слабо зависит от атомного номера элемента в рассматриваемом диапазоне матриц, и ослабление  $\gamma$ -излучения будет определяться практически только плотностью материала в контейнере. На основании полученных данных значение НСП от

типа матрицы было принято равным ~ 2.2%.

В то же время увеличение плотности матрицы с гомогенно распределенным ураном по всему объему в контейнере будет вносить дополнительное ослабление линии за счет высокого атомного номера урана и, соответственно, сравнительно большого массового коэффициента ослабления. Из таблицы 3 видно, что при увеличении массы урана в контейнере до 500 г интенсивность регистрации линии 185.7 кэВ уменьшается приблизительно на 4.6%. Эффект практически одинаков для матрицы из целлюлозы и матрицы с примесью 20% железа. Поскольку исходно, до проведения измерений, масса урана в контейнере неизвестна, такой эффект при значимом количестве урана будет давать систематическое смещение (занижение).

### ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ МАССЫ УРАНА В КОНТЕЙНЕРЕ

Расчетное моделирование позволяет исследовать любой диапазон масс урана в контейнере, в то время как возможности измерений часто существенно ограничены наличием малых по размерам образцов урана с «нулевой» массой или больших по размерам образцов с малой его плотностью для исключения сильного самопоглощения  $\gamma$ -излучения в локальной области самого образца. Расчеты выполнены для диапазона масс урана в контейнере от 0.64 г до 2 кг, причем статистическая погрешность расчета практически не зависит от массы урана в образце в силу особенностей расчета, когда статистика отсчетов в пике определяется лишь долей выхода рассматриваемой линии относительно всех линий в исходном спектре при моделировании.

Таблица 4

#### Расчитанные интенсивности счета в пике 185.7 кэВ с вычетом фона для различных плотностей отходов и разных масс урана в контейнере

Масса урана в контейнере, г	Плотность материала отходов, г/см <sup>3</sup>		
	0.016	0.471	0.708
	Интенсивность счета в пике 185.7 кэВ		
0.64	–	–	3.28
1	10.81	4.47	3.279
5	–	4.466	–
10	10.8	–	–
20	–	4.464	–
50	–	4.449	–
100	10.59	4.46	3.252
500	9.79	4.233	3.139
1000	–	4.017	–
2000	–	3.63	–

В таблице 4 представлены результаты расчетов интенсивности счета для пика 185.7 кэВ с вычетом фона для отходов в виде целлюлозы различной плотности с разной массой урана.

Данные таблицы показывают, что в диапазоне масс урана в контейнере до 100 г самопоглощением линии 185.7 кэВ в уране можно пренебречь, если нет локализованных областей с большой плотностью урана (кусочков или плотных комков). При этом чем больше плотность самой матрицы, тем меньше относительное влияние поглощения в уране. При массе урана 500 г наблюдается занижение интенсивности

пики 185.7 кэВ, нормированной на 1 г  $^{235}\text{U}$ , на ~ 5% для плотных матриц и ~ 10% для пористой матрицы ( $0.016 \text{ г/см}^3$ ). При массе урана 1 кг занижение достигает 11% для плотных матриц и ~ 20% для пористых. Данный эффект необходимо учитывать при измерениях, особенно для отходов с низкообогащенным ураном, когда полная масса урана в контейнере значительно больше, чем измеряемая масса  $^{235}\text{U}$ . В то же время, если получаемая в измерениях масса  $^{235}\text{U}$  не будет превышать единиц граммов, обогащение урана можно не учитывать и вводить возможную неопределенность от неизвестности обогащения урана (неопределенности общей массы урана) в доверительные границы относительной НСП.

## ВЫВОДЫ

Предложенный метод расчета моделей образцов урансодержащих отходов позволяет оценить вклад погрешностей от вариации влияющих факторов в широких пределах с любым необходимым шагом, что невозможно сделать традиционным путем с помощью СО.

Продемонстрирован алгоритм создания эффективной модели расчета. Сравнением расчетных результатов с данными измерений урансодержащих образцов были доказаны правильность модели и возможность корректно описывать реальные варианты отходов с получением расчетных  $\gamma$ -спектров, хорошо согласующихся с реальными измерениями. Показан пример оптимизации расчетной модели путем представления детектора в виде кольца для моделирования вращения образца вокруг своей оси.

По результатам выполненных расчетов с учетом полученных в прямых измерениях данных выполнена оценка вклада в погрешность неопределенности влияющих параметров для конкретных измеряемых объектов. Применение расчетных методов позволило расширить диапазон измерения массы  $^{235}\text{U}$  в ТРО от 1.8 до 100 г в разрабатываемой МИ.

Определены границы применимости разрабатываемой методики измерений урансодержащих отходов по матрице материала (~ 2.2%), ее плотности (~ 10%) и оценен вклад неопределенности массы урана в контейнере (5% для плотных матриц, 10% для пористых матриц) в получаемый результат.

## Литература

1. In Situ Object Counting System. Электронный ресурс: [http://www.canberra.com/products/insitu\\_systems/isocs.asp](http://www.canberra.com/products/insitu_systems/isocs.asp) (дата обращения 15.01.2018).
2. In Situ Object Counting System (ISOCS) as Applied to Scan Requirements in Support of Final Status Survey at HBPP. Электронный ресурс: <https://www.nrc.gov/docs/ML1313/ML13130A140.pdf> (дата обращения 15.01.2018).
3. Федеральный закон № 102-ФЗ «Об обеспечении единства измерений» от 26.07.2008 (с изменениями от 13 июля 2015 г.). Электронный ресурс: <http://docs.cntd.ru/document/902107146> (дата обращения 15.01.2018).
4. ОСТ 95 10353-2007. Стандарт отрасли. Отраслевая система обеспечения единства измерений. Алгоритмы оценки метрологических характеристик при аттестации методик выполнения измерений. Электронный ресурс: [http://www.metroatom.ru/download/metroatom/norm/metrology/ost\\_95\\_10353\\_2007.pdf](http://www.metroatom.ru/download/metroatom/norm/metrology/ost_95_10353_2007.pdf) (дата обращения 15.01.2018).
5. ОСТ 95 10289-2005. Стандарт отрасли. Отраслевая система обеспечения единства измерений. Внутренний контроль качества измерений. Электронный ресурс: [http://www.metroatom.ru/download/metroatom/norm/metrology/OST\\_new\\_95%2010289.pdf](http://www.metroatom.ru/download/metroatom/norm/metrology/OST_new_95%2010289.pdf) (дата обращения 15.01.2018).
6. ОСТ 95 10571-2002. Стандарт отрасли. Учет и контроль ядерных материалов. Система измерений. Основные положения. Электронный ресурс: <http://docs.cntd.ru/document/1200035843> (дата обращения 15.01.2018).

7. Ахназарова С.Л., Кафаров В.В. Методы оптимизации эксперимента в химической технологии. – М.: Высшая школа, 1985 г. – 327 с.
8. Laborie J.-M., Le Petit G., Abt D., Girard M. Monte Carlo calculation of the efficiency response of a low-background well-type detector // Nuclear Instruments and Methods in physics research. – 2002. – Vol. 479. – No. 2-3. – PP. 618-630.
9. Sima O. Applications of Monte Carlo calculations to gamma-spectrometric measurements of environmental samples // Applied Radiation and Isotope. – 1996. – Vol. 47. – No. 9-10. – PP. 919-923.
10. General Monte Carlo N-Particle (MCNP) Transport Code. Электронный ресурс: <https://laws.lanl.gov/vhosts/mcnp.lanl.gov/mcnp5.shtml> (дата обращения 15.01.2018).
11. Колесов В.В. Использование программы MCNP для проведения нейтронно-физического расчета ядерных реакторов. – Обнинск: ОГТУАЭ, 2008. – 44 с.
12. Коробейников В.В. Метод Монте-Карло в задачах физики реакторов и защиты. – Обнинск: ИАТЭ, 1994. – 84 с.
13. MCNP HPGe detector benchmark with previously validated Cyltran model. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/24177539\\_MCNP\\_HPGe\\_detector\\_benchmark\\_with\\_previously\\_validated\\_Cyltran\\_model](https://www.researchgate.net/publication/24177539_MCNP_HPGe_detector_benchmark_with_previously_validated_Cyltran_model) (дата обращения 15.01.2018).
14. MCNP a general Monte Carlo N-particle transport code. Электронный ресурс: <https://permalink.lanl.gov/object/tr?what=info:lanl-repo/lareport/LA-13709-M> (дата обращения 15.01.2018).
15. Genie 2000 Software family. Электронный ресурс: [http://www.canberra.com/products/radiochemistry\\_lab/genie-2000-software.asp](http://www.canberra.com/products/radiochemistry_lab/genie-2000-software.asp) (дата обращения 15.01.2018).
16. Table of Isotopes. Электронный ресурс: <https://application.wiley-vch.de/books/info/0-471-35633-6/toi99/toi.htm> (дата обращения 15.01.2018).
17. Reilly D., Ensslin N., Smith H.Jr. and Kreiner S. Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials. – Washington: Government Printing Office, 1996. – 700 p.
18. XCOM: Photon cross-sections on a personal computer. Электронный ресурс: <https://nvlpubs.nist.gov/nistpubs/Legacy/IR/nbsir87-3597.pdf> (дата обращения 15.01.2018).
19. Nuclide Navigator Version. Электронный ресурс: <https://www.ortec-online.com/products/application-software/nuclide-navigator> (дата обращения 15.01.2018).

Поступила в редакцию 17.01.2018 г.

#### Авторы

Рыков Никита Сергеевич, инженер-исследователь 2 категории  
E-mail: [nrykov@ippe.ru](mailto:nrykov@ippe.ru)

Бежунов Геннадий Михайлович, ведущий научный сотрудник  
E-mail: [nrykov@ippe.ru](mailto:nrykov@ippe.ru)

Горбачев Вячеслав Михайлович, ведущий инженер-исследователь  
E-mail: [nrykov@ippe.ru](mailto:nrykov@ippe.ru)

UDC 53.088.4:621.039.7

## USE OF MATHEMATICAL SIMULATION TO EXTEND THE SCOPE OF APPLICABILITY FOR THE PROCEDURE TO MEASURE THE MASS OF $^{235}\text{U}$ IN SOLID RADIOACTIVE WASTE

Rykov N.S., Bezhunov G.M., Gorbachyov V.M.

JSC «SSC RF-IPPE n.a. A.I. Leypunsky»

1 Bondarenko sq., Obninsk, Kaluga reg., 249033 Russia

### ABSTRACT

Determination of the mass (activity) of  $^{235}\text{U}$  in solid radioactive waste by gamma-spectroscopic method requires the use of the known dependence of absolute efficiency on energy and space for particular conditions of measurement. The In Situ Object Counting System (ISOCS) eliminates the need for laborious and time-consuming graduation measurements using reference standards to obtain the absolute efficiency curve since the so-called characterized detector is used which has a file with a set of efficiencies for different measurement geometries.

In many cases, a set of reference standards with parameters exceeding the range of the  $^{235}\text{U}$  mass measurement in the variation ranges of influencing factors, including density, nonuniformity, isotopic composition, geometry, etc., is highly expensive and, most often, impossible to create. Proceeding from this, a computational and experimental approach was adopted using the results obtained by Monte Carlo method based on the MCNP code with variation of the key influencing parameters within broad intervals.

Calculations were performed for detector-recorded spectra of gamma-quanta from a cask that contained waste differing in the density of the cask content (the density was calculated with regard for the uranium contained in waste) – in a range of 0.016 to 1 g/cm<sup>3</sup>, in the mass of uranium in the waste – in a range of 0.64 g to 2 kg, and in the matrix material (graphite, cellulose, quartz, cellulose with 20% of iron powder).

Boundaries have been defined for the applicability of the developed procedure to measure uranium-containing waste in terms of the material matrix (~ 2.2%) and its density (~ 10%), and the contribution of the uncertainty of the cask-contained uranium mass to the obtained result has been estimated (5% for dense matrices, 10% for porous matrices).

**Key words:** nondestructive analysis of nuclear materials, solid radioactive waste, uranium mass, gamma-spectrometry, ISOCS system, absolute efficiency curve, Monte Carlo method, MCNP code, measurement procedure, measurement procedure range.

### REFERENCES

1. In Situ Object Counting System. Available at: [http://www.canberra.com/products/insitu\\_systems/isocs.asp](http://www.canberra.com/products/insitu_systems/isocs.asp) (accessed Jan 15, 2018).
2. In Situ Object Counting System (ISOCS) as Applied to Scan Requirements in Support of Final Status Survey at HBPP. Available at: <https://www.nrc.gov/docs/ML1313/ML13130A140.pdf> (accessed Jan 15, 2018).
3. Federal Law No. 102-FZ «About Ensuring Unity of Measurements» of 26.07.2008 (with changes of July 13, 2015). Available at: <http://docs.cntd.ru/document/902107146> (accessed Jan 15, 2018).
4. OST 95 10353-2007. Standard of Branch. Branch System of Ensuring Unity of Measurements. Algorithms of Assessment of Metrological Characteristics at Certification of Techniques of Performance of Measurements. Available at: <http://www.metroatom.ru/>

- download/metroatom/norm/metrology/ost\_95\_10353\_2007.pdf (accessed Jan 15, 2018).
5. OST 95 10289-2005. Standard of Branch. Branch System of Ensuring Unity of Measurements. Internal Quality Control of Measurements. Available at: [http://www.metroatom.ru/download/metroatom/norm/metrology/OST\\_new\\_95%2010289.pdf](http://www.metroatom.ru/download/metroatom/norm/metrology/OST_new_95%2010289.pdf) (accessed Jan 15, 2018).
  6. OST 95 10571-2002. Standard of Branch. Account and Control of Nuclear Materials. Measuring System. Basic Provisions. Available at: <http://docs.cntd.ru/document/1200035843> (accessed Jan 15, 2018).
  7. Ahnazarova S.L., Kafarov V.V. *Methods of optimization of an experiment in chemical technology*. Moscow. Vysshaya shkola Publ., 1985, 327 p. (in Russian).
  8. Laborie J.-M., Le Petit G., Abt D., Girard M. Monte Carlo calculation of the efficiency response of a low-background well-type detector. *Nuclear Instrument and Methods in physics research*, 2002, v. 479, no. 2-3, pp. 618-630.
  9. Sima O. Applications of Monte Carlo calculations to gamma-spectrometric measurements of environmental samples. *Applied Radiation and Isotope*, 1996, v. 47, no. 9-10, pp. 919-923.
  10. General Monte Carlo N-Particle (MCNP) Transport Code. Available at: <https://laws.lanl.gov/vhosts/mcnp.lanl.gov/mcnp5.shtml> (accessed Jan 15, 2018).
  11. Kolesov V.V. *Use of the MCNP program for carrying out neutron and physical calculation of nuclear reactors*. Obninsk. OGTUAE Publ., 2008, 44 p.
  12. Korobejnikov V.V. *The Monte Carlo method in problems of physics of reactors and protection*. Obninsk. IATE Publ., 1994, 84 p.
  13. MCNP HPGe detector benchmark with previously validated Cyltran model. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/24177539\\_MCNP\\_HPGe\\_detector\\_benchmark\\_with\\_previously\\_validated\\_Cyltran\\_model](https://www.researchgate.net/publication/24177539_MCNP_HPGe_detector_benchmark_with_previously_validated_Cyltran_model) (accessed Jan 15, 2018).
  14. MCNP a general Monte Carlo N-particle transport code. Available at: <https://permalink.lanl.gov/object/tr?what=info:lanl-repo/lareport/LA-13709-M> (accessed Jan 15, 2018).
  15. Genie 2000 Software family. Available at: [http://www.canberra.com/products/radiochemistry\\_lab/genie-2000-software.asp](http://www.canberra.com/products/radiochemistry_lab/genie-2000-software.asp) (accessed Jan 15, 2018).
  16. Table of Isotopes. Available at: <https://application.wiley-vch.de/books/info/0-471-35633-6/toi99/toi.htm> (accessed Jan 15, 2018).
  17. Doug Reilly, Nobert Ensslin, Hasting Smith Jr and Sarah Kreiner. *Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials*, Washington, U.S. Government Printing Office, 1996, 700 p.
  18. XCOM: Photon cross-sections on a personal computer. Available at: <https://nvlpubs.nist.gov/nistpubs/Legacy/IR/nbsir87-3597.pdf> (accessed Jan 15, 2018).
  19. Nuclide Navigator Version. Available at: <https://www.ortec-online.com/products/application-software/nuclide-navigator> (accessed Jan 15, 2018).

#### Authors

Rykov Nikita Sergeevich, Research Engineer

E-mail: [nrykov@ippe.ru](mailto:nrykov@ippe.ru)

Bezhunov Gennady Mikhailovich, Leading Researcher

E-mail: [nrykov@ippe.ru](mailto:nrykov@ippe.ru)

Gorbachyov Vyacheslav Mikhailovich, Leading Researcher Engineer

E-mail: [nrykov@ippe.ru](mailto:nrykov@ippe.ru)