

РАЗРАБОТКА МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЯ МАССЫ ПЛУТОНИЯ В ДИОКСИДЕ ПЛУТОНИЯ НА ЗАВОДЕ РТ-1 ФГУП «ПО «МАЯК» МЕТОДОМ НЕЙТРОННЫХ СОВПАДЕНИЙ

М.А. Семенов, А.В. Филонова (ФГУП «ПО «Маяк»),
д.ф.-м.н. А.П. Оконечников (ФГАОУ ВПО «УРФУ имени первого
Президента России Б.Н. Ельцина»), С.А. Богданов (ФГУП «ГНЦ РФ-ФЭИ»),
Д.А. Боков (Ростехнадзор), И.В. Захарчук (Уральское межрегиональное
территориальное управление по надзору за ядерной и
радиационной безопасностью, Ростехнадзор)

Введение

В соответствии с НП-030-05 [1], учет ядерных материалов (ЯМ) основан на результатах измерений их количественных характеристик. Основной количественной характеристикой, по которой подводится баланс ЯМ и рассчитывается инвентаризационная разница, является масса ЯМ. Для определения фактически наличного количества ЯМ проводятся физические инвентаризации, в процессе которых выполняются подтверждающие измерения, в большинстве случаев основанные на неразрушающих методах контроля.

При неразрушающем контроле массы плутония в различных его соединениях, как правило, используются счетчики нейтронных совпадений. В этом случае принцип измерения основан на том, что нейтроны спонтанного или вынужденного деления испускаются практически одновременно, т.е. они коррелированы во времени, в отличие от одиночных (α , n)-нейтронов, которые случайным образом распределены во времени и образуются на легких элементах матрицы [2, 3].

Проведенные предварительные исследования по анализу применимости счетчиков нейтронных совпадений на радиохимическом заводе РТ-1 ФГУП «ПО «Маяк» (далее – завод РТ-1) показали, что существующие методы определения массы плутония в диоксиде плутония дают неудовлетворительные результаты, это обусловлено как значительной массой диоксида плутония в одном контейнере (до 3,3 кг), так и широким спектром физико-химических характеристик диоксида плутония, которые могут изменяться со временем. Основные влияющие факторы при этом следующие:

- высокое содержание легких примесей, влаги, «остатков» от разложения оксалата плутония;
- широкий диапазон изотопного состава;
- большой диапазон массы плутония в одном контейнере (от 1,5 до 3,3 кг).

Использование традиционных методов измерения массы плутония при воздействии указанных факторов приводит к большой ошибке измерения (в некоторых случаях – более 100%).

В частности, применение метода «Известное альфа» ограничено по следующим причинам. Данный метод хорошо себя зарекомендовал при анализе образцов с «чистым» плутонием (в основном, оксиды и металл), т.е. плутонием, не содержащим примеси легких элементов и/или влаги. В то же время, результаты лабораторных анализов образцов диоксида плутония завода РТ-1 показали, что содержание фтора может изменяться от нескольких ppm до 3500 ppm, а накопление влаги по массе составляет в среднем до 1,0 % за 6–7 лет хранения (при хранении контейнеров более 20 лет отмечено накопление влаги до 3,5 % [4]). Таким

образом, предсказать параметр альфа (α) для конкретного контейнера становится невозможно.

Методы «Множественность» и «Известное умножение» показывают неудовлетворительные результаты ввиду некорректных поправок на «мертвое» время счетчика совпадений, так как изотопный состав плутония (содержание ^{238}Pu – до 4 %, ^{240}Pu – до 25 %, ^{242}Pu – до 8 %) и наличие повышенного содержания легких примесей обуславливают экстремально высокий уровень нейтронного потока, до $7 \cdot 10^6$ нейтронов/с.

Для определения массы плутония в диоксиде плутония завода РТ-1 с помощью счетчиков нейтронных совпадений был предложен подход, основанный на разбиении всех контейнеров на две страты по скорости регистрируемого счета нейтронов:

- в первую страту входят контейнеры с диоксидом плутония, для которых регистрируемая счетчиком скорость счета нейтронов не превышает 200 тыс. нейтронов/с (для данной страты предложено использовать традиционный метод «Множественность»);
- во вторую страту входят контейнеры с диоксидом плутония, для которых регистрируемая счетчиком скорость счета нейтронов более 200 тыс. нейтронов/с (для данной страты предложено использовать модифицированный метод «Известное умножение»).

Таким образом, в первую страту входят контейнеры с изотопным составом, характерным для плутония, наработанного из отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) БН-600 или плутония, полученного в результате совместной переработки различных видов ОЯТ с массовой долей ^{239}Pu не менее 85 %. Во вторую страту входят все остальные контейнеры, а именно: «грязный» диоксид плутония с повышенным содержанием легких примесей, плутоний, полученный после переработки ОЯТ реакторов типа ВВЭР или от совместной переработки ОЯТ ВВЭР и других видов ОЯТ, плутоний с большим временем выдержки.

Суть модифицированного метода «Известное умножение» заключается в определении умножения утечки нейтронов в зависимости от эффективной массы ^{239}Pu при установленных коэффициентах «мертвого» времени, равных нулю, и дополнительном способе введения поправки на просчеты.

Материалы и методы

Масса плутония M_{Pu} , г, в диоксиде плутония по результатам измерений на счетчике нейтронных совпадений вычисляется в программе INCC [5] по формуле:

$$M_{\text{Pu}} = \frac{{}^{240}m_{\text{eff}}}{{}^{240}f_{\text{eff}}}, \quad (1)$$

где ${}^{240}f_{\text{eff}}$ – массовая доля ^{240}Pu эффективного, являющаяся функцией всех спонтанно-делящихся изотопов плутония и зависящая от изотопного состава плутония, доля;

${}^{240}m_{\text{eff}}$ – эффективная масса ^{240}Pu (масса ^{240}Pu , скорость образования нейтронов спонтанного деления в которой эквивалентна скорости образования нейтронов спонтанного деления в образце), г.

Массовая доля ^{240}Pu эффективного в образце на основании изотопного состава вычисляется по формуле:

$${}^{240}f_{\text{eff}} = 2,52w_{238} + w_{240} + 1,69w_{242}, \quad (2)$$

где W_i – массовая доля i -го изотопа плутония в образце, доля.

Эффективная масса ^{240}Pu вычисляется на основании результатов измерений скоростей счета одиночных S (синглетов), двойных D (дуплетов) и тройных T (триплетов) совпадений в секунду в приближении точечной модели по следующим формулам:

$$S = {}^{240}m_{\text{eff}} F \varepsilon M (1 + \alpha), \quad (3)$$

$$D = {}^{240}m_{\text{eff}} F \varepsilon^2 \frac{v_{s2}}{2} M^2 f_D \left(1 + \frac{(M-1)(1+\alpha)v_{s1}v_{i2}}{(v_{i1}-1)v_{s2}} \right), \quad (4)$$

$$T = {}^{240}m_{\text{eff}} F \varepsilon^3 \frac{v_{s3}}{6} M^3 f_T \left(1 + \frac{(M-1)(3v_{s2}v_{i2} + v_{s1}(1+\alpha)v_{i3})}{(v_{i1}-1)v_{s2}} + \frac{3}{v_{s3}} \frac{(M-1)^2}{(v_{i1}-1)^2} v_{s1}(1+\alpha)v_{i2}^2 \right), \quad (5)$$

где F – удельная скорость спонтанного деления ^{240}Pu , делений/с·г;

ε – эффективность регистрации нейтронов утечки, отн. ед.;

α – параметр «альфа» (отношение числа нейтронов, родившихся в образце за счет (α, n) -реакций, к числу нейтронов, родившихся за счет спонтанного деления), отн. ед.;

M – умножение нейтронов утечки (отношение числа нейтронов, покинувших образец, к числу нейтронов, родившихся в нем), отн. ед.;

v – факториальные моменты распределения множественности нейтронов деления, где первый индекс: s – спонтанное деление, i – индуцированное деление; второй индекс: номер момента распределения, нейтр./деление;

f_T – коэффициент отбора тройных совпадений, равный f_D^2 ;

f_D – коэффициент отбора совпадений, характеризующий вероятность регистрации нейтронов единичного акта деления во временном интервале совпадений.

Метод «Множественность» основан на решении системы из уравнений (3)–(5) с тремя неизвестными величинами, характеризующими образец (${}^{240}m_{\text{eff}}$, α , M), по результатам измерения скоростей счета S, D, T от образца и параметров счетчика (ε, f_T, f_D). Параметры детектора определяются на этапе предварительной калибровки счетчика нейтронных совпадений с помощью источников нейтронов ^{252}Cf с известным значением выхода нейтронов.

В основе метода «Известное умножение» лежит решение системы, состоящей из уравнений (3)–(4) и выражения, связывающего коэффициент умножения нейтронов утечки с характеристиками образца:

$$M = M({}^{239}m_{\text{eff}}, G_i), \quad (6)$$

где ${}^{239}m_{\text{eff}}$ – эффективная масса ^{239}Pu , которая вызвала бы такое же умножение нейтронов утечки, что и ядерный материал образца, при их одинаковых прочих условиях (геометрия, физико-химическая форма и т.д.), г;

G_i – параметры, зависящие от геометрии и плотности измеряемого образца.

На практике зависимость умножения утечки нейтронов от эффективной массы ^{239}Pu представлена выражением [5]:

$$M = 1 + a ({}^{239}m_{\text{eff}}) + b^2 ({}^{239}m_{\text{eff}})^2, \quad (7)$$

где a , b – коэффициенты, определяемые с помощью комплекта стандартных образцов (СО).

Из-за отсутствия представительного комплекта СО для определения зависимости коэффициента утечки нейтронов от эффективной массы ^{239}Pu (7) был разработан подход, основанный на выражении, полученном в рамках данной работы:

$$\frac{M^G - 1}{M^X - 1} = 1 + \frac{(n-1)r}{r+h}, \quad (8)$$

где M^G – умножение утечки нейтронов, измеренное или рассчитанное для контейнера с известной массой плутония, плотностью или высотой засыпки;

M^X – умножение утечки нейтронов для высоты засыпки контейнера (h/n);

h – высота засыпки диоксида плутония для контейнера с умножением утечки нейтронов M^G , см;

r – радиус засыпки диоксида плутония, см.

Предложенный метод «Известное умножение» с нулевыми «мертвыми» временами состоит из двух этапов:

- определение поправки на просчеты при высоких загрузках счетчика нейтронных совпадений;
- определение массы плутония методом «Известное умножение» с учетом поправки на просчеты.

Поправка на просчеты представляет собой зависимость ошибки определения массы от скорости счета синглетов, которая строится с помощью рабочих образцов (контейнеры с диоксидом плутония) с известными паспортными характеристиками:

$$F(S) = 1 - \Delta m = 1 - \frac{m_{\text{Pu}}^{\text{Decl}} - m_{\text{Pu}}^{\text{Meas}}}{m_{\text{Pu}}^{\text{Decl}}}, \quad (9)$$

где $m_{\text{Pu}}^{\text{Decl}}$ – паспортное значение массы плутония в диоксиде плутония, г;

$m_{\text{Pu}}^{\text{Meas}}$ – масса плутония, рассчитанная программой INCC по методу «Известное умножение» при параметрах «мертвого» времени, равных нулю, г.

Для определения поправки на просчеты использовались контейнеры с диоксидом плутония с массой от 2000 до 3300 г, временем выдержки от 1 года до 25 лет и изотопным составом, перекрывающим весь существующий диапазон.

Масса плутония в контейнере по методу «Известное умножение» рассчитывается в программе INCC с учетом поправки на просчеты $F(S)$ по формуле:

$$m_{\text{Pu}} = \frac{m_{\text{Pu}}^{\text{Meas}}}{F(S)}. \quad (10)$$

Результаты и обсуждения

Граничное значение регистрируемой скорости счета нейтронов, равное 200 тыс. нейтронов/с, было определено на стадии разработки методики.

Коэффициент умножения утечки нейтронов M^G (8) был определен расчетным путем в программе Geant 4 [6] и подтвержден экспериментальным путем с помощью измерения контейнера с диоксидом плутония методом «Множественность» (табл. 1). Коэффициент умножения утечки нейтронов M^G , определенный

по результатам расчетов, составил 1,124, а по результатам измерений методом «Множественность» – 1,12.

Таблица 1

Характеристика контейнера с диоксидом плутония

Масса PuO ₂ , г	Масса Pu, г	Эффективная масса ²³⁹ Pu, г	Изотопный состав					
			²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	²⁴¹ Am
3008	2599	2493	0,63	88,31	8,19	1,67	1,18	0,06

Зависимость умножения $M-1$ от эффективной массы ²³⁹Pu, рассчитанная по формуле (8), с учетом коэффициента умножения утечки нейтронов M^G , равного 1,124, представлена на рис. 1 и описывается выражением:

$$M(^{239}m_{eff}) - 1 = 6,88 \cdot 10^{-5} m_{eff} - 1,32 \cdot 10^{-8} (m_{eff})^2. \quad (11)$$

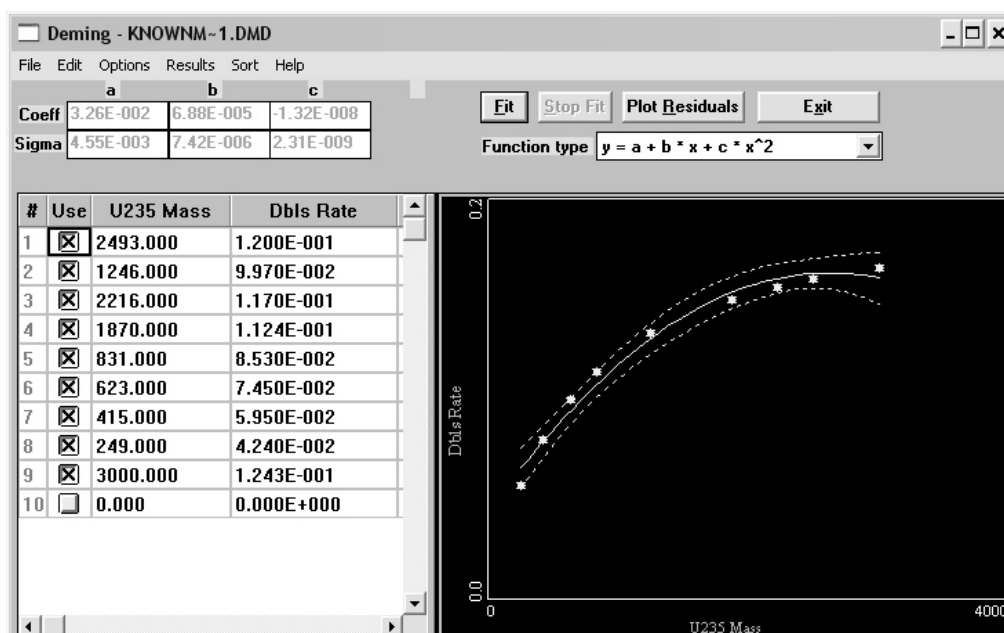


Рис. 1. Зависимость умножения утечки нейтронов $M-1$ от эффективной массы ²³⁹Pu

Зависимость поправки ошибки определения массы от скорости счета синглетов представлена на рис. 2 и описывается формулой:

$$F(S) = 1,004 - 7,9 \cdot 10^{-7} S + 1,4 \cdot 10^{-13} S^2. \quad (12)$$

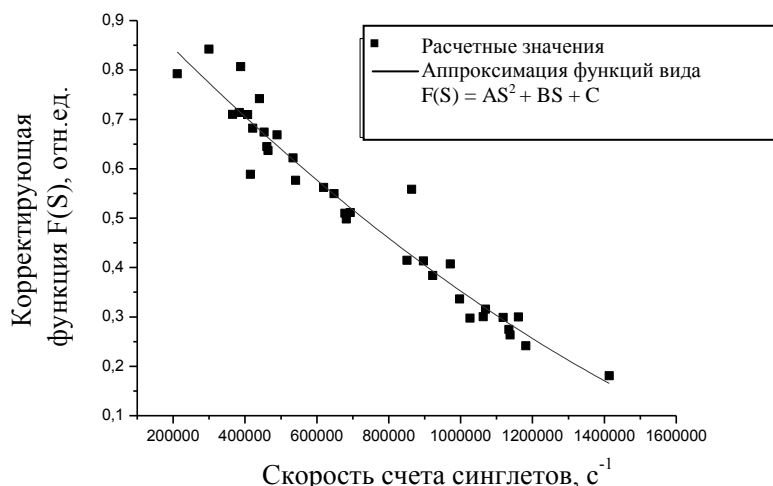


Рис. 2. Зависимость корректирующей функции от скорости счета синглетов

Предельное значение регистрируемой скорости счета нейтронов S , при котором $F(S)$ обращается в ноль, соответствует минимальному значению скорости счета S в функции (12) и равняется $1,9 \cdot 10^6$ нейтронов/с. Данная скорость счета является верхней границей области применения счетчиков нейтронных совпадений JCC-41 для определения массы плутония.

При аттестации методики измерений (МИ) по данному методу был определен порядок расчета границ относительной погрешности измерения массы плутония в диоксиде плутония δ , %, при доверительной вероятности $P = 0,95$, в соответствии с [7]:

$$\delta = \pm \sqrt{\varepsilon_{\text{отн}}^2 + \Theta_{\text{отн}}^2}, \quad (13)$$

где $\varepsilon_{\text{отн}}$ – границы относительной случайной составляющей погрешности измерения при доверительной вероятности $P = 0,95$, рассчитываемые с использованием данных анализа программы INCC;

$\Theta_{\text{отн}}$ – границы относительной неисключенной систематической составляющей погрешности измерения при доверительной вероятности $P = 0,95$, определяемые в соответствии с табл. 2.

Таблица 2

Приписанные значения относительной неисключенной систематической погрешности измерений массы плутония в диоксиде плутония при доверительной вероятности $P = 0,95$

Метод	Диапазон массы PuO ₂ , г	Диапазон скоростей счета, с ⁻¹	Границы неисключенной относительной систематической погрешности $\Theta_{\text{отн}}$, %
«Множественность»	2600 – 2800	Менее $2 \cdot 10^5$	9
«Известное умножение»	1700 – 2900	$0,2 \cdot 10^6$ – $1,45 \cdot 10^6$	18

В связи с отсутствием на сегодняшний день на заводе РТ-1 стандартных образцов массы плутония в диоксиде плутония, удовлетворяющих всему необходимому диапазону характеристик, аттестация МИ проводилась с помощью МИ более высокого порядка [7]. Масса плутония в диоксиде плутония определялась расчетным путем по результатам измерения массы диоксида плутония весовым методом и массовой доли плутония в диоксиде плутония кулонометрическим методом [8]. Изотопный состав плутония определялся масс-спектрометрическим методом [9] с подтверждением однородности изотопного состава плутония по высоте и радиусу контейнера гамма-спектрометрическим методом [9]. По результатам проведенных исследований была разработана и аттестована на уровне предприятия методика выполнения измерений массы плутония в контейнерах с диоксидом плутония с использованием счетчика нейтронных совпадений JCC-41 и программы анализа INCC [11].

Заключение

В работе представлены результаты разработки МИ массы плутония в контейнерах с диоксидом плутония при использовании счетчика нейтронных совпадений JCC-41 и программы анализа INCC [11].

МИ предназначена для проведения подтверждающих измерений массы плутония в диоксиде плутония.

Время измерения МИ каждым методом составляет 1200 с (20 циклов по 60 с), что обеспечивает минимальную случайную погрешность и время, достаточное для проведения подтверждающих измерений при инспекционных проверках.

Проведенные тестовые измерения показали, что суммарная погрешность методики определения массы плутония в диоксиде плутония обеими методами не превышает 20 % при доверительной вероятности $P = 0,95$.

Литература

1. Основные правила учета и контроля ядерных материалов. НП-030-05. –М.: НТЦ ЯРБ, 2005.
2. Swihoe M. Multiplication effects of neutron coincidence counting: uncertainties and multiplying reference samples / In: Proc. 7th ESARDA Ann. Symp. On Safeguards and Nucl. Mat. Management – ESARDA-18, Liege, Belgium, 1985.
3. Thomason R.S., Jeffcoat R.D., McClay P.A. Use of the Known-M Method for Nondestructive Assay of Plutonium Scrap / Westinghouse Savannah River Company. – Savannah River Site, Aiken, USA, Nucl. Mater. Manage. XXV-CD-ROM (Proc. Issue), 1999.
4. Орлов Э.М., Глаговский А.А., Карнозов В.Е., Клепацкий В.К. Направление исследований, необходимых при разработке требований к подготовке, упаковке и транспортировке «состаренного» энергетического диоксида плутония в модернизированном варианте ТУК-30. – Спб, 2004.
5. Руководство пользователя программного обеспечения INCC, Canberra, 2000.
6. Программа Geant 4. <http://cern.ch/geant4>.
7. ОСТ 95 10353-2007. Отраслевая система обеспечения единства измерений. Алгоритмы оценки метрологических характеристик при аттеста-

- ции методик выполнения измерений. – М.: ФГУП «ВНИИНМ им. А.А. Бочвара», 2008.
8. Диоксид плутония. Методика выполнения измерений массовой доли плутония на кулонометрическом потенциостате–интеграторе ПИК–200: МП-0401-119-03 ЦЗЛ. – Озерск, ФГУП «ПО «Маяк».
 9. ОСТ 95 732-86. Плутоний. Методика выполнения измерений изотопного состава в твердой фазе масс-спектрометрическим методом. – М.: ФГУП «ВНИИНМ им. А.А. Бочвара», 2006.
 10. Плутоний и его соединения. Методика выполнения измерений массовых долей изотопов плутония и изотопа америций-241 в плутонии гамма-спектрометрическим методом с использованием гамма-спектрометра U-Pu InSpector: МВИ 223.13.17.104/2006. – М.: ФГУП «ВНИИНМ им. А.А. Бочвара», 2006.
 11. Плутоний. Методика измерений массы плутония в контейнерах с диоксидом плутония с использованием счетчиков нейтронных совпадений JCC-41 и программы INCC: И.ЦЗЛ.МИ.073-2011. Свидетельство о метрологической аттестации № 1492-01.00062-2011. – Озерск, ФГУП «ПО «Маяк», 2011.