Глава 15

Приборы регистрации полного потока нейтронов и их применение

Дж. Спринкл
(Переводчик Н.В. Мошкина)

15.1 ВВЕДЕНИЕ

Приборы регистрации полного потока нейтронов (в российской практике принято название "нейтронные радиометры" — прим. пер.) обычно представляют собой приборы, которые не измеряют непосредственно энергию нейтронов. Они являются более простыми, чем счетчики нейтронных совпадений, способны обнаруживать меньшие количества материалов, излучающих нейтроны, и менее чувствительны к эффектам размножения нейтронов и изменениям эффективности. Они в меньшей степени способны различать изотопы или химические соединения, в которых образуются нейтроны. Иногда в этих приборах предусмотрена возможность частичной энергетической дискриминации для уменьшения сигнала от нежелательных составляющих регистрируемого излучения. Как правило, эти приборы используются в административном контроле для гарантии того, что анализируются только предназначенные для этого материалы.

Во многих приборах регистрации полного потока нейтронов используются детекторы на основе ^{3}He с замедлителем. Детекторы на основе ^{3}He относительно просты в эксплуатации и обладают высокой надежностью. Они могут выдержать облучение до флюенса приблизительно 10^{13} быстрых нейтронов/см^2 без серьезного радиационного повреждения и обеспечить необходимую дискриминацию полей гамма-излучения мощностью дозы менее 1 Р/ч. Приемлемая эффективность регистрации может быть достигнута тщательной проработкой конструкции. Счетчики нейтронов (производства США) имеют обычно диаметр 2,54 см и наполнены ^{3}He под давлением 4 атм. Эффективность регистрации таких счетчиков в поле тепловых нейтронов составляет около 90 %. Для регистрации нейтронов спонтанного деления с эффективностью около 20 % может быть сконструирована сборка детекторов с ^{3}He-счетчиками, размещенными на расстоянии 5 см друг от друга. Аналогичная сборка детекторов со счетчиками, наполненными BF_3, обеспечивает лучшую дискриминацию гамма-излучения (глава 13).

В этой главе описано несколько приборов регистрации полного потока нейтронов и их применение в порядке возрастания их размеров и сложности. В заключение приведены примеры трех приборов, используемых для специальных применений: два монитора влажности и энергетически независимый "длинный" счетчик.

15.2 НАПРАВЛЕННЫЙ НЕЙТРОННЫЙ ЗОНД SNAP

Направленный нейтронный зонд SNAP (Shielded Neutron Assay Probe) является самым простым и портативным нейтронным детектором из описанных в

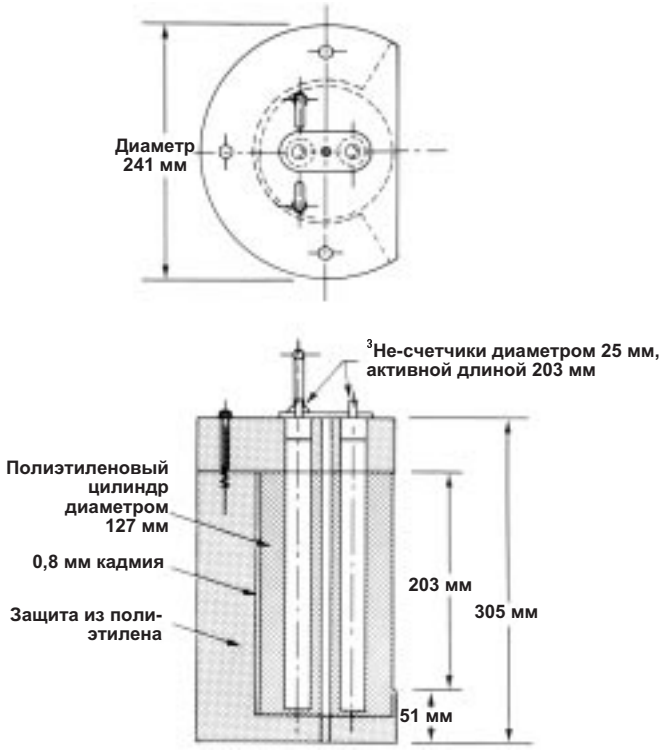

Рис. 15.1. *Детектор SNAP-II [1]*

этой главе. Его усовершенствованная версия SNAP-II [1] показана на рис. 15.1. SNAP-II состоит из двух ^{3}He-счетчиков диаметром 2,5 см, активной длиной 20 см и давлением 4 атм, размещенных в полиэтиленовом цилиндре диаметром 12,7 см. Диаметр цилиндра 12,7 см оптимален для регистрации нейтронов деления с энергиями от 1 до 2 МэВ. Поверхность полиэтиленового цилиндра покрыта тонким листом кадмия, преимущественно для поглощения фоновых тепловых нейтронов. Вдоль оси цилиндра имеется сквозной канал для размещения отдельных топливных стержней (ТВЭЛов — прим. пер.). Такая конфигурация обеспечивает высокую эффективность анализа ТВЭЛов, содержащих плутоний. С внешней стороны цилиндра расположена направленная защита толщиной 5,7 см; ограничение защиты по толщине обусловлено требованием портативности детектора. Вес прибора SNAP-II составляет всего 10 кг.

Направленная защита SNAP-II обеспечивает угол обзора в 120°. На рис. 15.2 представлена зависимость относительной чувствительности детектора от угла, под которым относительно оси детектора размещается источник PuLi. Отношение эффективностей регистрации при размещении источника с передней и задней сторон детектора составляет 4,2 для источника PuLi (средняя энергия нейтронов 0,65 МэВ) и снижается до 2,2 для источника нейтронов спонтанного деления ^{252}Cf (средняя энергия нейтронов 2,2 МэВ).

Собственная эффективность детектора SNAP-II для нейтронов деления составляет приблизительно 17 %, что значительно лучше, чем эффективность 10 % исходной модели детектора SNAP [2]. Кроме того, площадь активного окна детектора SNAP-II более, чем в два раза превышает площадь активного окна его пред-

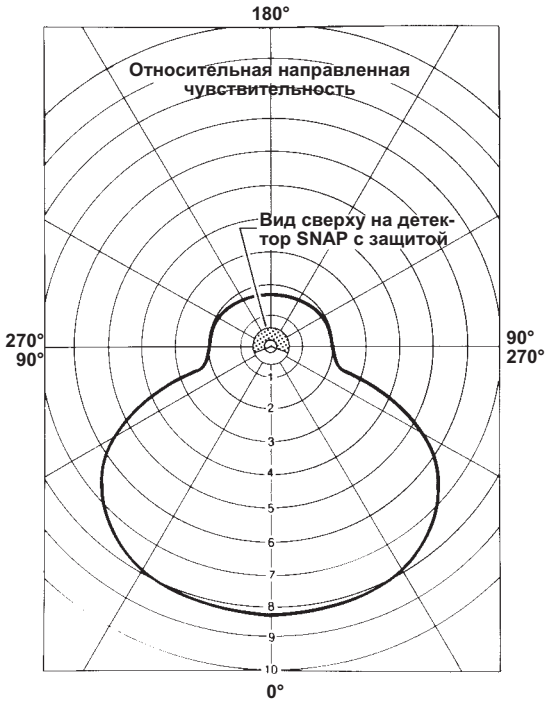

Рис.15.2. *Круговая диаграмма чувствительности детектора SNAP, измеренная в средней плоскости с источником PuLi (средняя энергия — 0,65 МэВ) [2]*

шественника. Следовательно, полная эффективность регистрации для точечного источника, находящегося на расстоянии 1 м, увеличивается в 4,5 раза до значения приблизительно 0,01 % [1]. Для других расстояний между источником и детектором полная эффективность регистрации пропорциональна $(\mathbf{r} + \mathbf{a})^{-2}$, где **r** — расстояние от оси детектора, измеряемое в сантиметрах, **a** — постоянная, зависящая от диаметра замедляющего цилиндра. Обычно постоянная **a** равна примерно 3 см, а для того, чтобы аппроксимация была допустима, расстояние **r** должно быть больше, чем 3**a**. Эта функция эффективности не оправдывает себя в случае, когда детектор находится рядом с поверхностями, отражающими нейтроны, такими как бетонный пол. Для полевых условий, в которых требуется использование SNAP-II в зоне, окруженной нейтронными источниками и отражателями, определение соответствующего фона может быть затруднено. В этих обстоятельствах полезно установить подходящий полиэтиленовый клин в угол обзора детектора.

SNAP-II был разработан для работы в полевых условиях и используется в режиме полного счета нейтронов, поскольку измеряемый сигнал часто низок. В этих условиях важно использовать простую и компактную электронику. Для данного применения хорошо подходят такие коммерчески доступные компактные устройства, как Eberline SAM I или Ludlum Model 22. Они содержат источник высокого напряжения, платы предусилителя и усилителя, дискриминаторы и счетчики импульсов в одном небольшом корпусе.

Детектор SNAP-II предоставляет очень ограниченный объем информации об энергии или направлении регистрируемых нейтронов. Часто он используется для измерения отложений или проверочных измерений, когда недоступны эталонные стандартные образцы. Примеры таких применений приведены ниже.

15.2.1 Контроль металлического плутония

Детектор SNAP использовался для контроля содержания ^{240}Pu в слитках металлического плутония в Хэнфорде (Ричланд, штат Вашингтон) [3]. Основным источником нейтронов в металлическом плутонии является спонтанное деление изотопа ^{240}Pu. Кроме того, в слитках, содержащих 2000 г плутония, ярко выражены эффекты размножения нейтронов, которые могут увеличивать полную скорость счета нейтронов на 90 % и зависят от геометрии слитков.

Измеренный отклик детектора SNAP, представляющий собой полную скорость счета нейтронов T (полное число нейтронов в секунду), выражался в виде

$$T(\text{н}/\text{с}) = k\,m\,I\,F\,, \tag{15.1}$$

где k — градуировочная постоянная;
m — масса плутония;
I — массовая доля изотопа ^{240}Pu;
F — коэффициент, учитывающий размножение нейтронов в слитке.

Коэффициент F был определен эмпирически подгонкой серии расчетов размножения нейтронов в объеме слитков методом Монте-Карло по следующему выражению:

$$F = 1 + (1 - aI)m/b\,, \tag{15.2}$$

$$a = \frac{619{,}5\,(d - 2{,}673)^2 + 1801}{b}\,, \tag{15.3}$$

$$b = 417{,}8\,(d - 1{,}333)^2 + 1757\,, \tag{15.4}$$

где d — диаметр слитка в дюймах;
a, b — коэффициенты, приведенные в дюймах.

Уравнение (15.1) может быть решено либо относительно m, либо относительно I. В Хэнфорде один из слитков был выбран в качестве "стандартного образца", а остальные считались "неизвестными" образцами. Статистический анализ 248 слитков выявил 8 выбросов. Было проверено содержание ^{240}Pu в оставшихся 240 слитках. Диапазон масс слитков составил от 1453 до 2204 г, а массовая доля изотопа ^{240}Pu варьировалась в диапазоне от 4,6 до 18,1 %. Неопределенность измерения составила 2 % (1σ), а сходимость результатов измерений при времени измерения 30 с была лучше 1 %.

15.2.2 Контроль баллонов с UF_6

Детекторы SNAP использовались на установках по обогащению урана и в хранилищах для проверки содержания баллонов с UF_6 [4]. В гексафториде урана нейтроны возникают в результате спонтанного деления изотопа ^{238}U и в результате реакции $^{19}F(\alpha,n)^{22}Na$. Основным излучателем альфа-частиц является ^{234}U. В природном UF_6 80 % нейтронов образуются в (α,n)-реакциях, а оставшиеся — при спонтанном делении. С увеличением обогащения вклад нейтронов (α,n)-реакции резко возрастает. В частности, при увеличении обогащения с 3 до 90 % интенсивность образования нейтронов возрастает в 30 раз. Таким образом, полная скорость счета нейтронов является чувствительной мерой массы и обогащения UF_6. Нейтроны обладают достаточно хорошей проникающей способностью, однако при прохождении в объеме UF_6 имеют место эффекты поглощения и размноже-

ния. В табл. 15.1 представлены вычисленные коэффициенты утечки нейтронов из различных баллонов. Для более высоких обогащений эффект размножения нейтронов начинает преобладать над эффектом их поглощения.

При проверке содержимого баллонов с UF_6 детектор SNAP размещают вплотную к баллону, параллельно его оси, в середине баллона. Такая геометрия является менее позиционно зависящей, менее чувствительной к высоте заполнения баллона и более удобной для оператора, чем геометрия, в которой оператору необходимо держать SNAP напротив одного из концов баллона. Фон от соседних баллонов часто высок. Приемлемые оценки значений фона (на уровне моря) получаются скорее при направлении активного окна детектора вверх, чем в направлении вниз, в сторону баллона. Отклик от баллона, стоящего на краю большого ряда баллонов, может оказаться меньше, чем отклик от баллона, находящегося в центре такого ряда. Для баллонов, содержащих UF_6 разных обогащений, скорость полного счета нейтронов T дается выражением

$$T = [cf(234) + df(238)]m, \qquad (15.5)$$

где m — полная масса урана;

c, d — эмпирические градуировочные постоянные;

f(234), f(238) — массовые доли изотопов ^{234}U и ^{238}U, соответственно.

Таблица 15.1 – Коэффициент утечки нейтронов для различных баллонов

Тип баллона	Масса UF_6, кг	Обогащение по ^{235}U, вес. %	Коэффициент утечки
14 тонн	12 700	0,71	0,55
30B	15 00	0,71	0,80
12B	140	3,00	0,97
5A	15	10,00	1,00
5A	15	35,00	1,00
2S	1	65,00	1,01
2S	1	90,00	1,02

При низких обогащениях f(238) почти постоянна, а отношение f(234)/f(235) очень близко к константе. Тогда уравнение (15.5) может быть упрощено:

$$T = [e + gf(235)]m, \qquad (15.6)$$

где e и g — градуировочные постоянные.

Очевидно, что если изотопный состав UF_6 для всех баллонов одинаков, уравнение (15.6) может быть еще более упрощено до вида T = h m, с единственной градуировочной постоянной h.

Для баллонов весом 2,5, 10 и 14 тонн значение неопределенности измерения обычно равно 5 %. При временах измерения 60 и 120 с статистика не дает ощутимого вклада в эту неопределенность. Опыт, полученный в полевых условиях, показывает, что для каждого баллона требуется индивидуальная градуировка, воз-

можно, вследствие того, что детектор видит разные баллоны под различными телесными углами. Если высота заполнения цилиндра изменится на 50 %, неопределенность измерения возрастет приблизительно на 10 %. Измерения, проводимые детектором SNAP, могут выявить наличие твердых остатков в опустошенных баллонах (так называемые хвосты), однако небольшое количество измеряемого материала обуславливает плохую сходимость результатов измерения, что приводит к необходимости увеличения времени измерения до 1000 с.

15.2.3 Измерение отложений

Детекторы SNAP использовались на установках ядерного топливного цикла для измерения отложений ядерных материалов [5-7]. Измеряемый материал должен являться мощным источником нейтронного излучения. Этому условию удовлетворяют все соединения плутония. Чтобы получить достаточно большой сигнал от урана, он должен быть обогащен и находиться в матрице, способствующей возникновению (α,n)-реакций.

Основным преимуществом использования методик, основанных на регистрации нейтронного излучения, при измерении отложений является высокая проникающая способность нейтронов. Можно зарегистрировать нейтронное излучение из насосов, печей и другого тяжелого оборудования, которое является слишком плотным для прохождения гамма-излучения. Недостатками нейтронных методик являются низкое пространственное разрешение, недостаточная изотопная избирательность и чувствительность к эффектам матрицы. Эффекты матрицы включают в себя отражение, размножение, замедление нейтронов на присутствующей влаге и реакции (α,n) в материалах с низким Z. Большинство из этих эффектов в той или иной степени присутствуют всегда при измерении отложений и затрудняют интерпретацию результатов нейтронных измерений. Обычно более надежным подходом является использование комбинации нейтронных и гамма-измерений.

По причинам, упомянутым выше, для градуировки детектора SNAP при измерении отложений необходимы стандартные образцы с изотопным и химическим составами, близкими материалам, используемым в технологическом процессе. При градуировке для конкретной геометрии полезно использовать макеты реального оборудования. Для всех измерений отложений в технологическом процессе типичны значения неопределенности измерений от 25 до 50 %. Дополнительная информация по измерению отложений с использованием нейтронных методик представлена в разделе 20.6 главы 20.

15.2.4 Другие применения

Простые детекторы типа SNAP могут быть использованы в качестве нейтронных мониторов внутри и вне помещений хранилищ и производств [8, 9]. Мониторы используются для контроля постоянства нейтронного потока. В зависимости от применения, они могут быть оснащены стойкой к внешним воздействиям электроникой, простой серийной электроникой или ^{3}He-счетчиками без замедлителя.

15.3 ПЛОСКИЕ ДЕТЕКТОРЫ

Плоские детекторы представляют собой сборку детекторов тепловых нейтронов, вставленных в пластину из замедляющего материала. Они больше и тяжелее, чем детекторы SNAP, однако обеспечивают более высокую эффективность регистрации, а при добавлении более тяжелой защиты и коллиматоров — и лучшую направленность. Плоские детекторы, как правило, работают в комбинации с модулями электроники в стандарте NIM (такими, как блок высокого напряжения, усилитель, одноканальный анализатор и счетчик импульсов) и обычными предусилителями, которые достаточно малы и размещаются внутри соединительной коробки, содержащей схему подключения счетчиков. Иногда для анализа амплитуд импульсов применяется многоканальный анализатор, однако в обычных измерениях чаще находят применение счетчики импульсов и одноканальные анализаторы.

Часто плоские детекторы состоят из ^{3}He-счетчиков, размещенных параллельно друг другу в блоке замедлителя [10]. Размеры и число счетчиков зависят от конкретного применения. На рис. 15.3 показан вариант плоского детектора, который содержит девять ^{3}He-счетчиков диаметром 2,5 см и давлением 4 атм, помещенных в полиэтиленовую пластину толщиной 10 см. Соединительная коробка жестко фиксирует положение счетчиков и закрывает провод высокого напряжения и предусилитель в герметичном электрически экранированном модуле. Для некоторых задач полиэтиленовая пластина покрывается тонким листом кадмия для поглощения тепловых нейтронов.

15.3.1 Контроль обогащения UF_6

Плоский детектор может работать без внешней защиты или с защитой для получения отклика, чувствительного к направлению. На рис. 15.4 представлен направленный плоский детектор с защитой, предназначенный для контроля обогащения UF_6. Угол обзора детектора равен ~90°, т.е. меньше, чем у SNAP-II. Однако

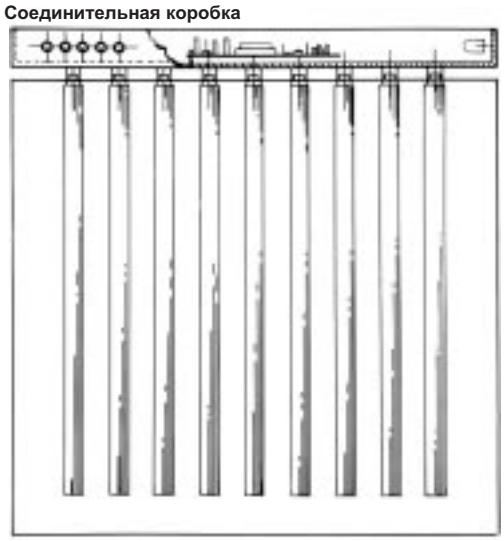

Рис.15.3. *Вид сбоку плоского детектора с девятью ^{3}He пропорциональными счетчиками диаметром 2,5 см. В соединительной коробке находится плата предусилителя*

Рис. 15.4. *Плоский детектор с направленной защитой, разработанный для контроля обогащения UF_6*

отношение эффективностей регистрации плоского детектора при положении источника спереди и сзади детектора почти в пять раз выше. Это отношение равно 33 для нейтронов источника AmLi и равно 9 для нейтронов источника ^{252}Cf. Собственная эффективность регистрации составляет ~18 % для нейтронов спектра деления. Полная эффективность регистрации для точечного источника изменяется приблизительно как 1/r для расстояний r, меньших, чем размеры детектора, и как $1/r^2$ для расстояний r, превышающих размеры детектора в два раза. Такое соотношение нарушается в присутствии поглотителей или отражателей нейтронов. Для измерения фонового нейтронного излучения детектор может быть повернут на 180° в сторону, противоположную измеряемому источнику, либо активное окно детектора может быть покрыто толстым слоем полиэтилена. Полиэтилен толщиной около 10 см снижает нейтронный сигнал почти в 10 раз.

Для проверки функционирования центрифужных установок была предложена система плоских детекторов [11]. Возможность регистрации обусловлена тем, что производство высокообогащенного урана сопровождается увеличением нейтронных полей в результате (α,n)-реакций под действием распада ^{234}U в газообразном UF_6. Благодаря более низкой массе, $^{234}UF_6$ в процессе разделения обогащается даже в большей степени, чем $^{235}UF_6$. Поскольку количество высокообогащенного урана может быть небольшим, то возрастание отклика плоского детектора также может быть незначительным по сравнению с обычным фоном. Чувствительность можно повысить путем оптимизации конструкции (см. главу 14), использованием фильтрации и применением методик принятия решений [12].

Предлагаемая система будет состоять из системы оптимизированных детекторов, размещенных по всему зданию технологического процесса, с централизованным сбором и обработкой данных. Во время обычной работы в отсутствие оператора компьютер будет дистанционно считывать показания детекторов. С помощью экспериментальных измерений заводских стандартных образцов и модели-

рования методом Монте-Карло, чувствительность регистрации должна быть установлена таким образом, чтобы обеспечивать контроль за производством высокообогащенного урана. Возможными источниками ложных тревог являются обычные перемещения баллонов с UF_6 и нейтронные источники, используемые для проверки аварийной сигнализации системы контроля ядерной безопасности.

15.3.2 Измерение отложений

Плоские детекторы использовались для измерений отложений плутония после операций зачистки [13]. В модели, используемой для интерпретации результатов измерений, предполагается, что геометрия исходного материала может быть аппроксимирована однородной плоскостью вблизи пола. Истинность этого предположения может быть проверена путем перемещения детектора в различные позиции и повтором измерений. Использовался детектор без защиты с площадью фронтального активного окна 0,23 $м^2$. Для достижения максимальной чувствительности к низкоэнергетическим нейтронам были удалены кадмиевые поглотители. Преимуществом использования нейтронных методик по сравнению с методиками на основе гамма-излучения является то, что проблема экранирования не столь важна, а отражение нейтронов в объеме помещения (нейтроны рассеваются поверхностями помещения) ведет к возрастанию отклика счетчика от материала, находящегося на краю помещения. Эти два эффекта уменьшают число точек измерений, необходимых для надежного контроля установки. Экраны между помещениями были хорошими и, следовательно, перенос излучения между помещениями не создавал проблем. Поскольку химическая и изотопная формы плутония были известны, можно было определить зависимость отклика детектора от количества граммов плутония. Отклик детектора был усреднен по нескольким измерительным позициям с целью снижения чувствительности детектора к "горячим точкам" (или для определения факта их существования). Хотя эта процедура дает результат в лучшем случае с погрешностью 50 %, такие результаты достаточны для ситуаций, когда по большой площади распределены тонким слоем несколько сотен граммов плутония.

15.4 СЧЕТЧИК С 4π-ГЕОМЕТРИЕЙ

Счетчик с 4π-геометрией окружает образец таким образом, чтобы телесный угол регистрации нейтронов достигал 4π. Такая конфигурация обеспечивает максимально возможную эффективность счета и наилучшую защиту. Для снижения влияния ненаправленного фонового нейтронного излучения на всех внешних поверхностях детектора может быть размещена защита. Анализируемый образец помещается в центральный колодец или камеру для образца. Обычно конструкция счетчика с 4π-геометрией разрабатывается таким образом, чтобы обеспечить достаточно равномерный отклик по всему объему камеры. Это очень важно для измерения гетерогенных образцов. Большинство конструкций счетчиков с 4π-геометрией оптимизированы для конкретного применения. Для гарантии того, что образцы имеют соответствующую высоту заполнения, состав и матрицу, требуется административный контроль. Если характеристики образцов хорошо известны и согласуются с характеристиками переноса нейтронов, легко получить результаты анализа с неопределенностью, не превышающей нескольких процентов.

Электроника счетчика с 4π-геометрией схожа с электроникой плоских детекторов. Обычно используется от четырех до шести сборок нейтронных детекторов, выходы которых объединяются для получения скорости счета полного потока нейтронов. При добавлении схемы совпадений та же самая конфигурация может использоваться и для счета совпадений. Процесс регистрации полного потока нейтронов или нейтронных совпадений обычно автоматизирован с использованием калькулятора или компьютера. Компьютер может быть запрограммирован и осуществлять контроль электроники счетчика, преобразование отклика в результат измерения массы с использованием градуировочной зависимости и обеспечение контроля измерений.

15.4.1 Счетчик для контейнеров

На рис.15.5 показана конструкция счетчика с 4π-геометрией, используемого в Объединенной ядерной корпорации UNC (United Nuclear Corporation) в Ричланде, штат Вашингтон, [14] для измерения концевых обрезков в процессе экструзионного изготовления топлива. Концевые обрезки состоят по крайней мере на 75 % из низкообогащенного урана, а также из циркалоя и меди. Они упаковываются в большие транспортные контейнеры и загружаются в счетчик с помощью "вилочного лифта". Обычный вес нетто образцов составляет 320 кг, однако он может достигать 550 кг. По нескольким причинам в корпорации UNC предпочтение отдали методу регистрации полного потока нейтронов вместо регистрации совпадений. Метод регистрации полного потока нейтронов менее чувствителен к эффектам размножения нейтронов, возникающим при вынужденном делении ^{235}U.

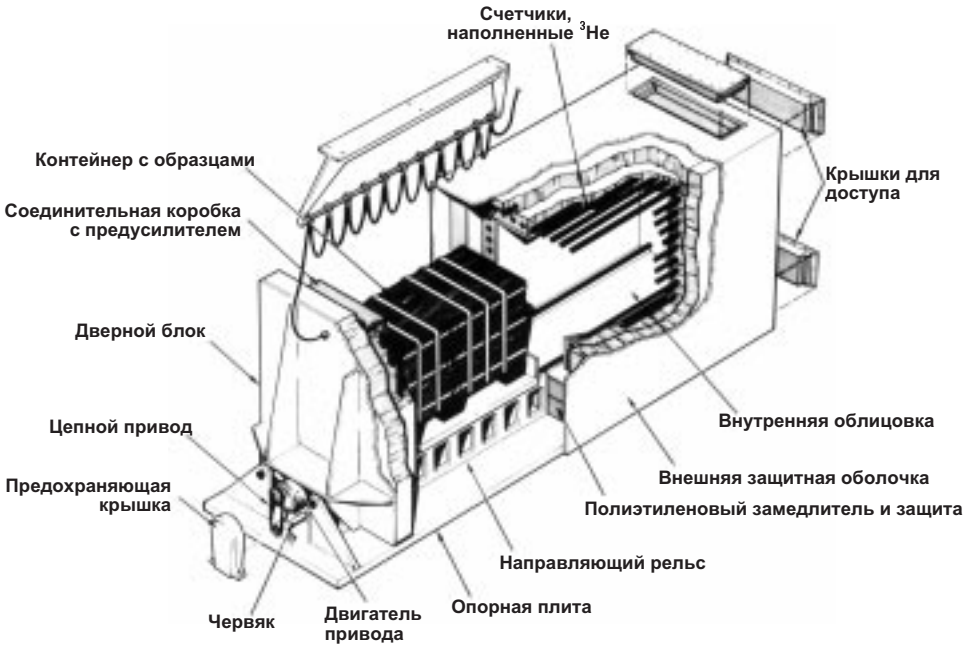

Рис.15.5. *Счетчик для контейнеров, используемый в Объединенной ядерной корпорации (UNC)*

Метод менее чувствителен к пространственным эффектам изменения эффективности регистрации внутри измерительной камеры. Скорость счета совпадений от ^{238}U достаточно низка и составляет от 0,2 до 0,5 от скорости счета совпадений, вызванных космическим излучением. Метод регистрации полного потока обеспечивает скорость счета, превышающую в 10 раз скорость счета совпадений. При этом легко осуществлять административный контроль нахождения в счетчике только необходимых образцов.

Наблюдаемый сигнал от концевых обрезков обусловлен, в основном, спонтанным делением ^{238}U. Один килограмм ^{238}U испускает 13,6 н/с. Внутренняя поверхность камеры для образца облицована кадмием. В этих условиях полная эффективность для нейтронов источника AmLi, размещенного в центре камеры, равна 20 %. Внешняя защита состоит из полиэтилена толщиной 10,2 см. Независимые измерения с плоским счетчиком показали, что полиэтиленовая защита снижает сигнал фона от топлива, хранящегося в соседнем помещении, в 25 раз. Кроме того, административный контроль ограничивает количество урана, находящегося вне счетчика. Ни один контейнер не может находиться ближе, чем на расстоянии 2,4 м от счетчика, допускается размещение только одного контейнера ближе, чем 15 м. Счетчик полностью автоматизирован, а пользователь работает с компьютером Hewlett Packard HP-85. Принята ежедневная процедура контроля нормального функционирования счетчика. Она включает измерение фона, который должен быть ниже, чем отклик от 11 эффективных килограммов урана, и анализ стандартного образца. При этом результаты измерений для стандартного образца должны находиться в пределах 2 % от заданного значения.

На рис. 15.6 представлена градуировочная кривая, полученная с использованием образцов конечного продукта процесса экструзии. Времена счета выбира-

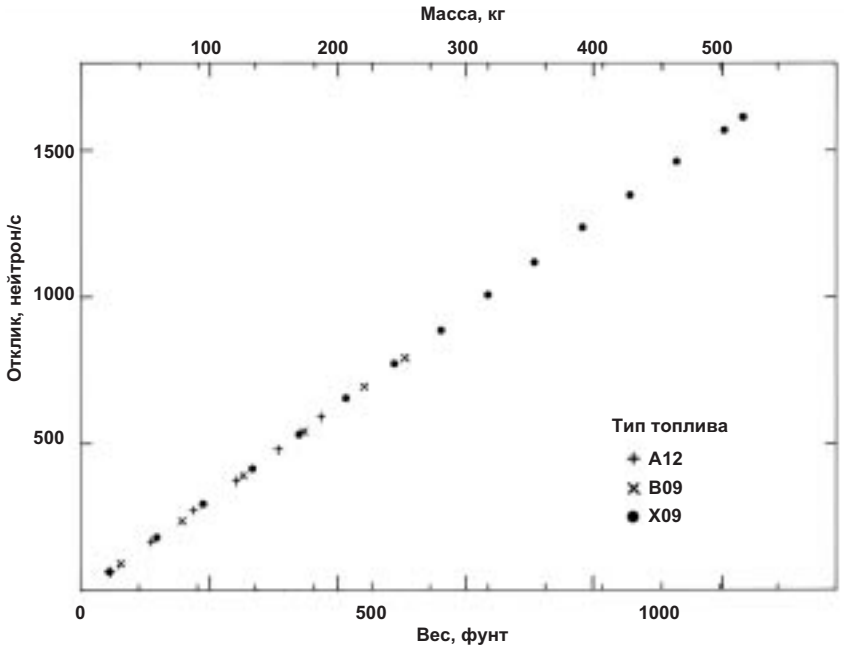

Рис. 15.6. *Данные градуировки счетчика для контейнеров корпорации UNC, показывающие зависимость отклика нейтронов от массы топлива*

лись равными 1000 с; при этом статистическая сходимость результатов измерений была лучше, чем 1 %. Для градуировки использовались три типа топлива: материал с обогащением 0,947 % в цилиндрах диаметром 6 см (на рис. помечен значками «+»); материал с обогащением 0,947 % в цилиндрах диаметром 3 см, так что плотность упаковки в два раза больше (на рис. помечен кружочками); и материал с обогащением 1,25 % в цилиндрах диаметром 6 см (на рис. помечен значками «x»). Для материала с обогащением 1,25 % использовались два различных транспортных контейнера, вес которых различался на 20 %. Отклик от более тяжелого контейнера был на 2 % ниже, чем отклик от более легкого контейнера. Точность анализа в настоящее время ограничивается 2-3 %, что обусловлено различиями в транспортных контейнерах. Исследование эффектов матрицы показывает, что неопределенность, обусловленная этими эффектами, составит 1 % или меньше. Предварительное сравнение с результатами анализа концевых обрезков, которые были растворены после проведения измерений, показало смещение результатов менее 1 %.

15.4.2 Измерение источников теплоты на основе ^{238}Pu

Для анализа источников теплоты на основе ^{238}Pu в Лос-Аламосе был разработан небольшой счетчик с 4π-геометрией [15]. Источники теплоты представляют собой капсулы весом 10 г, содержащие $^{238}PuO_2$. Плутоний обогащен до 83 % по ^{238}Pu, а кислород высоко обогащен по ^{16}O. Теплота образуется при испускании альфа-частиц в процессе распада ^{238}Pu. Высокая скорость испускания альфа-частиц может также привести к высокой скорости образования нейтронов в результате (α,n)-реакции на ядрах изотопов ^{17}O и ^{18}O, несмотря на обеднение кислорода по ^{17}O и ^{18}O. Количественный анализ ^{238}Pu затруднен вследствие того, что точное оставшееся количество изотопов ^{17}O и ^{18}O неизвестно. Однако основная цель измерений состоит в том, чтобы убедиться в значительном снижении скорости испускания нейтронов из (α,n)-реакции. На плутониевой установке в Лос-Аламосе изготовление $^{238}PuO_2$ производится отдельно от других материалов. Двуокись подвергается специальной обработке, которая обеспечивает более уникальные характеристики тепловыделения в легко обнаруживаемых количествах. Таким образом, легко реализуется административный контроль измерения именно $^{238}PuO_2$.

Счетчик для источников теплоты показан на рис. 15.7. Его конструкция достаточно традиционна и состоит из полиэтиленового замедлителя высокой плотности, кадмиевого поглотителя, ^{3}He-счетчиков, внешней алюминиевой оболочки и держателя для образца из нержавеющей стали и алюминия для размещения источника теплоты в центральной полости во время измерения. Для снижения высокой скорости счета фона, ожидаемой в производственном помещении, используется полиэтиленовая защита толщиной 10 см. Эффективность счетчика составляет 18 %. Сходимость результатов измерений, равная 0,5 % или лучше, достигается за время измерения 100 с. Погрешность измерения составляет 1 % для одной партии материала и 5 % для разных партий. Большинство расхождений между партиями обусловлено различным изотопным составом кислорода.

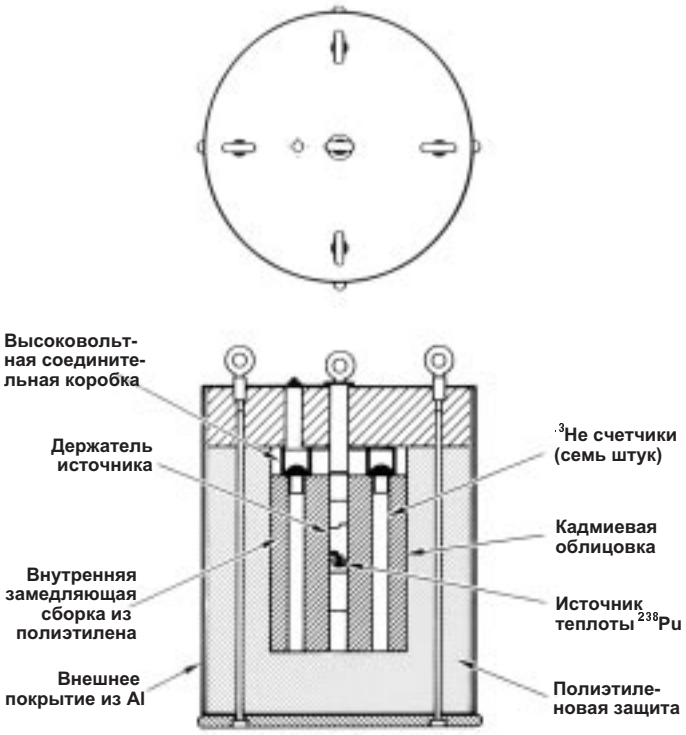

Рис. 15.7. *Счетчик с 4π-геометрией для источников теплоты на основе ^{238}Pu [15]*

15.5 ИЗМЕРЕНИЕ НИЗКОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Пассивный счет нейтронов часто используется для измерения отходов ядерных материалов, поскольку нейтроны могут проникать сквозь большие контейнеры с отходами гораздо лучше, чем гамма-излучение, особенно, если отходы содержат плотные материалы с высоким Z. Объем контейнеров с отходами обычно составляет 55 и более галлонов (около 200 л), и использование пассивных детекторов гамма-излучения дает занижение оценки количества ядерного материала, обусловленное поглощением гамма-излучения в матрице. С другой стороны, использование нейтронных измерений приводит к переоценке количества ядерного материала; "дополнительные" нейтроны образуются за счет (α,n)-реакций в матрице или за счет замедления с последующим вынужденным делением. Регистрация нейтронных совпадений может существенно снизить эту чувствительность к эффектам матрицы путем дискриминации между нейтронами деления источника и нейтронами, возникшими в результате (α,n)-реакции в матрице. Однако регистрация полного потока нейтронов может оказаться более чувствительной к небольшим количествам ядерного материала, особенно если (α,n)-реакции увеличивают скорость испускания нейтронов. Например, метод регистрации полного потока нейтронов на несколько порядков более чувствителен при анализе фторидов PuF_4 или UF_6. Метод регистрации полного потока нейтронов часто используется скорее для качественного анализа, чем для количественного.

15.5.1 Чувствительность регистрации

В табл. 14.2, 14.3 и 14.4 (см. главу 14) приведены интенсивности испускания нейтронов некоторых наиболее распространенных ядерных материалов. Из этих таблиц видно, что в материалах с низким Z в результате (α,n)-реакций выход нейтронов значительно возрастает. Поскольку выход нейтронов для соединений плутония гораздо выше, чем выход нейтронов для соединений урана, чувствительность метода регистрации полного потока нейтронов к плутонию гораздо выше, чем к урану. В данном случае чувствительность анализа определяется как отношение ΔC/C, где ΔC представляет собой погрешность величиной в одно стандартное отклонение числа отсчетов C.

При измерении низкоактивных отходов важным параметром является порог обнаружения, который представляет собой такое количество материала, которое вызывает отклик детектора, превышающий фон в d = C/ΔC раз. При скорости счета фона b, гораздо меньшей скорости счета полезного сигнала, порог обнаружения m (в граммах) дается выражением

$$m = d^2 / At_1 . \qquad (15.7)$$

Для скорости счета фона b, много большей скорости счета полезного сигнала,

$$m = \frac{d}{A}\sqrt{\frac{b}{t_1} + \frac{b}{t_2}} , \qquad (15.8)$$

где A — скорость счета прибора, измеряемая в числе отсчетов в секунду на грамм;
t_1 и t_2 — время измерения сигнала и фона, соответственно.

Порог обнаружения при превышении сигналом 3σ над фоном (d = 3) составляет 23 мг для плутония низкого выгорания, 0,5 мг для PuF_4, 170 г для урана естественного обогащения и 30 г для UF_6 естественного обогащения [16]. Эти расчеты приведены для времени измерения 1000 с в большом счетчике с 4π-геометрией с абсолютной эффективностью 15 %. Счетчик с 4π-геометрией рекомендуется для анализа отходов низкой активности вследствие небольшой интенсивности испускания нейтронов и гетерогенной природы отходов.

Анализ результатов расчета порогов обнаружения показывает, что пассивный счет нейтронов от низкоактивных отходов обычно практически применим только к плутонию. Для 55-галонных контейнеров, содержащих 100 кг материала с непоглощающей матрицей, порог обнаружения плутония, равный 23 мг, соответствует удельной активности примерно 23 нКи/г. Это значение предела обнаружения легко может возрасти на порядок для реальных контейнеров, в которых содержатся значительные количества замедлителей или поглотителей нейтронов. Однако в большинстве случаев использование пассивного нейтронного анализа дает завышенную оценку количества наличного ядерного материала, что обусловлено (α,n)-реакциями в матрице. Если химический и изотопный составы отходов неизвестны, то не может быть выполнено никакой количественной оценки содержания ядерных материалов в контейнере, кроме оценки верхнего предела.

15.5.2 Анализ 55-галонных бочек

В Лос-Аламосе был исследован метод регистрации полного потока нейтронов для 55-галонных (200-литровых) бочек, содержащих отходы, загрязненные PuO_2 [17]. Измерялся набор из 17 стандартных образцов, изготовленных на пред-

приятии по переработке плутония в Рокки Флэтс [18]. Стандартные образцы предназначались для моделирования загрязненных технологических материалов и остатков, обычно анализируемых в счетчике для бочек Рокки Флэтс. В табл. 15.2 представлены характеристики этих бочек. Для 17 бочек было получено стандартное отклонение ±16 %. Поскольку изотопный и химический составы плутония были "постоянными" и хорошо известными, сигнал регистрации полного потока нейтронов являлся приемлемой мерой содержания плутония.

15.5.3 Анализ больших упаковок

На предприятии в Рокки Флэтс был разработан и интенсивно использовался достаточно большой нейтронный счетчик для анализа упаковок с отходами размером 1,2×1,2×2,1 м [19]. В этом счетчике с 4π-геометрией используются двенадцать сцинтилляционных детекторов ZnS диаметром 30 см, размещенных вокруг камеры для образца. Поскольку эти детекторы быстрых нейтронов также обладают некоторой чувствительностью к гамма-излучению, порог дискриминатора устанавливается выше 1,3 МэВ (энергия гамма-излучения ^{60}Co). При этом большая часть нейтронного сигнала также отсекается, и измеренная эффективность счетчика составляет 0,1 %. Хотя регистрируемый сигнал в основном вызван нейтронами спонтанного деления, вследствие низкой эффективности регистрации метод регистрации полного потока нейтронов является более предпочтительным, чем метод регистрации нейтронных совпадений.

Таблица 15.2 – Физические характеристики 55-галонных стандартных бочек на предприятии в Рокки Флэтс

Описание	Матрица	Состав матрицы, вес. %	Средний вес-нетто матрицы, кг	Средняя плотность матрицы, г/см^3	Загрузка плутонием (в виде PuO_2), г Pu
Прессованный графит	Графит зернистостью 60 меш	100	110	0,53	60; 145; 195
Сухая органика	Углерод Пластмасса Целлюлоза	90 5 5	24	0,12	10; 165; 175
Влажная органика	Целлюлоза Вода Пластмасса	80 15 5	51	0,25	28,5; 166
Дезактивируемые материалы	Поливинил Свинцовые перчатки Полиэтилен Целлюлоза Хирургические перчатки	42 28 20 7 3	32	0,15	10; 90; 160
Кольца Рашига	Кварцевое стекло с 12 % бора в виде B_2O_3	100	82	0,39	40; 95; 185
Резина	Дувакс 1×4	100	:	:	25; 100
Бенелекс — органическое стекло	—	—	:	:	75

Основными источниками погрешности счетчика для упаковок являются непостоянство эффектов матрицы и неизвестная химическая форма плутония. Результат сравнений со счетчиком для 55-галонных бочек показывает, что измерения со счетчиком для упаковок дают завышенную оценку содержания плутония. Типичная загрузка упаковки составляет менее 100 г плутония; время измерения обычно составляет 200 с. Результаты измерений обычно согласуются с целевыми значениями в пределах коэффициента 4.

Счетчик для упаковок используется для отбора упаковок, которые необходимо вскрыть и проверить более тщательно. Периодически счетчик обнаруживает упаковки, которые были некорректно описаны в документах. Для получения более точных количественных результатов измерения объединяются с методом пассивного гамма-счета.

15.6 СПЕЦИАЛЬНЫЕ ПРИМЕНЕНИЯ

Специальные применения, описанные в этом разделе, связаны с энергетическим спектром нейтронного излучения, наблюдаемым с помощью некоторых приборов пассивного анализа. В первых двух примерах наблюдаемый энергетический спектр используется для определения специфических характеристик образца.

15.6.1 Анализатор водорода на основе источника ^{252}Cf

Анализатор водорода на основе источника ^{252}Cf (рис. 15.8) может определять содержание водорода в небольших образцах урана путем измерения смягчения нейтронного спектра близко расположенного источника ^{252}Cf [20]. Анализатор состоит из стального блока с отверстиями, высверленными для фиксации двух никелевых цилиндров диаметром 76 мм. В одном из цилиндров находится источник ^{252}Cf, а в другом — образец и два нейтронных детектора на основе ^{3}He, что подробно показано на рис. 15.9. Для образцов, содержащих водород, скорость счета нейтронов возрастает, поскольку ^{3}He-счетчики обладают более высокой эффективностью для нейтронов низких энергий. Этот эффект матрицы усиливается, если вместо полиэтиленовых замедлителей вокруг образца и детекторов разместить стальные отражатели.

Электроника счета импульсов состоит только из одноканального анализатора. Использование достаточно мощного калифорниевого источника, обеспечивающего скорость счета порядка 10 кГц, дает сходимость результатов, равную 0,1 %, при вполне приемлемом времени измерения 100 с. За трехдневный период наблюдался временной дрейф в 0,3 %. Однако в реальности данные получают при измерении образца, перед которым или после которого выполняются измерения фона. Таким образом, наличие временных дрейфов не является проблемой.

На рис. 15.10 представлен отклик анализатора (разность между числом отсчетов от образца и фона) в зависимости от содержания водорода. Прямая линия представляет собой подгонку данных методом наименьших квадратов. Четыре образца, указанные на графике, имели графитовую матрицу и одинаковый объем. На рис. 15.11 показано влияние увеличения содержания изотопа ^{235}U на отклик анализатора водорода. Анализатор водорода первоначально был предназначен к использованию вместе с системой анализа небольших образцов SSAS (Small Sam-

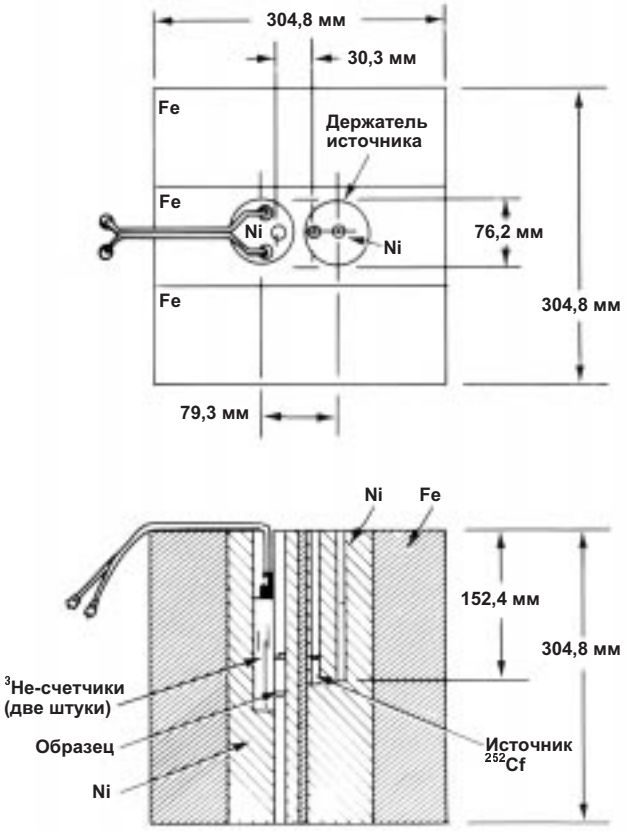

Рис. 15.8. *Анализатор водорода на основе источника ^{252}Cf*

ple Assay System) [21] для определения содержания урана во влажных урановых ТВЭЛах. Система SSAS определяет содержание урана, но результат измерения зависит от содержания водорода. Поэтому, для получения более точных результатов анализа используется процедура итераций. Сначала с системой SSAS проводят измерения содержания урана с погрешностью примерно ±10 %. Затем с помощью анализатора водорода определяют содержание водорода с погрешностью

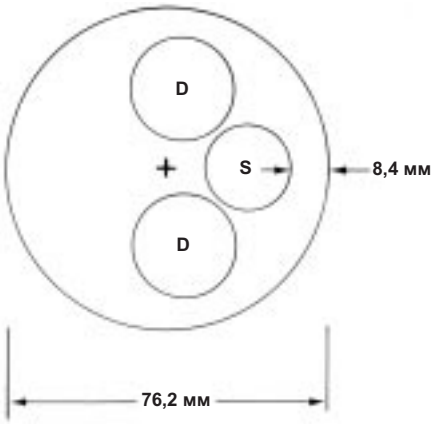

Рис.15.9. *Геометрия образец-источник в анализаторе водорода на основе источника ^{252}Cf (масштаб увеличен). Диаметр детекторов D составляет 25 мм, а камеры для образца S — 19 мм*

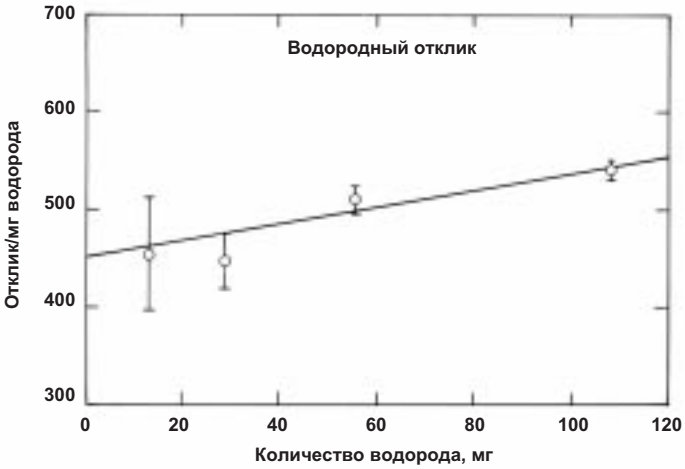

Рис. 15.10. *Зависимость отклика на миллиграмм водорода от содержания водорода*

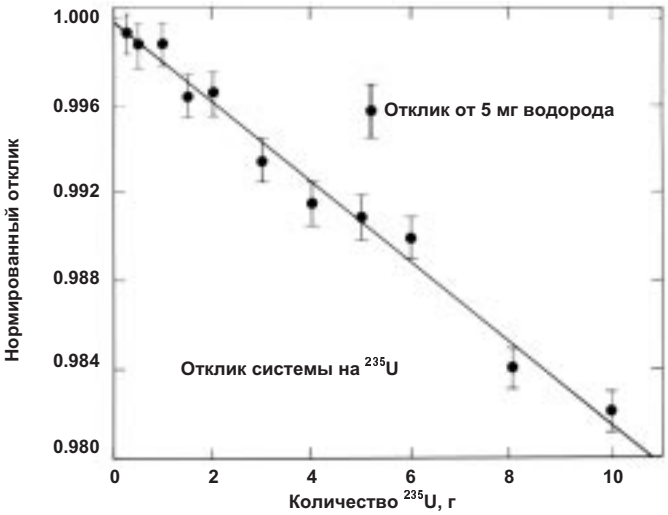

Рис. 15.11. *Влияние ^{235}U на анализатор водорода*

до ±2 мг. Окончательно в результаты измерений SSAS вводится поправка, с учетом которой содержание ^{235}U определяется с погрешностью не более 1 %.

15.6.2 Определение влажности с помощью кольцевого отношения детектора

Отношение полных чисел нейтронных отсчетов во внутреннем и внешнем кольцах детектора двухкольцевого счетчика с 4π-геометрией является мерой энергетического спектра нейтронов. Аналогично анализатору водорода на основе источника ^{252}Cf, отношение числа отсчетов в кольцах может давать информацию о содержании влаги в образце.

Эта методика контроля влажности была применена для анализа влажного оксалата плутония [22, 23]. В процессе конверсии нитрата плутония в оксид оксалат выпадает в осадок. Он является гетерогенным и обычно содержит от 30 до

65 вес. % воды. Анализ плутония осуществляется с помощью метода пассивной регистрации нейтронных совпадений, однако, введение поправки на содержание воды осуществляется с использованием отношения числа отсчетов в кольцах. Такая поправка необходима, поскольку водород является лучшим замедлителем, чем оксалат плутония, и образцы с более высоким содержанием воды в большей степени снижают среднюю энергию нейтронов. Нейтронный счетчик состоит из внутреннего кольца детекторов, отделенного от образца полиэтиленом толщиной 11 мм, и внешнего кольца, отделенного полиэтиленом толщиной 33 мм. Вследствие разной толщины слоя полиэтилена для счетчиков разных колец изменение энергетического спектра нейтронов влияет на отклик обоих колец по-разному.

Счетчик был отградуирован при анализе 19 образцов с известным содержанием плутония и воды. Масса плутония m была представлена в виде

$$m = aR_o^{(\alpha+\beta T_i/T_o)}, \qquad (15.9)$$

где R_o — скорость счета совпадений во внешнем кольце;
T_i — полная скорость счета во внутреннем кольце;
T_o — полная скорость счета во внешнем кольце;
a, α, β — параметры подгонки.

Дополнительно 22 образца были проанализированы неразрушающим методом со стандартным отклонением 2,2 % (1σ) [22] относительно результатов последующего разрушающего анализа. Без введения поправки на влажность с использованием отношения числа отсчетов в кольцах отклонение составляет от 50 до 100 %.

15.6.3 Энергетически независимый "длинный" счетчик

В области исследования быстрых нейтронов существует множество областей применения для счетчика, эффективность регистрации которого не зависит от энергии падающих нейтронов. Одним из таких счетчиков, используемых для градуировки и стандартизации приборов нейтронного анализа, является "длинный" (всеволновой) счетчик [10, 24]. Эффективность регистрации всеволнового счетчика в широком диапазоне энергий почти постоянна, однако не полностью энергетически независима, как иногда считается.

На рис. 15.12 показаны характеристики конструкции высокоэффективного всеволнового счетчика. Нейтронный источник располагается на оси ^{3}He-детектора на расстоянии не менее 1 м от торца. Для достижения постоянного энергетического отклика существенными являются минимальное расстояние между источником и детектором, количество и расположение отверстий в замедлителе и конструкция полиэтиленового кольца перед замедлителем. На рис. 15.13 [10] показан отклик счетчика от нейтронных источников в широком энергетическом диапазоне. Относительные мощности источников были известны с точностью 3 %. В пределах точности мощности источника, отклик счетчика постоянен в диапазоне от 0,024 МэВ до более, чем 4 МэВ. Последние данные (рис. 15.14) для этого счетчика были получены с использованием ускорителя Ван-де-Граафа, обеспечивающего относительно моноэнергетический поток нейтронов реакции ^{7}Li(p,n)^{7}Be [25]. При изменении энергии нейтронов от 100 до 1200 кэВ наблюдался неболь-

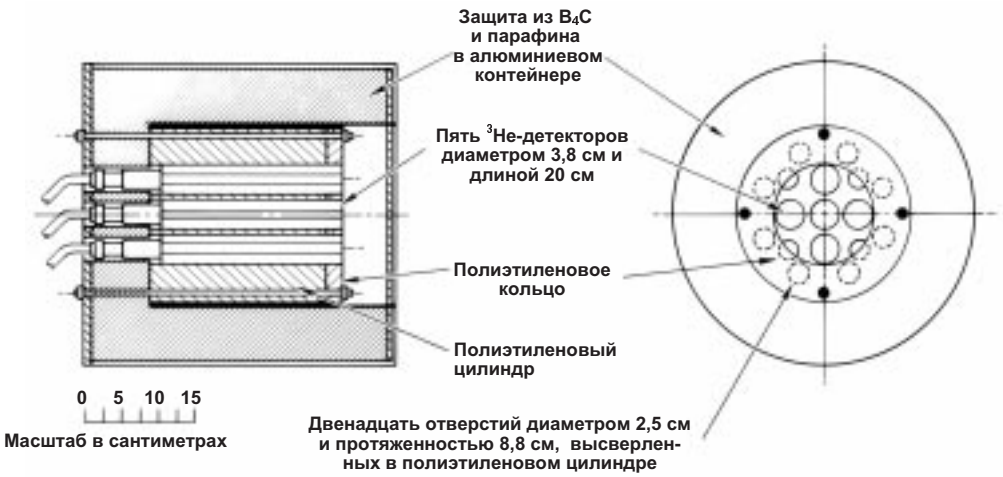

Рис. 15.12. *Высокоэффективный всеволновой счетчик на основе ^{3}He*

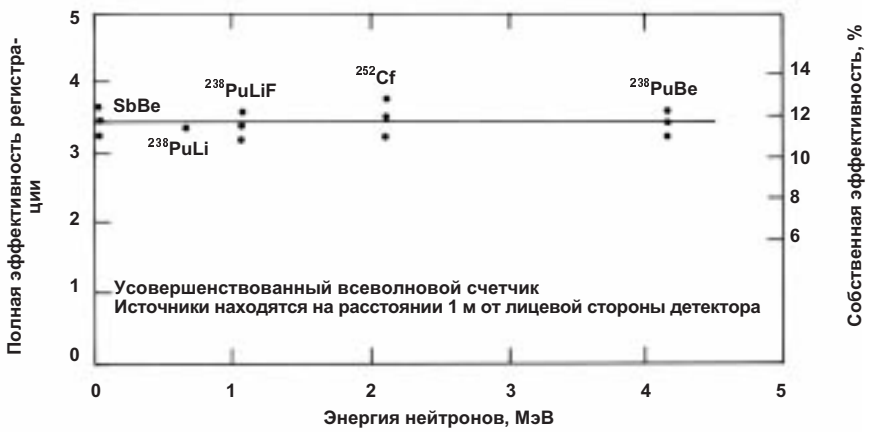

Рис. 15.13. *Зависимость эффективности ^{3}He всеволнового счетчика от энергии нейтронов, определенная с помощью радиоактивных источников*

шой резонанс при энергии 450 кэВ. Очевидно, отклик всеволнового счетчика не является полностью энергетически независимым, а только приблизительно такой.

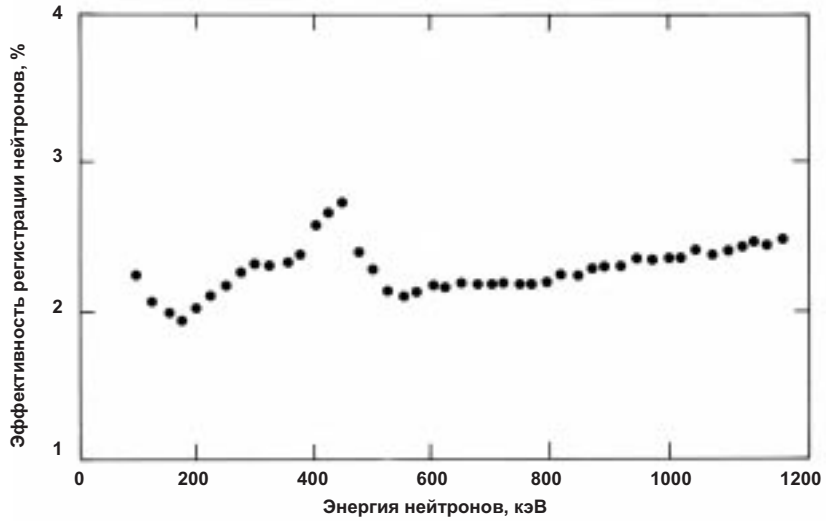

Рис. 15.14. *Зависимость эффективности ^{3}He всеволнового счетчика от энергии нейтронов, определенная с помощью моноэнергетических нейтронов*

ЛИТЕРАТУРА

1. H.O. Menlove, T.L. Atwell, and A. Ramalho, "Upgrading of SNAP Neutron Detector, SNAP-II", in "Nuclear Safeguards Research Program Status Report, September-December 1975", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6316-PR (April 1976), pp.5-6.
2. R.B. Walton and T.L. Atwell, "Portable Neutron Probe, "SNAP"", in "Nuclear Analysis Research and Development Program Status Report, January-April 1973", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5291-PR (May 1973), p.14.
3. T.L. Atwell, D.B. Smith, and A.C.Walker "Assay of Plutonium Metal Buttons with a Portable Neutron Counter" in "Nuclear Analysis Research and Development Program Status Report, May-August 1973", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5431-PR (November 1973), pp.20-23.
4. R.B. Walton, T.D. Reilly, J.L. Parker, J.H.Menzel, E.D. Marshall, L.W. Fields, "Measurement of UF_6 Cylinders with Portable Instruments", *Nuclear Technology* 21, 133 (1974).
5. NRC Guide 5.23, "In-Situ Assay of Plutonium Residual Holdup", Rev.1 (February 1984).
6. C. Kindle, "In-Situ Measurement of Residual Pu", *Nuclear Materials Management* V, 540 (1976).
7. R.B. Walton, "The Feasibility of Nondestructive Assay Measurements in Uranium Enrichment Plants", Loa Alamos Scientific Laboratory report LA-7212-MS (April 1978).

8. J.T. Caldwell, S.W. France, R.D. Hastings, J.C. Pratt, E.R. Shunk, T.H. Kuckertz, and R. Goin, "Neutron Monitoring of Plutonium Storage Vaults", in "Nuclear Safeguards and Development Program Status Report, October 1980-January 1981", C.N. Henry, Comp., Los Alamos National Laboratory report LA-8870-PR (November 1981), pp.21-28.
9. E.J. Dowdy, A.A. Robba, and R.D. Hastings, "Power Reactor Monitor", in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1978", S.D. Gardner, Ed., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7616-PR (April 1979), pp.58-60.
10. L.V. East and R.B. Walton, "Polyethylene Moderated ^{3}He Neutron Detectors", *Nuclear Instruments and Methods* 72, 161 (1969).
11. J.E. Stewart, S.C. Bourret, R.W. Slice, J.T. Markin, C.A. Coulter, and C.A. Spirio, "An Area Neutron-Monitoring Strategy for International Inspections at Centrifuge Enrichment Plants", in "Safeguards and Security Status Report, February-July 1982", Los Alamos National Laboratory report LA-9595-PR (February 1982), pp.53-56.
12. J.T. Markin, J.E. Stewart, and A.S. Goldman, "Data Analysis for Neutron Monitoring in an Enrichment Facility", European Safeguards Research and Development Assotiation Specialists' Meeting, Petten, The Netherlands, April 27-29, 1982, Los Alamos National Laboratory document LA-UR-81-2304.
13. J.W. Tape, D.A. Close, and R.B. Walton, "Total Room Holdup of Plutonium Measured with a Large-Area Neutron Detector", *Nuclear Materials Management* V (3), 533 (1976).
14. J.K. Sprinkle, Jr., and M.M. Stephens, "End-Crop Box Counter Manual", Los Alamos National Laboratory report LA-9781-M (June 1983).
15. C.O. Shonrock, L.G. Speir, P.R. Collinsworth, and N. Ensslin, "Neutron Counter for ^{238}Pu Heat Source Program", in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, April-June 1980", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8514-PR (February 1981), pp.5-6.
16. T. Crane, "Measurement of Uranium and Plutonium in Solid Waste by Passive Photon or Neutron Counting and Isotopic Neutron Source Interrogation", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8294-MS (March 1980).
17. T.D. Reilly and M.M. Thorpe, "Neutron Assay of 55-Gallon Barrels", in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1970", Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4523-MS (September 1970), pp.26-29.
18. L. Doher, "A Measurement Control Scheme for Plutonium Counting Systems", Proc. Institute of Nuclear Materials Management Annual Meeting, Gatlinburg, Tennessee (May 1970).
19. R. Harlan, "U and Pu Assay of Crated Waste by Gamma-ray, Singles Neutron, and Slow Neutron Coincidence Counting", *Measurement Technology for Safeguards and Materials Control,* T.R. Canada and B.S. Carpenter, Eds. (NBS Special Publication 582, 1980).
20. D.A. Close, R.C. Bearse, and H.O. Menlove, "^{252}Cf-based Hydrogen Analyzer", *Nuclear Instruments and methods* 136, 131 (1976).

21. A.E. Evans, Jr., *IEEE Transactions on Nuclear Science* 21 (1), 628 (1974).

22. T.W. Crane, "Calibration of a Neutron Coincidence Counter for Measurement of the Plutonium Content of Wet Oxalate Cakes", Los Alamos National Laboratory report LA-9744-MS (April 1983).

23. R.S. Marshall and T.R. Canada, "An NDA Technique for the Assay of Wet Plutonium Oxalate", *Nuclear Material Management* 107-113 (1980).

24. W.D. Allen, *Fast Neutron Physics*, J.B. Marson and J.L. Fowler, Eds. (Interscience Publications, 1960), Vol.I, p.361.

25. A.E. Evans, Jr., "Energy Dependance of the Response of a ^{3}He Long Counter", *Nuclear Instruments and Methods* 199, 643 (1982).

Глава 16

Принципы регистрации нейтронных совпадений

Н. Энсслин
(Переводчик В. В. Свиридова)

16.1 ВВЕДЕНИЕ

Определение содержания урана и плутония в объемных образцах металла, оксидов, смешанного уран-плутониевого оксидного топлива, ТВЭЛ, ТВС и т.д. часто может проводиться без разрушения образца с помощью регистрации нейтронных совпадений. Эта мощная методика основана на том, что нейтроны спонтанного или вынужденного деления испускаются практически одновременно. Во многих случаях можно получить почти уникальную характеристику для конкретного ядерного материала. Измерение может выполняться при наличии нейтронов фона в том помещении, где проводятся измерения, и нейтронов (α,n)-реакций, т.к. эти нейтроны являются некоррелированными или случайными во времени.

В табл. 11.1 главы 11 приведены значения выходов нейтронов спонтанного деления и значения множественности (среднего количества нейтронов на один акт деления) для многих изотопов, встречающихся в ядерном топливном цикле. Из таблицы видно, что изотопы ^{238}Pu, ^{240}Pu и ^{242}Pu имеют большие значения выхода нейтронов спонтанного деления. Для урана значения выхода нейтронов невелики, однако образцы, содержащие килограммовые количества ^{238}U, будут иметь измеримые значения выхода. При спонтанном делении ядер обычно одновременно испускается более одного нейтрона, поэтому прибор, который чувствителен только к нейтронным совпадениям, будет чувствителен только к таким изотопам. Содержание этих изотопов может быть определено даже тогда, когда химический состав материала таков, что возможно образование дополнительных одиночных нейтронов за счет (α,n)-реакций. Тогда, если изотопный состав материала известен, может быть рассчитано полное содержание урана и плутония.

Для плутониевого образца, содержащего ^{238}Pu, ^{240}Pu и ^{242}Pu, наблюдаемый отклик нейтронных совпадений будет обусловлен всеми тремя изотопами. Однако вклад ^{240}Pu обычно является доминирующим как в плутонии низкого выгорания (~6 % ^{240}Pu), так и в реакторном плутонии высокого выгорания (от~15 до ~25 % ^{240}Pu). В связи с этим при регистрации нейтронных совпадений удобно ввести понятие эффективной массы ^{240}Pu, как:

$$^{240}\mathrm{Pu}_{\text{эфф}} = 2{,}52\,^{238}\mathrm{Pu} + {}^{240}\mathrm{Pu} + 1{,}68\,^{242}\mathrm{Pu}\,. \qquad (16.1)$$

^{240}Pu$_{\text{эфф}}$ — это такое значение массы ^{240}Pu, которое вызвало бы точно такой же отклик нейтронных совпадений, который был бы получен от всех четных изотопов в реальном образце. Обычно содержание ^{240}Pu$_{\text{эфф}}$ превышает действительное содержание ^{240}Pu на величину от 2 до 20 %. Коэффициенты 2,52 и 1,68 в уравне-

нии (16.1) определяются следующими факторами: а) соотношениями периодов полураспада спонтанного деления каждого изотопа (табл. 11.1); б) соотношениями распределений множественности нейтронов спонтанного деления каждого изотопа (табл. 11.2); а также в) способом получения этих значений множественности с помощью схем анализа совпадений (см., например, [1]). Значения относительных выходов нейтронов спонтанного деления играют определяющую роль. Коэффициенты, приведенные выше, справедливы для схемы анализа совпадений типа сдвигового регистра, который будет описан ниже в этой главе, и их значения для других схем изменяются совсем незначительно.

Наиболее распространенным методом регистрации нейтронных совпадений является пассивный метод регистрации нейтронов спонтанного деления. Однако, поскольку деления могут быть вынужденными, в частности, для таких изотопов как ^{239}Pu и ^{235}U, образцы, содержащие большие количества делящихся изотопов, можно анализировать с помощью регистрации совпадений нейтронов вынужденного деления. Отклик совпадений от вынужденного деления будет являться количественной оценкой содержания этих изотопов в образце. Если вынужденные деления вызваны источником (α,n)-нейтронов, схема анализа совпадений может выделить коррелированные нейтроны деления на фоне некоррелированных нейтронов источника.

Пассивные и активные счетчики нейтронных совпадений широко применяются в американской и международной системах гарантий (см. главу 17). Счетчики нейтронных совпадений обычно дают более точные результаты, чем радиометры нейтронов (приборы регистрации полного потока нейтронов), поскольку они нечувствительны к одиночным нейтронам (α,n)-реакций или нейтронам внешнего фона. Однако измерение полной скорости счета нейтронов может давать информацию, которая дополняет информацию совпадений. Для многих типов ядерного материала в общем случае полезно измерять как скорость счета совпадений, так и полную скорость счета нейтронов.

16.2 ХАРАКТЕРИСТИКИ ПОСЛЕДОВАТЕЛЬНОСТИ НЕЙТРОННЫХ ИМПУЛЬСОВ

Для понимания механизма регистрации совпадений полезно рассмотреть последовательность электрических импульсов, произведенных детектором нейтронов. Эти электрические импульсы, каждый из которых образовался при регистрации одного нейтрона, поступают на вход схемы анализа совпадений. Эти входные импульсы можно рассматривать либо как распределение событий во времени, либо как распределение временных интервалов между событиями в зависимости от того, что более удобно. В любом случае наблюдаемое распределение является результатом некоторой комбинации событий, вызванных спонтанными делениями, вынужденными делениями, (α,n)-реакциями, и внешним фоном. Как упоминалось в разделе 16.1, при делении обычно образуется несколько нейтронов, которые коррелированны или совпадают во времени, в то время как нейтроны (α,n)-реакции и внешнего фона случайно распределены во времени или не коррелированы.

16.2.1 Идеальные и действительные последовательности импульсов

Пример идеальной последовательности импульсов, содержащей коррелированные и некоррелированные события, показан на рис. 16.1 (а). Действительная последовательность импульсов, регистрируемая с помощью обычного счетчика совпадений, будет более сложной, как показано на рис. 16.1 (б). Это происходит потому, что конструкция счетчика нейтронных совпадений оказывает влияние на последовательность импульсов.

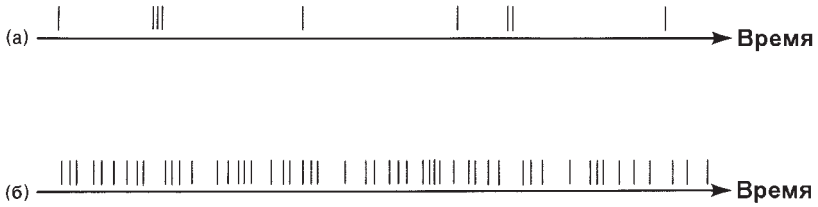

Рис. 16.1. *Последовательность нейтронных импульсов на временной оси. (а) Идеализированная последовательность импульсов, содержащая коррелированные и некоррелированные события. (б) Действительная последовательность импульсов, наблюдаемая при высоких скоростях счета с использованием детектора с типичными значениями эффективности и времени жизни нейтронов*

Во-первых, в измерительный колодец счетчика нейтронных совпадений могут помещаться большие образцы. Так, один килограмм плутония, содержащий 20 % ^{240}Pu, испускает около 200000 нейтрон/с. При эффективности счетчика нейтронных совпадений, составляющей 20 %, полная скорость счета нейтронов будет равна 40000 нейтрон/с, а средний интервал времени между зарегистрированными событиями составит 25 мкс. Во-вторых, обычное для счетчика совпадений нейтронов значение эффективности регистрации ε = 20 % существенно меньше, чем 100 %, поэтому большая часть испущенных нейтронов не будет зарегистрирована. Большая часть событий спонтанного деления также не будет зарегистрирована. Если число испущенных нейтронов при одном делении равно n, то вероятность регистрации k нейтронов определяется следующим уравнением:

$$P(n,k) = \frac{n!}{(n-k)!\,k!}\,\varepsilon^{k}(1-\varepsilon)^{n-k}. \qquad (16.2)$$

Если, например, испущено два нейтрона (близко к среднему значению множественности нейтронов спонтанного деления, которое для ^{240}Pu равно 2,16), тогда вероятность P(2,0) не зарегистрировать ни одного нейтрона равна 0,64. Вероятность P(2,1) зарегистрировать один нейтрон равна 0,32, и вероятность P(2,2) зарегистрировать два нейтрона равна 0,04. Таким образом, более чем половина всех событий деления никогда не будет зарегистрирована, а большинство из них вызовет регистрацию только одного нейтрона. Вероятность регистрации действительного совпадения двух или более нейтронов одного события деления относительно мала и составляет в рассмотренном примере около 4 % от общего числа случаев. В-третьих, многие совпадения, наблюдаемые в последовательности им-

пульсов, будут обусловлены случайным перекрытием фоновых событий, событий фона и деления, или разных событий деления.

Четвертым важным фактором является конечное время термализации и затухания нейтронов в полиэтилене колодезного счетчика нейтронов. Процесс замедления и рассеяния нейтронов внутри счетчика может длиться несколько микросекунд. В любой момент этот процесс может быть остановлен поглощением нейтрона полиэтиленом, счетчиком излучения или другими материалами, а также утечкой нейтрона из детектора. Процесс может быть также продолжен за счет нейтронов вынужденного деления, что приводит к дополнительному образованию быстрых нейтронов, которые также претерпевают замедление или рассеяние перед тем, как поглотиться или покинуть детектор. Как следствие всех процессов, число нейтронов в счетчике после события спонтанного деления затухает во времени достаточно сложным образом. С хорошей точностью этот процесс может быть описан одной экспоненциальной функцией

$$N(t) = N(0)\, e^{-t/\tau}\,, \tag{16.3}$$

где $N(t)$ — число нейтронов к моменту времени t;

τ — время затухания (среднее время жизни нейтрона в блоке детектирования).

Значения времени затухания определяются, прежде всего, размерами, формой, химическим составом и эффективностью счетчика нейтронных совпадений, а также, в незначительной степени, рассеиванием, замедлением или вынужденным делением в анализируемом образце. Для большинства конструкций счетчиков это время обычно изменяется в диапазоне от 30 до 100 мкс. Таким образом, ограниченное время затухания счетчика нейтронных совпадений приводит к тому, что регистрация мгновенных нейтронов деления растягивается до многих микросекунд. Для больших образцов и обычных счетчиков время затухания может быть сравнимым или превышать средний интервал времени между регистрируемыми событиями.

Результатом действия описанных выше четырех эффектов является то, что действительная последовательность наблюдаемых импульсов может содержать относительно малое число "действительных" совпадающих событий на фоне значительного числа "случайных" событий. Кроме того, действительные события в последовательности импульсов не будут явно отличаться от фона случайных событий, как это показано на рис. 16.1 (б). Для того чтобы визуально выделить и количественно определить числа действительных и случайных событий, полезно использовать либо распределение интервалов, либо распределение Росси-альфа.

16.2.2 Распределение интервалов

Распределение интервалов является распределением интервалов времени между зарегистрированными событиями. Формула для него была предложена в работе [2] и имеет следующий вид:

$$I(t) = \exp\left[-\int_0^t Q(t)\, dt\right]\,, \tag{16.4}$$

где I(t) — вероятность регистрации интервала времени длительностью t;

Q(t) — вероятность регистрации второго события как функция времени, следующего после первого события, зарегистрированного в момент времени t=0.

При регистрации случайных нейтронов вероятность возникновения второго события является постоянной во времени. Если полная скорость счета нейтронов равна T, то нормализованное распределение интервалов имеет следующий вид: $I(t) = T \times e^{-Tt}$. В этом случае распределение интервалов представляет собой экспоненциальную функцию, и наиболее вероятно время регистрации следующего события сразу после первого события. В полулогарифмическом масштабе такое распределение будет иметь вид прямой линии. Если к случайным событиям добавляются действительные события совпадений, то распределение интервалов имеет более сложный вид [3]. На рис. 16.2 показано распределение интервалов, которое содержит как действительные, так и случайные события.

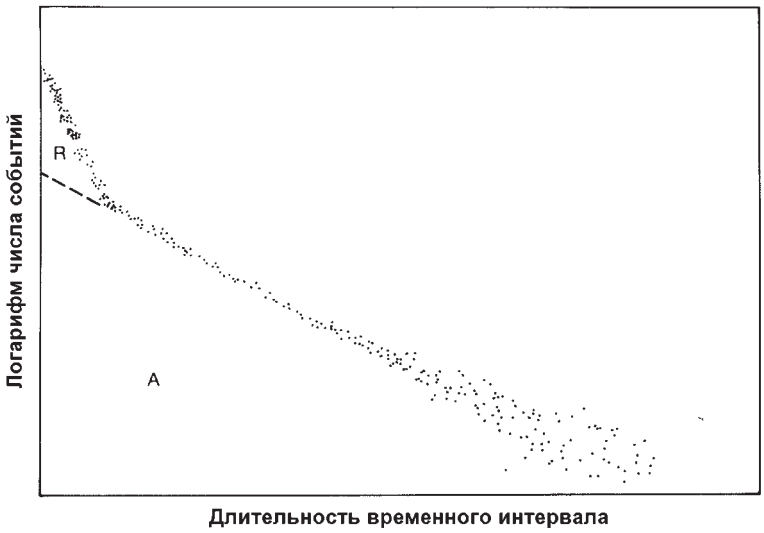

Рис. 16.2. *Распределение интервалов, образованное событиями действительных совпадений R и случайных совпадений A. Наклон распределения интервалов случайных совпадений в полулогарифмическом масштабе равен полной скорости счета T*

16.2.3 Распределение Росси-альфа

Другим полезным распределением, которое было разработано для анализа реакторных шумов, является распределение Росси-альфа [4]. Оно получается при запуске часов в момент времени t=0, когда приходит какой-либо импульс. Часы продолжают отсчитывать время, и каждый последующий импульс запоминается с помощью специальной электронной схемы в ячейке, которая соответствует времени поступления этого импульса. Типичной шириной ячейки может быть 1 мкс, а полное число ячеек времени может изменяться от 1024 до 4096. Когда достигается граница интервала полного времени, часы останавливаются и цепь не действует до тех пор, пока другое событие опять не запустит процесс в момент времени t=0. Таким образом, распределение Росси-альфа — это распределение во

времени событий, которые следуют после произвольного стартового импульса. Если регистрируются только случайные события, это распределение постоянно во времени. Если появляются действительные совпадающие события, распределение Росси-альфа имеет следующий вид:

$$S(t) = A + R\,e^{-t/\tau}, \tag{16.5}$$

где $S(t)$ — высота распределения в момент времени t;
A — скорость счета случайных совпадений;
R — скорость счета действительных совпадений;
τ — время затухания в детекторе.

На рис. 16.3 представлено распределение Росси-альфа. На рисунке показаны R, A и другие переменные, которые будут определены ниже. Здесь ясно виден экспоненциальный характер затухания событий деления.

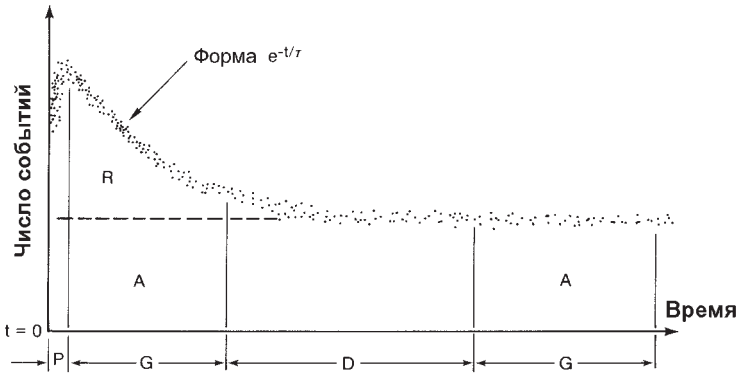

Рис. 16.3. *Распределение Росси-альфа как функция времени после опорного стартового импульса. R — действительные события совпадений; A — случайные события совпадений; P — предварительная задержка; G — длительность мгновенных ворот и ворот с задержкой; D — длинная задержка; τ — время затухания*

16.3 ОСНОВНЫЕ ОСОБЕННОСТИ СХЕМ СОВПАДЕНИЙ

16.3.1 Электронные ворота

Схемы совпадений часто содержат электронные составляющие, которые называются одновибраторами или "генераторами ворот". Всякий раз, когда на вход таких схем поступает импульс, они производят выходной импульс фиксированной длительности. Генераторы ворот, используемые для преобразования входных импульсов от детектора нейтронов в очень короткие выходные импульсы, называются триггерами. Генераторы ворот, которые применяются для преобразования входных импульсов в длительные выходные импульсы, называются "воротами". Такие генераторы ворот, а также усилители, детекторы и другие схемы определяют мертвое время электроники, перед тем как они могут опять работать. Это мертвое время имеет длительность не менее, по крайней мере, ширины ворот G. В

зависимости от схемотехнического решения это мертвое время может быть продлеваемым и непродлеваемым.

16.3.2 Продлеваемое и непродлеваемое мертвое время

На рис. 16.4 (а) представлена иллюстрация непродлеваемого (или непарализуемого, см. главу 4) мертвого времени в виде последовательности импульсов. Из четырех событий этой последовательности события 1, 2 и 4 приводят к образованию ворот, а событие 3 не приводит к образованию ворот и теряется. Используя уравнение (16.4), можно показать, что для чисто случайной входной скорости счета T выходная скорость счета T_m будет определяться следующей формулой:

$$T_m = \frac{T}{1+GT}. \qquad (16.6)$$

Когда скорость импульсов на входе становиться очень большой, скорость импульсов на выходе будет стремиться к предельному значению 1/G, где G — ширина ворот.

Продлеваемое (или парализуемое) мертвое время проиллюстрировано на рис. 16.4 (б). Появление события 3 приводит к тому, что ворота, образованные событием 2, расширяются или продлеваются. Поэтому событие 4 не образует новых ворот. Только события 1 и 2 образуют ворота, а события 3 и 4 будут потеряны. Используя уравнение (16.4), можно показать, что для случайных событий справедливо следующее уравнение:

$$T_m = T\,e^{-GT}. \qquad (16.7)$$

При возрастании скорости счета импульсов на входе, измеренная скорость счета увеличивается до максимального значения, которое достигается при скорости импульсов на входе равной 1/G, и затем при дальнейшем увеличении входной скорости импульсов падает до нуля. Для небольших скоростей счета уравнения (16.6) и (16.7) дают идентичные поправки на мертвое время.

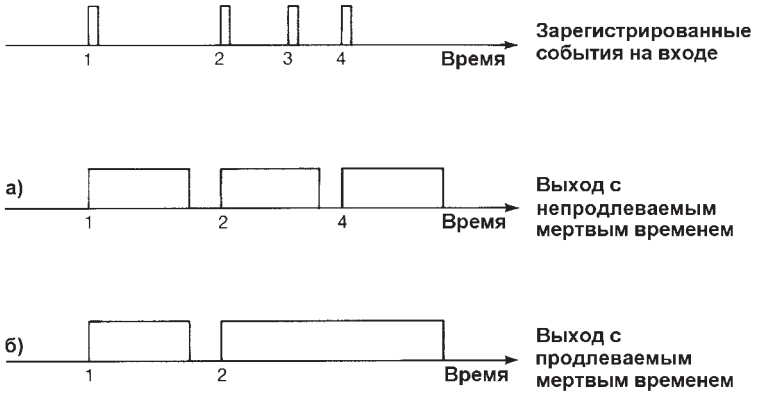

Рис. 16.4. *Два генератора ворот с различным типом мертвого времени электроники: а) непродлеваемое мертвое время, б) продлеваемое мертвое время*

16.3.3 Взаимокорреляционные и автокорреляционные схемы

Схемы совпадений могут быть реализованы большим числом различных способов комбинации одновибраторов или генераторов ворот с пересчетными устройствами. Каждая комбинация обладает различным мертвым временем электроники и описывается своим математическим аппаратом. Для регистрации нейтронов наиболее широко используются взаимокорреляционные и автокорреляционные схемы [5]. Схема простого взаимокорреляционного способа измерения показана на рис. 16.5 (а). Импульсы триггера от детектора 1 сравниваются с воротами, образованными импульсами от детектора 2. Этот тип схемы совпадения лучше всего подходит для очень быстрых импульсов детектора и коротких ворот, т.к. дает хорошую дискриминацию шумов детектора и образует очень мало случайных совпадений.

На рис. 16.5 (б) показана схема реализации идеального способа автокорреляционного измерения. Выходы обоих детекторов соединены вместе, образуя единую последовательность импульсов. Каждый импульс из этой последовательности образует короткий импульс триггера, а также длинный импульс ворот, что дает возможность сравнивать каждый импульс с последующим импульсом. Автокорреляционные схемы наиболее удобны для счетчиков тепловых нейтронов, поскольку можно объединить много отдельных счетчиков для получения высокой эффективности, а значительное временя затухания в блоке детектирования вызывает много перекрытий импульсов от различных детекторов. Ширина ворот выбирается сравнимой со временем затухания, а для выделения случайных совпадений обычно используется отдельная параллельная цепь с триггером или воротами задержки (см. разделы 16.4 и 16.5).

Автокорреляционные схемы, описанные в разделах 16.4 и 16.5, являются наиболее важными схемами для регистрации нейтронных совпадений.

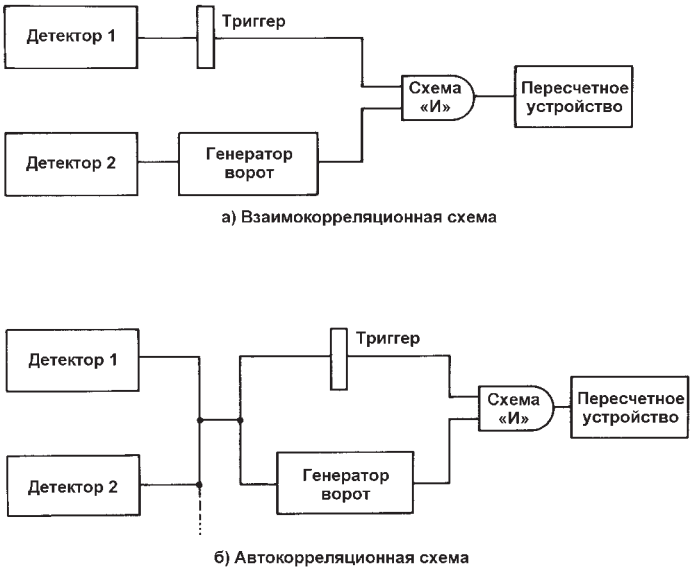

Рис. 16.5. *Два типа схем совпадений: а) взаимокорреляционная схема; б) автокорреляционная схема*

16.4 ТРИ ОСНОВНЫЕ СХЕМЫ РЕГИСТРАЦИИ СОВПАДЕНИЙ

16.4.1 Схема с переменным мертвым временем

Схема с переменным мертвым временем или VDC была разработана в Европе для анализа плутониевых отходов [6-8]. Эта схема является простой (рис. 16.6), но требует сложной процедуры анализа. Схема с переменным мертвым временем содержит короткие ворота, а также длинные ворота. Обычно ширина коротких ворот составляет 4 мкс и они служат для регистрации большинства событий деления и случайных событий. Длинные ворота обычно имеют ширину от 32 до 128 мкс и они не регистрируют большинство событий деления, но регистрируют большинство случайных событий. И те, и другие ворота являются воротами, которые не продлевают мертвое время, поэтому, используя уравнение (16.6), для приблизительного расчета чистой скорости совпадений R можно получить следующее выражение пропорциональности:

$$R \propto \frac{S_1}{1-S_1G_1} - \frac{S_2}{1-S_2G_2}, \qquad (16.8)$$

где S_1 — скорость счета в пересчетном устройстве, соединенном с короткими воротами, ширина которых равна G_1;
S_2 — скорость счета в пересчетном устройстве, соединенном с длинными воротами, ширина которых равна G_2.

Выражение (16.8) можно использовать только до скоростей счета порядка нескольких килогерц или менее, поскольку это выражение не разрешает интерференции между событиями деления и случайными событиями, более сложные выражения приведены в работах [9] и [10]. Когда вынужденные деления в образце приводят к образованию более длинных цепочек деления, возникают дополнительные трудности [11, 12]. По этой причине схема с переменным мертвым временем не может использоваться для анализа больших образцов со значимым эффектом умножения.

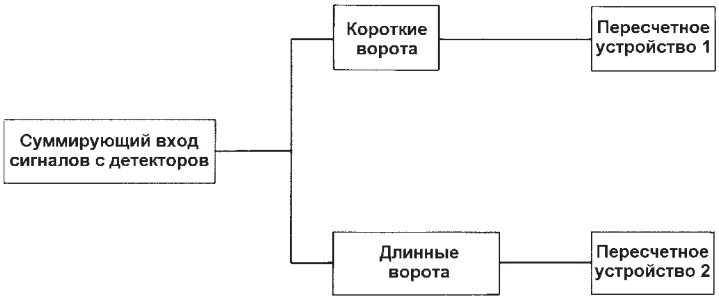

Рис. 16.6. *Схема с переменным мертвым временем*

16.4.2 Схема одновибратора с продлеваемым мертвым временем

Схема одновибратора с продлеваемым мертвым временем [10] показана на рис. 16.7. Первая половина этой схемы генерирует сигнал мгновенных совпаде-

ний между воротами шириной G и коротким триггером. Эти совпадения состоят из действительных R и случайных A совпадений. Для того, чтобы произвести поправку на случайные совпадения, необходимо добавить длительную задержку, а затем измерить совпадения между вторыми задержанными воротами ширины G и коротким исходным запускающим импульсом. Если значение длительной задержки намного превышает время затухания τ в детекторе, то вторая цепь совпадения будет измерять только случайные события A. Тогда отклик чистых совпадений R определяется как разность между показаниями двух пересчетных устройств. Рис. 16.3 поясняет этот процесс.

Рис. 16.7. *Схема совпадений с продлеваемым мертвым временем на двух одновибраторах равной длительности*

На рис. 16.3 также показано, что на действительные результаты измерений, которые подчиняются распределению Росси-альфа, накладывается несколько ограничений: а) наложение импульсов и мертвое время электроники будут искажать распределение вблизи t = 0, поэтому следует начинать анализ после некоторого времени P, называемого предварительной задержкой; б) из-за того, что распределение действительных событий распространяется за пределы временного интервала ворот G, некоторые действительные совпадения будут потеряны воротами без задержки; в) в принципе, некоторые действительные совпадения могут появиться и в воротах с задержкой, если величина задержки D недостаточна. Принимая во внимание эти ограничения, отклик действительных совпадений цепи одновибратора с продлеваемым мертвым временем рассчитывается с помощью следующей формулы:

$$R = \frac{(R-A)_{\text{пересч. устр.}} - (A)_{\text{пересч. устр.}}}{e^{-P/\tau}(1-e^{-G/\tau})[1-e^{-(D+G)/\tau}]} e^{GT}. \qquad (16.9)$$

Экспонента в числителе определяется выражением (16.7) и является поправкой на потерю счетных импульсов в течение ворот G с продлеваемой шириной. Такая большая поправка ограничивает полезность этой схемы для скоростей счета 20-30 кГц и ниже. Были также построены схемы одновибратора с непродлеваемым мертвым временем [13, 14], но их применение также ограничивалось низкими скоростями счета.

16.4.3 Логика уменьшенной дисперсии

Одна интересная схема анализа нейтронных совпадений берет свое начало из области анализа шумов реактора, который проводится с целью изучения флуктуации скорости счета систем, регистрирующих нейтроны. Используя эти флуктуации, можно вычислить моменты распределения скоростей счета нейтронов (дисперсионный метод Фейнмана [14]). Схема логики уменьшенной дисперсии RVL использует этот метод для анализа ядерных материалов [15 и 16].

Схема RVL накапливает полное число нейтронов C за короткий временной интервал, изменяющийся от 100 до 2000 мкс в зависимости от задачи. Это измерение повторяется в течение большого числа временных интервалов, пока не будет достигнуто приемлемое время анализа, которое может составлять от 100 до 1000 с. По результатам этих измерений схема вычисляет первый — $\overline{C}$ и второй — $\overline{C^2}$ моменты распределения импульсов. Отношение дисперсии к среднему значению дается выражением $(\overline{C^2}-\overline{C}^2)/\overline{C}$. Для случайных отсчетов, для которых справедливо распределение Пуассона, это отношение равно единице.

Если имеются коррелированные во времени события, то значение параметра Y, которое определяется с помощью следующего уравнения:

$$Y=\frac{\overline{C^2}-\overline{C}^2}{\overline{C}}-1, \qquad (16.10)$$

будет отлично от нуля. Этот параметр зависит от эффекта размножения в образце и не зависит от скорости спонтанного деления в нем. Другая комбинация моментов пропорциональна массе образца:

$$Q=\overline{C^2}-\overline{C}^2-\overline{C}. \qquad (16.11)$$

Величина Q не зависит от случайного некоррелированного фона и пропорциональна только скорости счета действительных совпадений R.

Схема RVL генерирует параметры Q и Y для каждого анализируемого образца. Для небольшого образца без размножения массу $^{240}Pu_{эфф}$ можно найти непосредственно из Q. Для образцов со значимым эффектом саморазмножения значение массы $^{240}Pu_{эфф}$ получается с помощью графика нелинейной зависимости величины Y от $Q/^{240}Pu_{эфф}$. График получают с помощью стандартного образца известной массы. Поправка к уравнению (16.11) на мертвое время электроники для высоких скоростей счета дана в [17].

В обычной практике схема RVL использовалась для анализа образцов с высоким размножением [18]. Для фиксированных заводских задач может быть добавлена система компьютерного анализа для получения высших моментов C и определения распределения временных интервалов между отдельными импульсами. В принципе, схема RVL использует то же самое распределение импульсов и обеспечивает ту же самую аналитическую информацию, что и схема сдвигового регистра, которая будет описана в следующем разделе. На практике схема RVL на данном уровне развития требует более сложных алгоритмов интерпретации данных и имеет ограничения по скорости счета.

16.5 СХЕМА АНАЛИЗА СОВПАДЕНИЙ НА ОСНОВЕ СДВИГОВОГО РЕГИСТРА

16.5.1 Принцип работы сдвигового регистра

В предыдущем разделе упоминалось, что некоторые общепринятые схемы совпадений требуют значительных поправок на мертвое время электроники. Такая поправка требуется из-за того, что анализ совпадений начинается с приходом одного импульса в момент времени t=0 и продолжается до момента времени t = G, где G — ширина временных ворот. Если за время G произойдет n событий, первое из них запустит ворота, а остальные n-1 событий будут зарегистрированы. Вторые ворота не могут открыться, пока длится временной интервал G, что эквивалентно появлению мертвого времени такой же величины.

Альтернативный подход состоит в запоминании последовательности импульсов, приходящих за время G. В действительности, каждый импульс генерирует свои собственные ворота; нет необходимости ждать, пока закончатся одни ворота, перед тем как начнутся другие. Такое запоминание событий исключает эффект мертвого времени, описанный выше, и позволяет работать при скоростях счета в несколько сотен килогерц и выше.

Возможность запоминать импульсы, поступающие за время G, обеспечивается интегрированной схемой, которая называется сдвиговым регистром. Он состоит из набора управляемых таймером триггеров, объединенных в разряды. Например, 64-разрядный сдвиговый регистр, управляемый генератором импульсов с частотой 2 МГц (0,5 мкс на разряд) образует ворота G шириной 32 мкс. Входные импульсы сдвигаются в этом регистре каждым тактовым импульсом генератора на один разряд, весь процесс занимает 32 мкс.

Эта концепция сдвигового регистра, свободного от мертвого времени, была предложена Бенелем [5]. Различные варианты схемы были разработаны Стефенсом, Свэнсеном и Истом [19], улучшены Свэнсеном [20,21] и совсем недавно Ламбертом [22]. К настоящему времени схема сдвигового регистра является наиболее широко применимой в американской и международной практике для задач регистрации совпадений. Примеры приведены в главе 17.

16.5.2 Ворота R+A

Работа схемы совпадений на основе сдвигового регистра лучше всего иллюстрируется с помощью распределения Росси-альфа (см. рис. 16.3), на котором показаны ворота G, открывающиеся без задержки, в границах которых собираются действительные и случайные совпадения R+A, а также задержанные ворота G, в границах которых собираются только случайные совпадения A. Между этими воротами существует длительная задержка D. Следует заметить, что регистрация совпадений не начинается, пока не пройдет короткий интервал времени P (предварительная задержка). В течение этого времени, обычно изменяющегося от 3 до 6 мкс, распределение Росси-альфа искажается за счет наложений импульсов и мертвого времени электроники, и поэтому скорость счета действительных совпадений не может быть измерена. После такой предварительной задержки сдвиговый регистр формирует R+A ворота без задержки, обычная длина которых составляет от 32 до 64 мкс.

Упрощенная блок-схема сдвигового регистра для измерения R+A событий приведена на рис. 16.8. Вход устройства (не показан) является схемой логического "ИЛИ", которая суммирует сигналы со всех выходов усилителей-дискриминаторов, образуя автокорреляционную схему. Каждый входной импульс после предварительной задержки P проходит через сдвиговый регистр. Каждый импульс, входящий в сдвиговый регистр, поступает на прямой вход реверсивного счетчика, увеличивая его содержимое на единицу, в то время как каждый импульс, выходящий из сдвигового регистра, уменьшает его содержимое на единицу. Таким образом, в любой момент времени в памяти реверсивного счетчика содержится количество импульсов, находящихся внутри сдвигового регистра. Каждый входной импульс, перед тем как поступить на вход предварительной задержки и сдвигового регистра, заставляет реверсивный счетчик сбрасывать содержащуюся к этому моменту в нем информацию в пересчетное устройство R+A, добавляя ее к его предыдущему содержимому (стробирующее действие).

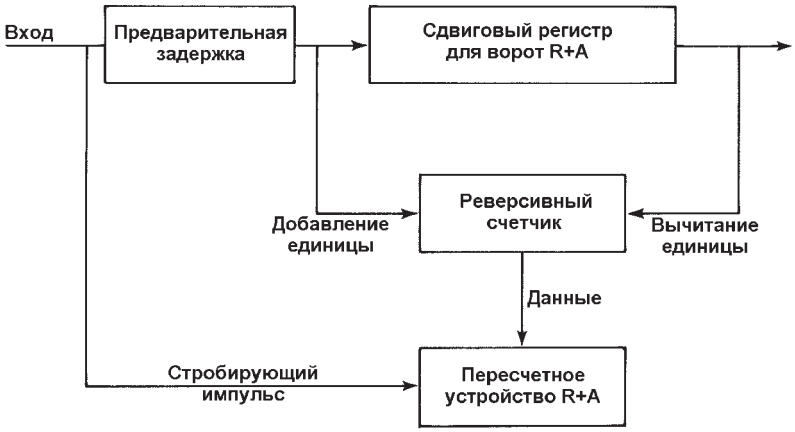

Рис. 16.8. *Упрощенный вид схемы совпадений со сдвиговым регистром, которая регистрирует (действительные + случайные) события совпадений (R+A)*

Приведенная выше последовательность действий гарантирует, что события, достаточно далеко разнесенные по времени, никогда не зарегистрируются в пересчетном устройстве R+A. Однако если два импульса приходят с разделением по времени более чем P, но менее чем P+G, тогда один из них будет находиться в сдвиговом регистре (содержимое реверсивного счетчика будет равно единице). Другой импульс в это время будет являться стробирующим сигналом, по которому содержимое реверсивного счетчика переносится в пересчетное устройство R+A. Таким образом, будет зарегистрировано совпадение, как и требуется, в соответствии с рис. 16.3. Следует отметить, что если три и более импульсов присутствуют в соответствующем временном интервале, то алгоритм регистрации будет записывать все возможные пары совпадений между событиями.

Например:

Для следующего числа импульсов, расположенных близко друг к другу ...	... число совпадений, которое будет зарегистрировано, равно	
0	0	
1	0	
2	1	(16.12)
3	3	
4	6	
n	n(n – 1)/2	

Число возможных перестановок двойных совпадений может превышать число импульсов. На практике этот алгоритм регистрации не приносит ни вреда, ни пользы, просто является следствием одинаковой обработки всех входных импульсов.

Рассмотренные выше события совпадений могут быть результатом двух или более нейтронов от одного спонтанного деления (действительные события деления) или результатом случайного совпадения во времени фоновых нейтронов или нейтронов от разных событий деления (случайные события). Поэтому число отсчетов, накапливаемых устройством, описанным выше, называется числом отсчетов R+A.

16.5.3 Ворота A

Действительные события деления R можно определять косвенным образом, добавляя вторую законченную схему сдвигового регистра для измерения случайных событий A. Эта схема идентична схеме R+A, за исключением того, что вводится продолжительная задержка D между сдвиговым регистром, определяющим ворота A, и входным импульсом, который стробирует передачу содержимого реверсивного счетчика в пересчетное устройство A. Задержка D гораздо длиннее времени затухания в детекторе, поэтому в момент времени t=0 еще нет нейтронов от событий деления, как это показано на рис. 16.3. Обычно величина D выбирается равной 1000 мкс, что значительно больше типичных значений времени затухания (30-100 мкс). При такой длительной величине задержки, равной D, пересчетное устройство A будет записывать только случайные совпадения, которые будут включать фоновые события, некоррелированные наложения событий деления и фона, а также некоррелированные наложения различных событий деления. Число случайных совпадений, зарегистрированных в пересчетном устройстве A, будет с точностью до случайных флуктуаций регистрации равно числу случайных совпадений, зарегистрированных в пересчетном устройстве R+A, если длина обоих временных ворот сдвиговых регистров A и A+R строго одинакова. Тогда разность чисел отсчетов, полученных в двух пересчетных устройствах, равна чистому числу отсчетов действительных совпадений R, которое пропорционально скорости деления в образце.

На практике, схема, которая измеряет случайные события, может быть сформирована посредством введения второй задержанной схемы сдвигового регистра или посредством введения второго задержанного строба. Последний подход используется в последних разработках схемы [20-22] ввиду простоты и легкости генерации ворот A и R+A одной и той же ширины. На рис. 16.9 показана блок-схе-

ма этой последней версии схемы совпадения на основе сдвигового регистра, которая включает пересчетное устройство полной скорости счета T, а также пересчетные устройства A и R+A.

Пересчетное устройство A регистрирует случайные совпадения между зарегистрированными событиями полного счета нейтронов; с точностью до случайных флуктуаций справедливо следующее соотношение:

$$A = GT^2, \tag{16.13}$$

где A и T — скорости счета;

G — ширина ворот совпадений [24].

Эта нелинейная зависимость показывает, что A будет превышать T, когда полная скорость счета будет больше чем 1/G. С помощью уравнения (16.13) можно вычислить A, не проводя измерений. Однако лучше измерять A с помощью схемы, описанной выше, т.к. при этом происходит ее непрерывная и автоматическая коррекция при любых изменениях полной скорости счета в течение анализа. Уравнение (16.13) может быть в таком случае использовано позднее для диагностической проверки отклонений скорости счета или характеристик прибора.

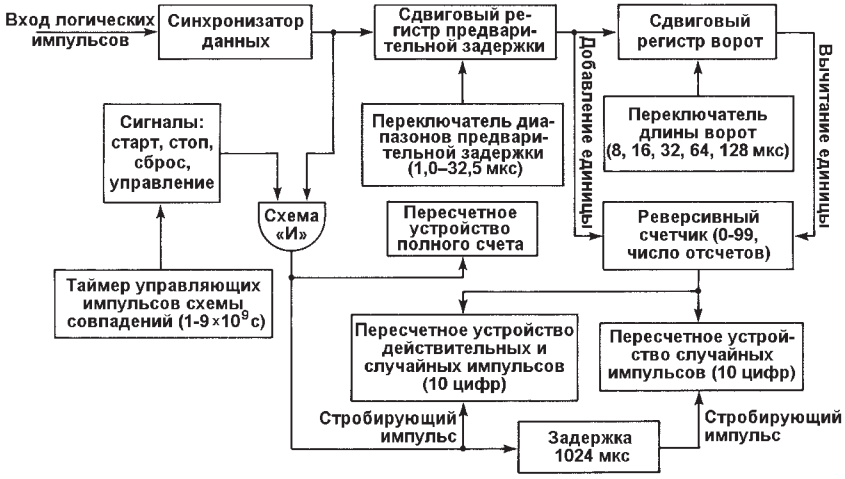

Рис. 16.9. *Блок-схема полной схемы совпадений со сдвиговым регистром, включающая: пересчетное устройство полного счета, а также пересчетное устройство R+A и пересчетное устройство A [23]*

16.5.4 Чистый отклик совпадений R

Из рис. 16.3 и приведенных выше рассуждений вытекает, что отклик действительных совпадений сдвигового регистра связан с измеренными значениями на выходе пересчетных устройств следующим уравнением:

$$R = \frac{(R+A)_{\text{пересч. устр.}} - (A)_{\text{пересч. устр.}}}{e^{-P/\tau}(1-e^{-G/\tau})[1-e^{-(D+G)/\tau}]}. \tag{16.14}$$

Уравнение (16.14) идентично уравнению (16.9) за исключением того, что для сдвигового регистра не требуется большая экспоненциальная поправка на мертвое время. Меньшие поправки на мертвое время усилителя приведены ниже в разделе 16.6. Составляющая $[1 - e^{-(D+G)/\tau}]$ должна быть близка к единице, если задержка D много больше, чем время затухания τ в детекторе. Следовательно, этот множитель можно не учитывать при дальнейшем рассмотрении.

В уравнении (16.14) величина R представляет полное число отсчетов совпадений, которое могло быть получено, если бы не требовалось знание значений предварительной задержки, ширины ворот или задержек. На практике для величин P,G и D стараются поддерживать фиксированные значения, которые могут быть определены в процессе градуировки с использованием известных стандартных образцов. Тогда величину $R = (R+A)_{\text{пересч. устр.}} - (A)_{\text{пересч. устр.}}$ можно рассматривать как наблюдаемый отклик нейтронных совпадений. Важное уравнение, которое связывает величину R с физическими характеристиками образца, детектора и схемы совпадений, можно получить из уравнений (16.2), (16.12) и (16.14) и оно имеет следующий вид [5, 25]:

$$R = m_{240}(473\ \text{делений} / \text{с} \cdot \text{г})\varepsilon^2 e^{-P/\tau}(1 - e^{-G/\tau})\sum_{\nu} P(\nu)\frac{\nu/(\nu-1)}{2!}, \qquad (16.15)$$

где: R — истинная скорость счета совпадений;

m_{240} — эффективная масса $^{240}Pu_{\text{эфф}}$ образца;

ε — полная эффективность детектора;

ν — множественность нейтронов спонтанного деления;

$P(\nu)$ — распределение вероятности множественности;

P — предварительная задержка;

G — ширина ворот совпадений;

τ — время затухания отклика в детекторе.

Уравнение (16.15) показывает опять, что отклик схемы сдвигового регистра для n событий, близких по времени друг к другу, пропорционален $\nu(\nu\text{-}1)/2$, в то время как отклик традиционной схемы был бы пропорционален $(\nu\text{-}1)$. Для реальных значений величин ε и ν разности не велики и автоматически рассчитываются при проведении градуировки. В разделе 16.5.2 было показано, что выражение $\nu(\nu\text{-}1)/2$ представляет собой сумму всевозможных парных совпадений событий для последовательности ν событий. Таким образом, сдвиговый регистр собирает все возможные действительные совпадения. Отклик схемы совпадений остается все еще линейным относительно массы образца. Однако эффекты саморазмножения в образце, описанные в разделе 16.8, действительно воздействуют на сдвиговый регистр значительно сильнее, чем на традиционные схемы, поэтому схемы сдвигового регистра требуют больше поправочных коэффициентов.

Уравнение (16.15) предоставляет возможность определения времени затухания отклика τ в детекторе. Если один и тот же образец анализируется одним и тем же способом, но при двух разных значения ширины ворот G_1 и G_2, (где $G_2=2G_1$) и двух соответствующих значениях отклика совпадения R_1 и R_2, то для τ справедливо следующее соотношение:

$$\tau = -G_1 / \ln(R_1 / R_2 - 1). \qquad (16.16)$$

16.6 ПОПРАВКИ НА МЕРТВОЕ ВРЕМЯ СДВИГОВОГО РЕГИСТРА

В предыдущем разделе было показано, что ширина ворот совпадений G не приводит к мертвому времени в схеме сдвигового регистра, что позволяет работать при скоростях счета выше 100 кГц. Однако при таких высоких скоростях счета становится заметным влияние ряда меньших значений мертвого времени от аналоговых и цифровых элементов схемы. Они включают:

- время сбора заряда детектора;
- время формирования импульса усилителя;
- время восстановления базовой линии усилителя;
- потери в воротах схемы "ИЛИ" дискриминатора;
- потери из-за синхронизации входных импульсов сдвигового регистра.

Влияние этих эффектов может быть изучено с помощью калифорниевого источника коррелированных во времени нейтронов и источника AmLi некоррелированных нейтронов, а также с помощью любого генератора случайных импульсов [26]. Хотя эти эффекты могут быть изучены порознь или вместе, бывает трудно точно разобраться в их суммарном влиянии на искажение последовательности импульсов, поскольку каждое мертвое время искажает последовательность импульсов и изменяет действие следующего мертвого времени. Этот раздел суммирует то, что известно к настоящему времени о мертвом времени из-за перечисленных выше источников. Приводятся эмпирические поправочные коэффициенты и описываются некоторые электронные решения для уменьшения мертвого времени.

16.6.1 Мертвое время детектора и усилителя

Большинство измерительных систем на основе сдвигового регистра, используемых в настоящее время, содержат аналоговые электронные компоненты, которые включают: а) пропорциональные газонаполненные счетчики; б) зарядочувствительные предусилители; в) усилители и г) дискриминаторы. Как описано в разделе 13.2, зарядовый сигнал может быть получен из газонаполненного счетчика за среднее время от 1 до 2 мкс после взаимодействия нейтрона. Этот временной разброс ограничен изменениями положения в пространстве точки взаимодействия и не является, вообще говоря, мертвым временем. Однако способность детектора разрешать два отдельных импульса будет сравнима с этим временным разбросом. Выходной импульс предусилителя имеет длительность фронта около 0,1 мкс, а постоянная времени усилителя обычно составляет 0,15 или 0,5 мкс. Если все электронные компоненты, перечисленные выше, объединяются так, чтобы один предусилитель и один усилитель с постоянной времени, равной 0,5 мкс, служили семи газонаполненным счетчикам, наблюдается мертвое время около 5 мкс [27]. На практике это мертвое время уменьшается при использовании нескольких цепей с предусилителем-усилителем, как описано в разделе 16.6.4.

Выход усилителя связан со входом дискриминатора, который состоит из детектора уровня и схемы одновибратора. Выходной сигнал схемы одновибратора имеет длительность от 50 до 150 нс.

16.6.2 Смещение из-за наложения импульсов

В добавление к истинному мертвому времени электронные компоненты могут создавать смещение на выходе сдвигового регистра. Смещение определяется, как разность между величинами скоростей счета R+A и A, когда используется такой источник случайного потока нейтронов, как AmLi. Для такого источника разность (R+A) – (A) должна быть равна нулю; если это не так, смещение, выраженное в процентах, составляет 100 R/A. Возможные источники смещения включают: шумы электроники; нескомпенсированный "полюс-ноль" усилителя; входную емкость сдвигового регистра; мертвое время, превышающее предварительную задержку P или смещение базовой линии усилителя после прохождения импульса, которое является наиболее важным источником смещения, если компоненты электроники правильно отрегулированы для минимизации других источников. Любые близко расположенные импульсы, которые попадут на смещенную базовую линию до того, как она будет полностью восстановлена до нуля, имеют различную вероятность переключения дискриминатора. Смещение, возникающее из-за наложения импульсов, пропорционально квадрату скорости счета и может стать заметным при высоких скоростях счета. Если базовая линия восстановлена не полностью за время меньшее, чем длительность предварительной задержки, эффект будет расширен до ворот R+A, и в результате появится смещение.

На рис. 16.10 [28] показана зависимость результатов измерения смещения от длительности предварительной задержки. При измерениях использовался счет-

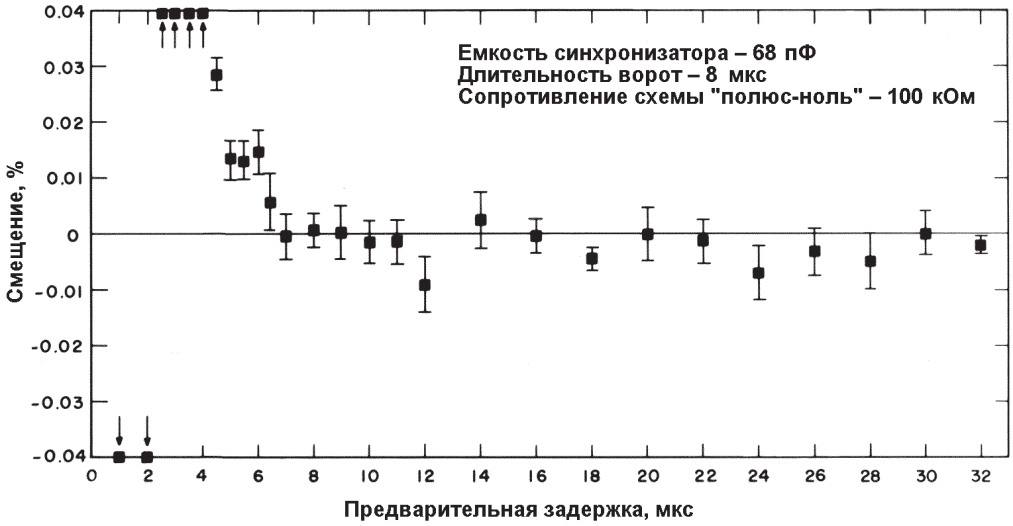

Рис. 16.10. *Смещение отношения совпадений R/A для сдвигового регистра как функция от величины предварительной задержки P для электроники с постоянной времени, равной 0,5 мкс, измеренное для высокоинтенсивного AmLi-источника случайных нейтронов. В этих измерениях отношение R/A было минимизировано за счет использования оптимального значения сопротивления схемы «полюс-ноль» для усилителя, равного 100 кОм, и входной емкости синхронизатора сдвигового регистра, равной 68 пФ. Чтобы добиться максимальной чувствительности к любому остаточному смещению используются ворота совпадений G с длительностью, равной 8 мкс [28]*

чик совпадений с шестью каналами усиления. Наблюдалось уменьшение смещения до приемлемого уровня, т.е. до 0,01 % или ниже при длительности предварительной задержки 4,5 мкс или выше. Эти результаты являются обычными для хорошо отлаженной электроники. Для некоторых высокоэффективных счетчиков, которые обладают длительным временем затухания и работают при скоростях счета выше 100 кГц, длительность предварительной задержки, равная 6-8 мкс, может гарантировать хорошие результаты, но обычно 4,5 мкс является достаточной задержкой.

При высоких скоростях счета величина R обычно находится в пределах 1 % от A; смещение из-за наложений импульсов, составляющее 0,01 % для отношения R/A, приводит к относительному смещению для R, равному 1 %, что только на грани приемлемого.

16.6.3 Мертвое время цифровой электроники

Из-за мертвого времени в цепи усилитель-дискриминатор естественно разделить выходы всех детекторов счетчика совпадений на несколько усилителей, обычно от 4 до 6. Каждый канал с усилителем может обслуживать от трех до семи детекторов. Выходные сигналы дискриминатора каждого канала затем суммируются с помощью стробирующей схемы "ИЛИ" до того, как они поступят в сдвиговый регистр (автокорреляционная модель). Вклад в мертвое время самой стробирующей схемы "ИЛИ" может быть вычислен при следующих предположениях: а) в самом канале нет потерь из-за более длительного мертвого времени предшествующего усилителя и б) потери между каналами обусловлены перекрытием импульсов.

Степень перекрытия импульсов схемы "ИЛИ" =

$$= \frac{n(n-1)}{2!}\, 2(\text{ширина выходного сигнала дискриминатора})(T/n)^2, \qquad (16.17)$$

где n — число каналов;

T — полная скорость счета.

Идеальное мертвое время для стробирующей схемы "ИЛИ", которая принимает импульсы с длительностью, равной 50 нс, определяется следующим уравнением:

$$\text{Мертвое время схемы "ИЛИ"} = \frac{n-1}{n}\, 50, \text{нс}. \qquad (16.18)$$

Это мертвое время для полной скорости счета. Мертвое время для скорости счета совпадений не вычислялось, но, по-видимому, будет больше.

На выходе стробирующей схемы "ИЛИ" образуется поток цифровых импульсов, который поступает на вход сдвигового регистра. К этому моменту времени импульсы с длительностью 50 нс должны быть синхронизованы с 500 наносекундными тактами сдвигового регистра. Ограничение одного импульса на такт означает, что некоторые близко расположенные импульсы будут потеряны, если не использовать выравнивающий буфер (раздел 16.6.5). Эти потери были измерены

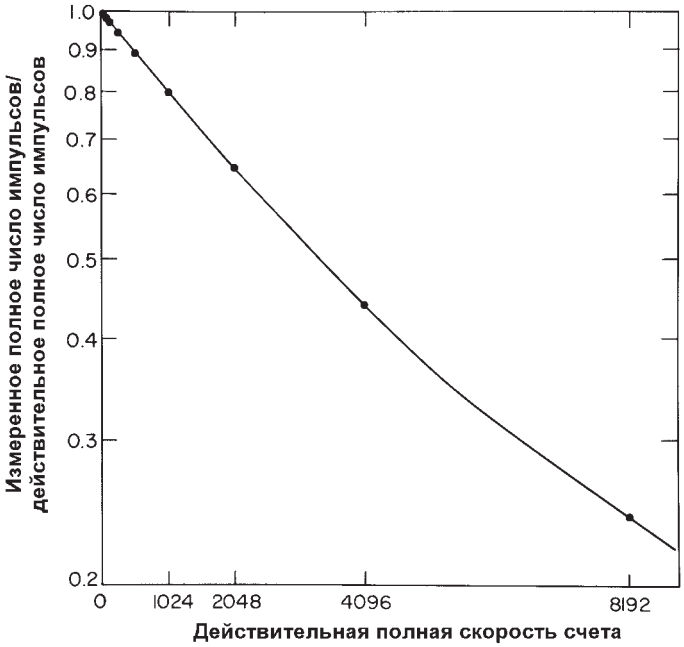

Рис. 16.11. *Мертвое время синхронизатора сдвигового регистра, измеренное с помощью цифрового генератора случайных импульсов, присоединенного непосредственно ко входу синхронизатора. Такт сдвигового регистра составлял 500 нс, а разрешение между парами импульсов генератора случайных событий составляло 60 нс*

с помощью цифрового генератора случайных импульсов, как показано на рис. 16.11. Форма этой кривой описывается следующей функцией:

$$\text{Измеренное полное число импульсов} = (1 - e^{-pT})/p, \qquad (16.19)$$

где p — период таймера сдвигового регистра (500 нс в данном случае);

T — полная входная скорость счета [29].

Для низкой скорости счета уравнение (16.19) дает непродлеваемое мертвое время, равное p/2; для более высоких скоростей эта величина приближается к p; мертвое время совпадений является величиной порядка 2p, как описано в работе [29]. В общем случае мертвое время значительно меньше мертвого времени усилителя, но оно становится заметным при высоких скоростях счета. Например, при частоте импульсов, равной 256 кГц, потери в полной скорости счета составят 6 %, а соответствующие потери для совпадений будут больше.

16.6.4 Эмпирические формулы поправки на мертвое время

Суммарный эффект мертвого времени от аналоговой и цифровой электроники, описанный выше, нельзя рассчитать, но можно определить эмпирически с помощью калифорниевых источников и источников AmLi. Мертвое время совпадений δ_c может быть определено, помещая калифорниевый источник в фиксированное положение внутри колодезного счетчика и измеряя отклик совпадений, вводя все более и более активные источники AmLi. При проведении таких измерений следует обратить внимание на: 1) хорошую центровку источников с тем, чтобы каждый канал блока детектирования регистрировал одинаковую скорость счета;

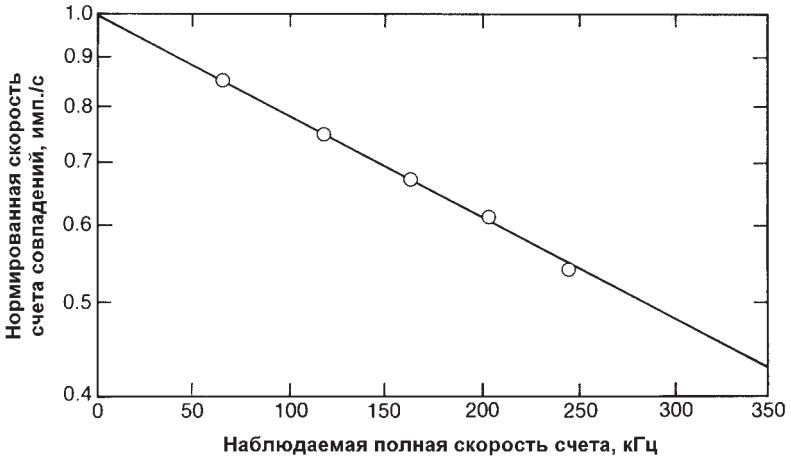

Рис. 16.12. *Полулогарифмический график нормированного отклика совпадений от калифорниевого источника как функция роста полной скорости счета от дополнительных AmLi-источников. Точки на графике представляют измеренные значения; линия получена путем подгонки методом наименьших квадратов к экспоненте с коэффициентом мертвого времени* δ_c*=2.4 мкс [24]*

2) держать источники отдельно друг от друга, чтобы минимизировать эффекты рассеяния. Результат такого измерения показан на рис. 16.12. С точностью до неопределенностей измерения общее мертвое время совпадений для продлеваемого мертвого времени будет с хорошей точностью представлено уравнением (16.7). Мертвое время для полного счета δ_t может быть измерено с помощью методики дополнительного источника, при которой в счетчике измеряются два калифорниевых источника или два источника AmLi, сначала отдельно, а затем вместе. Уравнение для продлеваемого мертвого времени также хорошо работает для поправки общей скорости счета. Смещение можно измерить, помещая в счетчик только источники случайных совпадений AmLi.

Если выполняется предположение, что электронные компоненты могут быть так отрегулированы, что смещением можно пренебречь, как описывалось в разделе 16.6.2, то для поправки на мертвое время будут справедливы следующие общие эмпирические уравнения:

$$T(\text{скорректированная}) = T_m e^{\delta_t T_m}, \tag{16.20}$$

$$R(\text{скорректированная}) = R_m e^{\delta_c T_m}, \tag{16.21}$$

где T_m и R_m — измеренные значения полной скорости счета и скорости счета совпадений $(R+A)_{\text{пересч. устр.}} - (A)_{\text{пересч. устр.}}$.

Отметим, что в уравнениях (16.20) и (16.21) аргументом экспоненты является T_m, а не скорректированная скорость счета T, которая появляется в уравнении (16.7). Использование T_m является удобным приближением для скоростей счета до 100 кГц, но для более высоких скоростей счета коэффициенты δ_t и δ_c становятся скорее функциями скорости счета, чем константами. В табл. 16.1 приведены значения δ_t и δ_c, которые подходят для усилительных цепей и сдвигового ре-

гистра, наиболее принятых в настоящее время, с частотой 2 МГц (данные взяты из работ [27, 30, 31]). Например, для 6 каналов с постоянной времени усилителей, равной 0,15 мкс, значение d_c = 0,62 мкс, а общее мертвое время совпадений составит около 6 % при скорости счета, равной 100 кГц.

Из табл. 16.1 видно, что коэффициент мертвого времени слабо зависит от типа газовой смеси детектора и сильно зависит от числа усилительных каналов. Число газоразрядных счетчиков на один усилительный канал не дает заметного вклада в коэффициенты, хотя эта ситуация может измениться, если газоразрядные счетчики будут работать при скоростях счета выше 20 кГц на каждый счетчик. Следует также отметить, что коэффициенты мертвого времени совпадений, приведенные в табл. 16.1, были измерены с помощью калифорниевого источника (ν =3,757), в то время как наиболее важным для анализа является изотоп плутония ^{240}Pu (ν =2,16). Эффект от этого различия до сих пор не изучен.

Таблица 16.1 – Сводные данные эмпирически полученных значений коэффициентов мертвого времени счетчика совпадений на основе сдвигового регистра [27,30,31]

Газовые примеси детектора на He^3	Число детекторов на канал	Число усилительных каналов	Постоянная времени усилителя, мкс	Мертвое время, мкс		
				общий счет нейтронов, δ_t	счет совпадений, δ_c, 0-100 кГц	счет совпадений, δ_c, 0-500 кГц
$Ar+CH_4$	7	6	0,5*	0,6	2,4	$2,3+1,6\times10^{-6}\ T_m$
$Ar+CH_4$	7	4	0,5	0,87	3,0	$2,8+2,7\times10^{-6}\ T_m$
$Ar+CH_4$	7	2	0,5	2,9	4,7	
$Ar+CH_4$	7	1	0,5	4,9	12,6	
5% CO_2	7	6	0,5	0,9	3,1	
$Ar+CH_4$	3	6	0,15**	0,16	0,62	$0,62+0,20\times10^{-6}\ T_m$

*Схема усилителя с постоянной времени 0,5 мкс была разработана Лос-Аламосской лабораторией [22,23].

**Интегрированная схема AMPTEK A-111 с постоянной времени 0,15 мкс и выравнивающим буфером на входе сдвигового регистра (см. раздел 16.6.5).

16.6.5 Электроника AMPTEK и выравнивающий буфер

Последние улучшения в аналоговой и цифровой электронике включают в себя быстродействующие усилители, дискриминаторы с укороченным выходным сигналом и выравнивающие буферы на входе сдвигового регистра [31]. Быстродействующий усилитель, который имеет эффективную постоянную времени около 0,15 мкс, состоит из зарядочувствительного предусилителя (разновидность Модели A-111), дискриминатора и формирователя импульсов производства корпорации AMPTEK (Бедфорд, штат Массачусетс). Этот модуль обеспечивает до-

статочные усиление и отношение сигнал/шум, если счетчик на He^3 работает при напряжении +1700 В. Модель А-111 вместе с другой электроникой была объединена на единой печатной плате, вставленной в небольшой экранирующий кожух. Каждый такой кожух содержит усилитель, нечувствительный к внешнему шуму, выходной монитор на светодиодах, дискриминатор на выходе с длительностью импульса до 50 нс и разъемы для объединения вместе всех каналов с помощью схемы "ИЛИ". Шесть каналов модулей А-111 могут быть использованы с уменьшенной величиной предварительной задержки до 3 мкс со смещением менее 0,01 %.

Выравнивающий буфер сохраняет импульсы до поступления на вход сдвигового регистра, что позволяет исключить потери при синхронизации, описанные в разделе 16.6.3. Входные импульсы, разделенные менее чем на 0,5 мкс (длительность такта сдвигового регистра) сохраняются в 16-ти разрядном буфере до того момента времени, когда сдвиговый регистр будет готов их принимать. Эта цепь уменьшает приведенное к входу сдвигового регистра мертвое время совпадений до 1 мкс и позволяет работать при скоростях счета до 2 МГц фактически без потерь регистрации синхронизатора. Однако, когда выравнивающий буфер растягивает последовательность импульсов во времени, это может создать последовательности импульсов длиннее, чем длительность предварительной задержки, и привести к смещению результатов. Поскольку усилитель А -111 требует установить величину предварительной задержки, составляющую только 3 мкс, максимально рекомендованная скорость счета, при которой смещение не превышают 0,01%, составляет 500 кГц.

Применение электроники АМРТЕК и выравнивающего буфера позволяет уменьшить мертвое время совпадений в четыре раза до 0,6 мкс, как это видно из табл. 16.1. Такая комбинация устройств позволяет проводить пассивный анализ практически любых плутониевых образцов, с единственным ограничением обеспечения ядерной безопасности образца в измерительном колодце.

16.7 НЕОПРЕДЕЛЕННОСТИ ИЗ-ЗА СТАТИСТИЧЕСКОГО ХАРАКТЕРА ПРОЦЕССА РЕГИСТРАЦИИ

В принципе, эффект, обусловленный статистическим характером отклика совпадений, является очень сложным, поскольку последовательность входных импульсов содержит как случайные, так и коррелированные события, и поскольку коррелированные события могут перекрываться различным образом. Некоторые из этих усложняющих факторов кратко описаны в данном разделе. Для счетчиков совпадений, используемых на практике, эти факторы не велики, и обычно существует возможность вычислить неопределенности измерений совпадений с помощью простого уравнения (16.22), приведенного ниже в разделе 16.7.1.

Главным фактором, который усложняет неопределенности измерений, является наличие неслучайного распределения нейтронов спонтанного деления. Случайные нейтроны, обусловленные фоном или событиями (α,n)-реакций, подчиняются распределению Пуассона: для числа отсчетов n дисперсия равна n, а относительная погрешность составляет: $\sigma_n / n = \sqrt{var(n)} / n = 1/\sqrt{n}$. Однако, если источник спонтанного деления испускает суммарное число нейтронов T в S актах деления, где

$T = \bar{\nu}S$ ($\bar{\nu}$ — средняя множественность нейтронов), относительная погрешность составит $1/\sqrt{S}$, а не $1/\sqrt{T}$, т.к. число актов спонтанного деления подчиняется закону Пуассона, а полное число испущенных нейтронов ему не подчиняется. Это объясняется тем, что испускание более одного нейтрона на деление не предоставляет какой-либо дополнительной информации, которая позволила бы уменьшить неопределенность измерений.

Бенель показал [5], что регистрация n спонтанных нейтронов при эффективности ε имеет дисперсию

$$\frac{\mathrm{var}(n)}{n} = 1 + \varepsilon\,\frac{\overline{\nu^2} - \bar{\nu}}{\bar{\nu}}. \qquad (16.22)$$

Если $\bar{\nu}$ стремится к 1 или ε стремится к 0, то дисперсия стремится к дисперсии распределения Пуассона var(n)=n, но всегда остается больше этого значения. Из уравнения (16.22) видно, что неопределенность измерений будет зависеть от множественности источника деления, от доли случайных событий (ν=1), а также от эффективности детектора. Другие усложняющие факторы включают время затухания отклика детектора и полную скорость счета, которые определяют степень перекрытия событий. Регистрация совпадений будет вводить дополнительные усложнения.

16.7.1 Простое уравнение для оценки погрешности сдвигового регистра

Замечено, что на практике отклонения значений n и ε от распределения Пуассона не очень большие, что следует из соотношения (16.22) и из последовательности импульсов, приведенной на рис. 16.1 (б). Если регистры R+A и A, как предполагается, не коррелированны и подчиняются распределению Пуассона, то относительная статистическая погрешность может оцениваться с помощью следующего уравнения:

$$\frac{\sigma R}{R} = \frac{\sqrt{(R+A)+A}}{R} = \frac{\sqrt{R+2A}}{R}. \qquad (16.23)$$

Это приближение проверялось для большого числа реальных измерений и оказалось справедливым с погрешностью до 15 % для PuO_2 и до 25 % для ^{252}Cf. Поскольку часто на точность анализа влияют так же другие неопределенности, такой уровень оценки статистической неопределенности можно считать достаточным. Более точные уравнения приведены в [5].

Используя уравнение (16.13), уравнение неопределенности (16.23) можно переписать в следующем виде:

$$\frac{\sigma R}{R} = \frac{\sqrt{R + 2\,G\,T^2}}{R\sqrt{t}}, \qquad (16.24)$$

где R и T — скорректированные на мертвое время скорости счета (уравнения (16.20) и (16.21));

t — время счета.

Уравнение (16.24) справедливо для схемы анализа совпадений с переменным мертвым временем и для схемы одновибратора с продлеваемым мертвым временем, а также для сдвигового регистра, что подтверждается экспериментально [10].

Поскольку величина R пропорциональна $(1\text{-}e^{-G/\tau})$, то оптимальная оценка ширины ворот G, которая минимизирует относительную погрешность для заданного времени затухания τ, может быть получена с помощью дифференцирования уравнения (16.24). В результате имеем следующее уравнение:

$$G = \tau(e^{G/\tau} - 1)/2 \approx 1{,}257\tau\,. \qquad (16.25)$$

16.7.2 Неопределенности для пассивного и активного счета совпадений

При пассивном счете нейтронных совпадений измеренная полная скорость счета пропорциональна $\varepsilon m_{240}t$, а измеренная скорость счета совпадений пропорциональна $\varepsilon^2 m_{240}t$, где m_{240} — эффективная масса ^{240}Pu, а t — время счета. Статистическая неопределенность измерений (уравнение (16.23) или (16.24)) определяется следующим выражением пропорциональности:

$$\frac{\sigma R}{R} \propto \frac{\sqrt{k_1 m_{240} + 2\,k_2 G\, m_{240}^2}}{\varepsilon m_{240}\sqrt{t}}\,, \qquad (16.26)$$

где k_1 и k_2 — постоянные пропорциональности. Для очень малых образцов относительная погрешность пропорциональна $1/\sqrt{m_{240}}$; для больших образцов относительная погрешность не зависит от массы образца. В любом случае относительная погрешность пропорциональна $1/\varepsilon$, это означает, что эффективность пассивного колодезного счетчика должна быть как можно выше.

Активный анализ урановых образцов может выполняться с помощью активного колодезного счетчика нейтронных совпадений AWCC, который использует источники AmLi для возбуждения делений ^{235}U (см. раздел 17.3.1). Статистическая неопределенность результатов измерений для AWCC также определяется уравнениями (16.23) и (16.24). Скорость счета совпадений пропорциональна $\varepsilon^2 m_{235}tS$, где m_{235} — масса ^{235}U; t-время счета; S-интенсивность источника AmLi. Хотя полная скорость счета увеличивается за счет вынужденных делений, этот эффект на практике является небольшим и для вычислений погрешности имеет смысл предположить, что полная скорость счета прямо пропорциональна εSt. Тогда справедливо следующее выражение пропорциональности:

$$\frac{\sigma R}{R} \propto \frac{\sqrt{k_1 m_{235} S + 2\,G k_2 S^2}}{\varepsilon m_{235} S\sqrt{t}}\,, \qquad (16.27)$$

где k_1 и k_2 — постоянные пропорциональности. Для больших масс урана и слабых источников относительная погрешность пропорциональна $1/\sqrt{m_{235}S}$. Для мощных источников относительная погрешность пропорциональна $1/\varepsilon m_{235}$.

Последнее соотношение имеет несколько интересных последствий. Во-первых, для достаточно мощных источников, для которых можно гарантировать, что R много меньше A, относительная погрешность не зависит от интенсивности этих источников. Это свойство имеет то преимущество, что источники должны быть только достаточно мощными, чтобы удовлетворять этому критерию, который на

практике соответствовал 2×10^4 нейтрон/с (для двух источников, при пренебрежимо малом фоне и отсутствии пассивного сигнала от образца [32]). Однако это свойство имеет недостаток, который заключается в том, что точность анализа не может быть улучшена за счет введения еще более мощных источников. Когда G, ε, k_1 и k_2 определяются только конструкцией колодезного счетчика, точность анализа можно изменить, только изменяя время счета. Во-вторых, абсолютная погрешность анализа почти не зависит от массы образца и определяется, главным образом, скоростью счета случайных совпадений.

Для AWCC, описанного в [32], абсолютная погрешность анализа для "быстрой" конфигурации при времени счета 1000 с соответствует 18 г ^{235}U.

16.8 ЭФФЕКТЫ САМОРАЗМНОЖЕНИЯ В ОБРАЗЦЕ

Среди эффектов, которые могут искажать счет пассивных нейтронных совпадений, обычно доминирующим является саморазмножение отклика совпадений вынужденных делений в образце. Этот эффект существует во всех плутониевых и в меньшей степени в урановых образцах. Пассивные счетчики совпадений реагируют на вынужденные деления так же, как на спонтанные деления. Таким образом, отклик для данного количества спонтанно делящегося материала умножается и показывает большее количество ядерного материала, чем имеется на самом деле. В этом разделе описывается важность этого эффекта для анализа плутония и предлагается коэффициент поправки на саморазмножение, который для некоторых ситуаций анализа оказывается полезным.

16.8.1 Источник эффекта саморазмножения

Существуют два обычных внутренних источника нейтронов, которые вызывают вынужденные деления. Одним источником являются сами спонтанно делящиеся изотопы. Например, нейтроны, испускаемые ^{240}Pu, могут поглощаться ядром ^{239}Pu и вызывать вынужденные деления этих ядер. Средняя множественность спонтанного деления ν_s=2,16, а средняя множественность нейтронов при вынужденном делении под действием тепловых нейтронов ν_I=2,88 (см. табл. 11.1). Схема совпадений не может установить различие между этими двумя множественностями, и поэтому будут зарегистрированы оба типа делений.

Другим источником нейтронов являются (α,n)-реакции на легких элементах матрицы. Например, в двуокиси плутония α-частицы от ^{238}Pu могут взаимодействовать с ^{17}O или ^{18}O с образованием дополнительных нейтронов, которые в свою очередь вызывают вынужденные деления ^{239}Pu. Нейтроны (α,n)-реакций, имея множественность, равную 1, не могут сами по себе создавать отклик совпадений, но образованные нейтроны вынужденного деления с множественностью ν=2,88, способны на это. Величина этого отклика зависит от интенсивности источника альфа-излучения, плотности легких элементов, степени их перемешивания с альфа-излучателями, плотности делящихся изотопов, геометрии образца и, в общем случае, не пропорциональна количеству спонтанно делящихся анализируемых изотопов.

Размножение нейтронов внутренних источников нейтронов, обусловленное вынужденным делением, это тот же самый процесс, который приводит к критич-

ности. Неожиданным здесь является то, что эффекты размножения проявляются при анализе сравнительно малых образцов, масса которых весьма далека от критической. Даже десятиграммовый образец из металлического плутония способен давать увеличение в отклике совпадения, равное 5 %. Для образца металлического плутония с массой, равной 4000 г, что не слишком далеко от критичности, умножение полного количества нейтронов на выходе приблизительно равно 2, а умножение отклика совпадений приблизительно равно 10.

Влияние эффектов саморазмножения при анализе PuO_2 методами пассивных нейтронных совпадений проиллюстрировано на рис. 16.13 [33]. Данные показывают искривление, направленное вверх, и отклонение от прямой линии, определенной с помощью образцов с наименьшим количеством вещества, до 38 % для самых больших образцов, содержащих 779 г PuO_2. В прошлом эффекты саморазмножения часто были замаскированы, поскольку в данных отсутствовали поправки на мертвое время электроники или из-за того, что рисовали прямую линию, которая, как казалось, проходит через большинство экспериментальных точек, даже если для самых маленьких образцов наклон не подходил. Последней погрешности можно легко избежать, занося в таблицу отклик совпадений на грамм, как показано в столбце 3 табл. 16.2. В следующем разделе будут обсуждаться другие данные, приведенные в табл. 16.2, которые описывают поправки результатов на саморазмножение.

16.8.2 Результаты вычислений

Эффект саморазмножения в образце может быть рассчитан с помощью методик Монте-Карло. Для образцов, перечисленных в табл. 16.2, в столбцах 5-9 приведены результаты таких вычислений, которые были проведены с помощью вычислительной программы, реализующей метод Монте-Карло и описанной в работе [33]. Однако сам детектор не был тщательно промоделирован, поскольку было необходимо получить только значение чистого умножения нейтронов утечки через поверхность, окружающую образец. Вычислительная программа Монте-Карло производит оценку исходных нейтронов (α,n)-реакций или нейтронов спонтанного деления с помощью следующего соотношения:

$$\alpha = N_\alpha / \nu_s N_s , \qquad (16.28)$$

где N_α — число (α,n) реакций;

N_s — число событий спонтанного деления.

Значения для величины α, полученные с помощью уравнения (16.32) или (16.35), приведены в столбце 4 табл. 16.2. Каждая цепочка вынужденных делений была полностью проанализирована. С помощью вычислительной программы Монте-Карло рассчитывались значения умножения нейтронов утечки M_L (определение было приведено в главе 14), которое связано с вероятностью вынужденного деления p следующим соотношением:

$$M_L = \frac{1-p}{1-p\,\nu_I} . \qquad (16.29)$$

Рассчитанные значения M_L приведены в столбце 5 табл. 16.2. Эти значения являются отношениями, с помощью которых увеличивается полное число отсче-

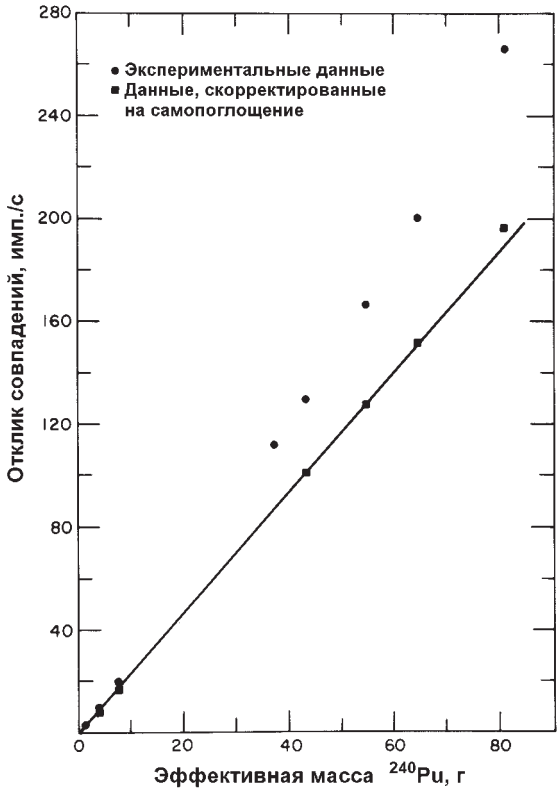

Рис. 16.13. *Отклик совпадений, полученный по стандартным образцам PuO_2. Направленная вверх кривизна верхних точек на графике обусловлена саморазмножением в PuO_2. Вычисления методом Монте-Карло, описанные в тексте, были выполнены для всех образцов, кроме первого и четвертого, чтобы определить поправку на саморазмножение путем подгонки прямой к данным*

тов за счет умножения, связанного с утечкой, поглощением, делением и отражением, которые принимаются во внимание. Для простоты в дальнейшем умножение нейтронов утечки будем обозначать M.

С помощью этой процедуры был также рассчитан поправочный коэффициент совпадений

$$CF = 1 + f_{sf} + f_{\alpha n}, \qquad (16.30)$$

где $1+f_{sf}$ — поправка отклика совпадений на чистое размножение нейтронов спонтанного деления;

$f_{\alpha n}$ — дополнительная поправка на чистое размножение нейтронов только от (α,n)-реакций.

В табл. 16.2 столбцы 6 и 7 показывают относительные величины этих двух эффектов размножения нейтронов вынужденного деления для образцов PuO_2. В столбце 8 приведен полный поправочный коэффициент CF, а в столбце 9 показано, что скорректированный отклик совпадений, нормированный на массу материала, является почти постоянной величиной.

С помощью вычислительной программы, описанной выше, была проведена серия расчетов для выяснения влияния на величину поправочного коэффициента массы образца, его плотности, изотопного состава, а также содержания влаги. Результаты в виде графиков приведены на рис. 16.14 [33]. Все вычисления проводились для вариаций параметров образца PuO_2 вокруг произвольно выбранных

Таблица 16.2 – Поправочные коэффициенты на саморазмножение для образцов двуокиси плутония, приведенных на рис. 16.13. Столбцы 5-9 получены из расчетов Монте-Карло, а столбцы 10, 11 – из отношения R/T.

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Масса образца, г	Эффективная масса ^{240}Pu, %	Отклик совпадения, имп./г·с	α*	Коэффициент умножения нейтронов утечки M_L	f_{sf}**	$f_{\alpha n}$***	Поправочный коэффициент CF	Скорректированный отклик/г·с	Из отношения R/T	
									M_L	CF
20	6,0	2,35(2)	0,66				1,02(1)	2,31(3)		
60	6,4	2,42(2)	1,43	1,005	0,024	0,020	1,04(1)	2,32(3)	1,003	1,03
120	6,4	2,53(2)	1,36	1,010	0,049	0,035	1,08(1)	2,33(3)	1,012	1,08
480	7,8	2,99(3)	0,74				1,28(1)	2,34(4)	1,044	1,26
459	9,5	2,98(3)	0,64	1,046	0,192	0,068	1,26(1)	2,36(4)	1,048	1,28
556	9,9	3,03(3)	0,62	1,049	0,215	0,075	1,29(1)	2,35(4)	1,043	1,25
615	10,6	3,08(3)	0,60	1,056	0,260	0,084	1,34(1)	2,30(4)	1,052	1,30
779	10,4	3,26(3)	0,61	1,061	0,285	0,095	1,38(1)	2,36(4)	1,070	1,41

* Отношение числа нейтронов, образованных в (α,n)-реакциях, к числу нейтронов, образованных в результате спонтанного деления.
** Поправка на размножение нейтронов спонтанного деления.
*** Поправка на размножение нейтронов (α,n)-реакций.

значения массы, равного 800 г, и плотности, составляющей 1,3 г/см^3. Этот образец содержит 706 г плутония при 10 % $^{240}Pu_{эфф}$ и 1 вес.% воды и упакован в контейнер с внутренним диаметром, равным 8,35 см. При вычислениях варьировался только один параметр. В частности, при вариации массы и плотности высота засыпки подбиралась так, чтобы сохранялось значение полной массы материала. При вариациях содержания H_2O, плотность образца подбиралась так, чтобы сохранить объем. На рис. 16.14 показано, что корректировка отклика совпадений необходима даже для маленьких масс и низких значений плотности материала. Из рис. 16.14 видно, что поправочные коэффициенты совпадений заметны даже при низких значениях массы и плотности.

Кривые на рис. 16.14 могут быть использованы для оценки поправочных коэффициентов совпадений для других подобных образцов оксида плутония. Точный диапазон применимости неизвестен. Непосредственно по программе Монте-Карло были рассчитаны поправочные коэффициенты для всех образцов, приведенных в табл. 16.2, за исключением первого и четвертого, для которых результаты были получены с помощью экстраполяции кривых, приведенных на рис. 16.14.

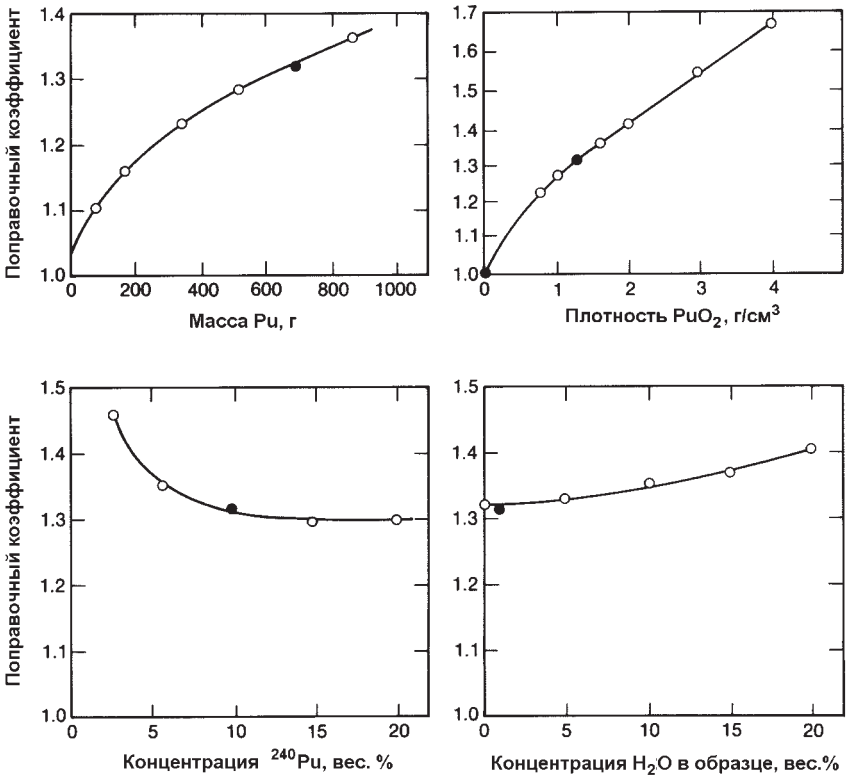

Рис. 16.14. *Зависимости поправочных коэффициентов на саморазмножение от различных параметров, полученные с помощью расчетов методом Монте-Карло при регистрации совпадений для PuO_2. Сплошные точки на графике соответствуют номинальным значениям параметров*

16.8.3 Влияние различных эффектов на отклик сдвигового регистра

Можно записать выражения для оценки влияния эффекта саморазмножения на отклик сдвигового регистра. Полная скорость счета нейтронов T после вычитания скорости счета фона b может быть представлена в виде уравнения

$$T - b = m_{240}(473 \text{ делений} / \text{с} \cdot \text{г})\, \varepsilon\, M \nu_s (1+\alpha), \tag{16.31}$$

где m_{240} — эффективная масса ^{240}Pu;
ε — эффективность детектора;
M — умножение нейтронов утечки;
ν_s — множественность нейтронов спонтанного деления;
α — определяется уравнением (16.28).

Если все другие величины известны, то значение α может быть определено, инвертируя уравнение (16.31):

$$1+\alpha = (T-b) / m_{240}(473 \text{ делений} / \text{с} \cdot \text{г})\, \varepsilon\, M \nu_s . \tag{16.32}$$

Скорость счета совпадений R дается следующими уравнениями [34]:

$$R = m_{240}(473 \text{ делений} / \text{с} \cdot \text{г})\, \varepsilon^2 \frac{\overline{\nu(\nu-1)}}{2} F , \tag{16.33}$$

$$\overline{\nu(\nu-1)} = M^2 \left[\frac{\overline{\nu_s(\nu_s-1)}}{1+\alpha\nu_s} + \frac{(M-1)}{\nu_I - 1} \frac{(1+\alpha)}{1+\alpha\nu_s} \nu_s \overline{\nu_I(\nu_I-1)} \right], \tag{16.34}$$

где $\overline{\nu_s(\nu_s - 1)}$ и $\overline{\nu_I(\nu_I - 1)}$ — вторые приведенные моменты распределений множественности спонтанного и вынужденного делений, соответственно.

Уравнение (16.33) подобно уравнению (16.15), где F представляет долю измеренных совпадений, $e^{-P/\tau}(1 - e^{-G/\tau})$. Эти уравнения предполагают, что все цепочки деления, произведенные от исходного деления, должны происходить одновременно внутри разрешающего времени счетчика совпадений. Это предположение, которое называют "концепцией суперделения" [5], справедливо для счетчиков тепловых нейтронов из-за их длительного времени затухания.

Из уравнений (16.31) и (16.33) для T и R, а также из данных столбцов 5 и 8 табл. 16.2 вытекает, что эффекты саморазмножения влияют на счет совпадений значительно сильнее, чем на регистрацию полной скорости счета. В качестве простой иллюстрации этого обстоятельства допустим, что в результате одного спонтанного деления освобождается два нейтрона, один из которых поглощается делящимся ядром, которое в свою очередь при делении образует три нейтрона на одно деление. Полное число нейтронов увеличилось от двух до четырех (M=2). Однако отклик совпадений увеличился от одного до 6 (CF=6). Таким образом, за счет размножения увеличилось отношение R/T. Лабораторные измерения показали, что отношение R/T может служить в качестве меры размножения. Это отношение является основой для простой поправки на саморазмножение, процедуры которой описаны в следующем разделе.

16.8.4 Простой коэффициент поправки на саморазмножение

Поскольку для определения саморазмножения для каждого анализируемого образца проводить расчеты Монте-Карло обычно невозможно, существует острая необходимость для поправки на саморазмножение, которая может быть определена для каждого образца по измеренным параметрам R и T. Как упоминалось ранее, отношение R/T чувствительно к размножению в образце, поэтому можно использовать R для анализа, а R/T — для поправки на саморазмножение. Процедура вычисления такой поправки включает следующие шаги:

Шаг 1. Анализируют небольшой стандартный образец (10 или 20 г), который в некотором приближении может рассматриваться как образец, не имеющий размножения. Используют ту же самую геометрию измерений и те же установки электроники, которые будут использованы для анализа больших образцов, которые будут проводиться на шаге 2. Это измерение небольшого стандартного образца даст значения R_0, T_0 и α_0. Если образец без саморазмножения является чистым металлом, то $\alpha_0 = 0$. В противном случае значение α_0 можно определить из уравнения (16.32) при M = 1. (Можно также использовать стандартный образец, имеющий размножение, если достаточно точно определить относительные поправочные коэффициенты [35]).

Шаг 2. Теперь анализируют неизвестный образец с размножением, который требует поправки на саморазмножение. Это измерение дает значения величин R и T. Если образец является чистым металлом, то $\alpha = 0$. Если образец имеет тот же состав, что и небольшой стандартный образец, используемый на шаге 1, то $\alpha = \alpha_0$. Если образец является чистой двуокисью плутония, то на основании данных табл. 11.1 и 11.3, можно вычислить значение α, используя следующую формулу:

$$\alpha = \frac{13400\, f_{238} + 38{,}1\, f_{239} + 141\, f_{240} + 1{,}3\, f_{241} + 2{,}0\, f_{242} + 2690\, f_{Am-241}}{1020\,(2{,}54\, f_{238} + f_{240} + 1{,}69\, f_{242})}, \qquad (16.35)$$

при условии, что известна изотопная доля f каждого изотопа, а также ^{241}Am. Для расчета коэффициента поправки вычисленного значения α на содержание основных примесей, которые имеют высокие сечения для (α,n)-реакции, если концентрации этих примесей известны, можно использовать уравнение (11.7). Для неоднородных или плохо охарактеризованных плутониевых оксидов, скрапа или отходов, для которых значение α невозможно определить ни одним из перечисленных выше методов, эта поправку на саморазмножение использовать нельзя.

Шаг 3. Вычисляют отношение

$$r = \frac{R/T}{R_0/T_0}\,\frac{(1+\alpha)}{(1+\alpha_0)}. \qquad (16.36)$$

Это отношение будет больше единицы для образцов с размножением при M > 1, поскольку саморазмножение увеличивает R сильнее, чем T. Отношение r не зависит от эффективности детектора, времени затухания в блоке детектирования, а также ширины ворот схемы совпадений. Заметим, что все скорости счета в уравнении (16.36) должны быть скорректированы на фон и мертвое время электроники.

Шаг 4. Умножение нейтронов утечки M определяют по следующей формуле:

$$2{,}062\,(1+\alpha)M^2 - [2{,}062\,(1+\alpha) - 1]M - r = 0. \qquad (16.37)$$

Уравнение (16.37) выводится из уравнений (16.33) и (16.34) [36, 37].

Шаг 5. Поправочный коэффициент совпадений на саморазмножение CF равен Mr. Окончательно получают:

$$T(\text{скорректированная на саморазмножение}) = T / M$$

$$R(\text{скорректированная на саморазмножение}) = R / Mr\,. \qquad (16.38)$$

Эта поправка на саморазмножение не имеет регулируемых параметров и является независимой от геометрии. Например, предположим, что два плутониевых образца подносятся ближе и ближе друг к другу. В этом случае величина M, длина цепочки нейтронов вынужденного деления, средняя эффективная множественность и отношение R/T будут возрастать. Уравнение (16.37) будет давать большие значения M, а уравнение (16.38) большие значения поправочных коэффициентов. Примеры приведены в работе [33] и на рис. 17.8.

Когда для линеаризации градуировочной кривой используется уравнение (16.38), следовательно

$$m_{240} = R / kMr\,, \qquad (16.39)$$

то уравнения (16.31), (16.36) и (16.39) требуют, чтобы градуировочная постоянная k и эффективность детектора ε были связаны следующим соотношением:

$$k = \varepsilon \nu_s (473 \text{ делений} / \text{с} \cdot \text{г}) \frac{R_0}{T_0} (1 + \alpha_0)\,. \qquad (16.40)$$

Это соотношение не имеет большого практического значения, так как k обычно получают на основе проведения градуировки, но оно может быть полезно для диагностики, чтобы показать, правильно ли были измерены эффективность детектора или небольшой стандартный образец.

16.8.5 Применения и ограничения простой поправки

Несмотря на то, что поправочные коэффициенты, полученные в соответствии с уравнениями (16.37) и (16.38), обеспечивают полную поправку без регулируемых параметров, при выводе простых уравнений были сделаны следующие предположения:

1. Предполагалось, что эффективность детектора является постоянной по всему объему образца. Это не всегда имеет место, но это становится легче реализовать при использовании таких приборов, как усовершенствованный высокоуровневый счетчик совпадений нейтронов HLNCC-II, который будет описан в разделе 17.2.3.

2. Предполагалось, что нейтроны (α,n)-реакций и нейтроны спонтанного деления имели одинаковые энергетические спектры, так что эффективность детектора ε, вероятность деления p и множественность вынужденных делений ν_I будут иметь одинаковые значения для обоих источников нейтронов. В общем случае это не выполняется, хотя для оксида плутония нейтроны (α,n)-реакций и нейтроны спонтанного деления имеют близкие средние энергии (2,03 и 1,96 МэВ, соответственно), но различные формы спектра.

3. Предполагалось, что все цепочки деления протекают одновременно в течение времени затухания отклика в детекторе. Это не справедливо для нейтронов, которые возвращаются в образец из детектора (отраженные нейтроны) [5].

Эти приближения вносят погрешности в значения поправок. Значения величины M, полученные с помощью уравнения (16.37), могут отличаться от значений, полученных по программе Монте-Карло. Значения поправочного коэффициента совпадений CF=Mr обычно лучше, по-видимому, из-за того, что некоторые погрешности исключаются при использовании отношений величин. Поправка обычно позволяет снизить погрешность результатов до 2-3 %, что неплохо, но превышает относительное стандартное отклонение результатов измерений (порядка 0,5 %).

Результаты использования простой поправки на саморазмножение приведены в табл. 16.2 (столбцы 10 и 11), а также на рис. 17.8, 17.19, 17.20 и 17.22 для металлического плутония, PuO_2 и растворов нитрата плутония. Хорошие результаты были получены при анализе PuO_2 [22], для металлического плутония [33, 36], а также для топливных сборок реакторов-размножителей[38].

Приведенные выше примеры использования этих поправок показывают, что хорошие результаты (обычно с погрешностью порядка 2-3 %) могут быть получены для хорошо охарактеризованных образцов, несмотря на предположения, сделанные при выводе уравнений. Однако необходимость знания значения α, отношения числа нейтронов (α,n)-реакций к числу нейтронов спонтанного деления для каждого анализируемого образца, служит ограничением применимости этой методики. Для скрапа, отходов, оксидов с примесями или металлов с окисленной поверхностью значение α определить невозможно. Любая погрешность при выборе значения α приводит к заметной погрешности корректируемых результатов анализа. В таких случаях эту поправку на размножение следовало бы использовать только для диагностических целей. Крик [39] обнаружил, что двухпараметрические градуировочные кривые без поправки на саморазмножение дают наилучшую точность результатов анализа для многих классов оксидов, где значение α определить невозможно, а плотность и форма образца фиксированы.

Главным ограничением простой поправки на размножение является то, что при каждом анализе измеряются только два параметра: R и T. Число неизвестных переменных равно, по крайней мере, трем: масса образца, коэффициент саморазмножения образца и интенсивность (α,n)-реакции. Дальнейшего улучшения поправок на размножение можно достичь при условии, что счетчики совпадений будут измерять третий параметр, а именно — тройные совпадения [23, 33].

16.9 ДРУГИЕ ЭФФЕКТЫ МАТРИЦЫ

Доминирующим эффектом матрицы при пассивной регистрации нейтронных совпадений обычно является процесс саморазмножения, описанный в разделе 16.8. Если можно правильно применить поправки на потерю скорости счета из-за электроники и на саморазмножение, то отклик совпадений обычно является линейной функцией от массы образца. Однако на результаты анализа могут влиять другие эффекты матрицы и иногда их можно проглядеть. Эти эффекты обобщаются в данном разделе на основе работы [40].

1. (α,n)-загрязнения

Для плутониевых образцов наиболее важными (α,n)-источниками являются кислород и фтор. Обычно содержание фтора составляет от 10 до 400 млн.$^{-1}$, в то время как содержание кислорода (в виде влаги) может превышать несколько процентов. Расчетные оценки влияния фтора и воды на общую скорость счета нейтронов были приведены в разделе 14.2.3 главы 14. Такие (α,n)-загрязнения могут приводить к смещению результатов анализа до нескольких процентов. Если их концентрации известны, то можно учесть их влияние в виде поправки на саморазмножение.

2. Содержание водорода

Водород, содержащийся в воде, влияет на отклик нейтронных совпадений, смещая энергетический спектр нейтронов (см. главу 14, раздел 14.2.4). Это приводит к увеличению эффективности детектора и саморазмножения в образце. Первый из вышеперечисленных эффектов может быть минимизирован хорошей конструкцией детектора, второй — учитывается с помощью поправки на размножение.

3. Эффекты стенок контейнера

Отражение и рассеяние нейтронов стенками контейнера приводит к увеличению эффективности детектора и саморазмножения образца. Наблюдалось увеличение скорости счета совпадений до 7 %. Эффекты контейнера можно оценить, проводя измерения, помещая внутри пустого контейнера калифорниевый источник, а потом проводя измерения источника без контейнера.

4. Влияние урана на анализ плутония

Добавление урана к плутонию (смешанные оксиды) приводит к следующим эффектам: дополнительному размножению в ^{235}U, уменьшению размножения в плутонии за счет его "разбавления", дополнительному размножению быстрых нейтронов в ^{238}U. Несмотря на различные множественности делений ^{239}Pu, ^{235}U и ^{238}U поправка на размножение хорошо работает для смесей плутония и урана, если нет дополнительных неизвестных источников (α,n)-реакций.

5. Замедление и поглощение нейтронов (самоэкранирование)

В растворах нитрата плутония наблюдалось замедление, приводящее к увеличенному поглощению нейтронов (глава 17, раздел 17.2.7). При активном счете совпадений урана поглощение нейтронов и саморазмножение нейтронов являются сильными и взаимоисключающими эффектами. Присутствие обоих эффектов часто приводит к почти линейным градуировочным кривым (глава 17 рис. 17.24 и 17.29).

6. Поглотители нейтронов

Бор, кадмий и некоторые другие элементы имеют высокие сечения захвата тепловых нейтронов и потому могут поглощать значительную их часть. Проблемы поглотителей нейтронов наблюдались при активном анализе свежих тепловыделяющих сборок для реакторов на легкой воде.

7. Геометрия образца

Если эффективность регистрации непостоянна по объему образца, тогда отклик совпадений может меняться с изменением его геометрии. Пассивные счетчики нейтронных совпадений в настоящее время конструируются так, что весь образец находится в зоне одинаковой эффективности. Для активных счетчиков нейтронных совпадений расстояние "источник-образец" очень важно, и поэтому согласованное расположение образца весьма существенно.

8. Плотность образца

Изменения в плотности образцов оксида плутония из-за оседания или встряхивания в процессе транспортировки или работы с образцами могут приводить к изменению отклика совпадений (при пассивном анализе) более чем на 10 %. Поправка на размножение может учесть эти изменения для образцов похожего состава, если они находятся в области одинаковой эффективности регистрации. При активном методе регистрации нейтронных совпадений изменения плотности влияют как на саморазмножение, так и на самоэкранирование нейтронов. Подходящей поправки не существует.

9. Матричные эффекты в скрапе и в отходах

Здесь полезно знать состав матрицы и какие из упомянутых выше эффектов имеют место. Для материалов, содержащих плутоний, отклик совпадений обычно более надежен, чем отклик полной скорости счета, но он может дать только верхний предел количества ^{240}Pu. В общем случае полезно измерить как полную скорость счета, так и скорость счета совпадений, и использовать отклик полной скорости счета или отношение совпадений к полной скорости счета для диагностики, которая помогает в интерпретации отклика совпадений.

ЛИТЕРАТУРА

1. M.S. Krick, "^{240}Pu -effective Mass Formula for Coincidence Counting of Plutonium with Shift Register Electronics," in "Nuclear Safeguards Program Status Report, May—August 1977," J. L. Sapir, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7030-PR (1977), p.16.
2. C.H. Westcott, "A Study of Expected Loss Rates in the Counting of Particles from Pulsed Sources," *Royal Society of London,* A 194 (1948).
3. C.H. Vincent, "The Pulse Separation Spectrum for the Detection of Neutrons from a Mixture of Fissions and Single-Neutron Events," *Nuclear Instruments and Methods* 138,261 (1976).
4. N. Pacilio, "Reactor Noise Analysis in the Time Domain," AEC Critical Review Series TID 24512 (1969).
5. K. Boehnel, "Determination of Plutonium in Nuclear Fuels Using the Neutron Coincidence Method" KFK2203, Karlsruhe, 1975, and AWRE Translation 70 (54/4252), Aldermaston, 1978.
6. J. Jacquesson, *Journal of Physics* 24, Supp. to No. 6, 112A (1963).
7. G. Birkhoff, L. Bondar, and N. Coppo, "Variable Deadtime Neutron Counter for Tamper-Resistant Measurements of Spontaneous Fission Neutrons," Eurochemic Technical Report EUR-4801e (1972).

8. K. Lambert and J. Leake, "A Comparison of the VDC and Shift Register Neutron Coincidence Systems for ^{240}Pu Assay," *Nuclear Materials Management* VII (4), 87 (1979).

9. W. Stanners, "Brief Note on Analysis of VDC Results," Commission of the European Communities, Luxembourg, CEL-DXIII-E (1977).

10. N. Ensslin, M. Evans, H. Menlove, and J. Swansen, "Neutron Coincidence Counters for Plutonium Measurements," *Nuclear Materials Management* VII (2), 43(1978).

11. A. Prosdocimi and P. Hansen, "Evaluation of the Physical Performances of Neutron Variable Deadtime Counters, Part II—Neutron Physics," Joint Research Centre report FMM/64 (1981).

12. E.W. Lees and B.W. Hooten, "Variable Deadtime Counters, Part III: A Critical Analysis," Atomic Energy Research Establishment report R9701 (1980).

13. C.V. Strain, "Potential and Limitations of Several Neutron Coincidence Equipments," Naval Research Laboratory memorandum 2127 (1970).

14. R. Sher, "Operating Characteristics of Neutron Well Coincidence Counters," Brookhaven National Laboratory report 50332 (1972).

15. E.J. Dowdy, C.N. Henry, A.A. Robba, and J.C. Pratt, "New Neutron Correlation Measurement Techniques for Special Nuclear Material Assay and Accountability," International Atomic Energy Agency report IAEA-SM-231/69 (1978).

16. E.J. Dowdy, G.E. Hansen, A.A. Robba, and J.C. Pratt, "Effects of (a,n) Contaminants and Sample Multiplication on Statistical Neutron Correlation Measurements," Proc. 2nd Annual ESARDA Symp. on Safeguards and Nuclear Material Management, Edinburgh, U.K., March 26-29, 1980.

17. A. Robba, E. Dowdy, and H. Atwater, "Neutron Multiplication Measurements Using Moments of the Neutron Counting Distribution," *Nuclear Instruments and Methods* 215,473 (1983).

18. K.V. Nixon, E. Dowdy, S. France, D. Millegan, and A. Robba, "Neutron Multiplication Measurement Instrument," *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-30 (I) (1983).

19. M. Stephens, J. Swansen, and L. East, "Shift Register Neutron Coincidence Module," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6121-MS (1975).

20. J. Swansen, N. Ensslin, M. Krick, and H. Menlove, "New Shift Register for High Count Rate Coincidence Applications," in "Nuclear Safeguards Research Program Status Report, September—December 1976," J. L. Sapir, Comp., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6788-PR (June 1977), p.4.

21. J. Swansen, P. Collinsworth, and M. Krick, "Shift Register Coincidence Electronics System for Thermal Neutron Counters," *Nuclear Instruments and Methods* 176,555 (1980).

22. K. Lambert, J. Leake, A. Webb, and F. Rogers, "A Passive Neutron Well Counter Using Shift Register Coincidence Electronics," Atomic Energy Research Establishment report 9936 (1982).

23. M. Krick and J. Swansen, "Neutron Multiplicity and Multiplication Measurements," *Nuclear Instruments and Methods* 219,384 (1984).

24. M. Krick and H. Menlove, "The High-Level Neutron Coincidence Counter User's Manual," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7779-M (1979).

25. M.S. Krick, "Calculations of Coincidence Counting Efficiency for Shift-Register and OSDOS Coincidence Circuits," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, May-August 1977," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7030-PR (1978), p.14.

26. J. Swansen and N. Ensslin, "A Digital Random Pulser for Testing Nuclear Instrumentation," *Nuclear Instruments and Methods* 188, 83 (1981).

27. E. Adams, "Deadtime Measurements for the AWCC," Los Alamos National Laboratory memorandum Q-1-82-335 to H. Menlove (April 29, 1982).

28. J. Swansen and N. Ensslin, "HLNCC Shift Register Studies," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, April-June 1980," G. R. Keepin, Ed., Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8514-PR (February 1981), p.11.

29. C.H. Vincent, "Optimization of the Neutron Coincidence Process for the Assay of Fissile Materials," *Nuclear Instruments and Methods* 171,311 (1980).

30. H. Menlove, J. Swansen, and E. Adams, "Coincidence Counting Deadtime Study," Los Alamos National Laboratory memorandum Q-1-83-461 (June 27, 1983).

31. J. E. Swansen, "Deadtime Reduction in Thermal Neutron Coincidence Counters," Los Alamos National Laboratory report LA-9936-MS (March 1984).

32. H.O. Menlove, "Description and Operation Manual for the Active Well Coincidence Counter," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7823-M (1979), p.25.

33. N. Ensslin, J. Stewart, and J. Sapir, "Self-Multiplication Correction Factors for Neutron Coincidence Counting," *Nuclear Materials Management* VIII (2), 60 (1979).

34. K. Boehnel, "The Effect of Multiplication on the Quantitative Determination of Spontaneously Fissioning Isotopes by Neutron Correlation Analysis," *Nuclear Science and Engineering,* 90, 75-82 (1985).

35. M.T. Swinhoe, "Multiplication Effects in Neutron Coincidence Counting: Uncertainties and Multiplying Reference Samples," U.K. Atomic Energy Commission report AERE-R 11678, Harwell, March 1985.

36. N. Ensslin, "A Simple Self-Multiplication Correction for In-Plant Use," Proc. 7th ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Liege, Belgium, 21-23 May 1985.

37. W. Hage and K. Caruso, "An Analysis Method for the Neutron Autocorrelator with Multiplying Samples," Joint Research Centre, Ispra, Italy, report EUR 9792 EN (1985).

38. G. Eccleston, J. Foley, M. Krick, H. Menlove, P. Goris, and A. Ramalho, "Coincidence Measurements of FFTF Breeder Fuel Subassemblies," Los Alamos National Laboratory report LA-9902-MS (1984).

39. M.S. Krick, "Neutron Multiplication Corrections for Passive Thermal Neutron Well Counters," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8460-MS (1980).

40. M.S. Krick, R. Schenkel, and K. Boehnel, in "Progress in Neutron Coincidence Counting Techniques," report of the IAEA Advisory Group Meeting, Vienna, Austria, 7-11 October 1985, IAEA Dept. of Safeguards General Report STR-206.

Глава 17

Приборы нейтронных совпадений и их применение

Х. О. Менлав
(Переводчик И. Н. Сазонов)

17.1 ОСНОВЫ ПРОЕКТИРОВАНИЯ УСТАНОВОК НЕЙТРОННЫХ СОВПАДЕНИЙ

В течение последних лет для неразрушающего анализа (НРА) ядерных материалов широкое распространение получил метод регистрации нейтронных совпадений. Привлекательность этого метода обусловлена прежде всего хорошей проникающей способностью быстрых нейтронов и уникальным соответствием связанных во времени нейтронов процессу деления ядерного материала и, таким образом, его составу.

При проектировании установок нейтронных совпадений в первую очередь необходимо обратить внимание на следующее:

- тип нейтронного детектора;
- материалы замедлителя и защиты;
- диапазон масс и другие характеристики измеряемых образцов.

В общем случае детекторы нейтронных совпадений должны обладать более высокой эффективностью регистрации по сравнению с системами регистрации полного потока нейтронов ввиду необходимости регистрировать по крайней мере два нейтрона. Это требование делает скорость счета совпадений пропорциональной квадрату эффективности детектора. Высокая эффективность обычно достигается хорошей геометрией "детектор-источник" (например, 4π-геометрия или колодезный детектор), а также использованием эффективных детекторов тепловых нейтронов.

В настоящее время большинство установок нейтронных совпадений используют газоразрядные счетчики нейтронов на основе ^{3}He ввиду их высокой эффективности, надежности, стойкости и низкой чувствительности к гамма-фону. Счетчики, наполненные BF_3, также иногда используются для уменьшения стоимости или для работы в сильных гамма-полях, однако их эффективность почти в два раза ниже, чем у ^{3}He-счетчиков. Основной недостаток применения счетчиков с наполнением ^{3}He и BF_3 в методе нейтронных совпадений состоит в том, что нейтроны должны быть предварительно замедлены путем рассеяния до тепловой энергии перед регистрацией в счетчике, что замедляет процесс, приводя к довольно большому времени жизни нейтронов τ в детекторе. Как результат, ширина ворот совпадений G в электронной схеме должна иметь достаточно большую величину (от 10 до 100 мкс), чтобы зарегистрировать совпадения связанных во време-

ни нейтронов. В итоге большая ширина ворот приводит к увеличению статистической погрешности при высоких скоростях счета.

Для оптимизации конструкции детекторов нейтронных совпадений на основе ^{3}He-счетчиков было использовано компьютерное моделирование переноса нейтронов с применением методов Монте-Карло. При проектировании должны быть принять во внимание следующие параметры:

- полная эффективность к нейтронам спонтанного деления;
- чувствительность к материалам матрицы образца;
- время жизни нейтронов в материале замедлителя детектора;
- вес и стоимость оборудования.

Установки нейтронных совпадений применяются для анализа контейнеров в широком диапазоне размеров и масс плутония, что делает необходимым уделить особое внимание различным параметрам для достижения заданных характеристик детектора. В главе 14 приведены примеры оптимизации конструкции блоков детектирования тепловых нейтронов при помощи расчетов методом Монте-Карло.

В некоторых системах регистрации нейтронных совпадений использовались детекторы отдачи быстрых нейтронов, что позволяет избежать проблемы, связанной с большим временем жизни тепловых нейтронов. Примерами таких детекторов являются жидкие и пластмассовые сцинтилляторы, а также детекторы отдачи, наполненные газом ^{4}He. К сожалению сцинтилляторы чувствительны к фону гамма-излучения, а детекторы на основе ^{4}He относительно низко эффективны. Примерами систем регистрации совпадений на основе пластмассовых сцинтилляторов являются такие установки как "Рэндом драйвер" (Random Driver), система для анализа изотопных источников ISAS (Isotopic Source Assay System), система для анализа делящихся изотопов ISAF (Isotopic Source Assay Fissile) и ранние модели сканеров топливных стержней. Все они описаны в соответствующих публикациях [1-3].

В этой главе акцент сделан на системы, регистрирующие совпадения тепловых нейтронов, ввиду их преобладания в практическом использовании. Многие из этих систем были отработаны до стадии промышленного изготовления оборудования, которое сейчас используется в условиях производства ядерных материалов. В настоящее время инспектора также используют портативное оборудование для проверки содержания ядерного материала, заявленного оператором.

В связи с широким диапазоном применений было необходимо разработать различные системы, пригодные для анализа разнообразных типов образцов. В противоположность методикам, используемым в химическом анализе, где проба "приспосабливается" к измерительному средству, в неразрушающем анализе аппаратура приспосабливается к образцу. В последующих разделах описывается аппаратура, принципы ее работы и области применения. Работа всех этих приборов основана на методе регистрации нейтронных совпадений с использованием электронных устройств временного анализа.

17.2 ПАССИВНЫЕ СИСТЕМЫ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОННЫХ СОВПАДЕНИЙ

Аппаратура для нейтронного анализа была стандартизована путем использования метода нейтронных совпадений как основы разнообразных приборов для различных областей применений. Электронная схема сдвигового регистра [4], первоначально разработанная для высокоуровневого счетчика нейтронных совпадений HLNCC (High Level Neutron Coincidence Counter) [5], затем была приспособлена как для пассивной, так и для активной аппаратуры, предназначенной для контроля плутониевых материалов в балк-форме, инвентарных образцов, таблеток, порошка, нитратов, высокообогащенного урана (ВОУ) и топливных сборок для материаловедческих реакторов (МР) и реакторов на легкой воде (ЛВР) и на основе смешанного оксидного уран-плутониевого топлива. Все это семейство аппаратуры использует стандартный блок сдвигового регистра. "Фамильное дерево" такого семейства, показанное на рис. 17.1, демонстрирует связь между стандартной электроникой (ствол), приборами контроля (ветви) и их многочисленными применениями. Во всех измерительных установках в качестве детекторов используются ^{3}He-счетчики, подобранные так, чтобы обеспечить одинаковые характеристики при одном напряжении питания. Таким образом, стандартный электронный блок может применяться в разных измерительных системах без изменения разъемов или параметров. Такая стандартизация существенно уменьшает проблемы, связанные с текущим ремонтом аппаратуры, наибольший удельный вес в котором имеет ремонт электроники. Одновременно упрощается обучение персонала, поскольку оператор, умея работать на HLNCC, может освоить работу на другом приборе из этого семейства после нескольких минут ознакомления с ним.

Перечень приборов со стандартным электронным блоком отбора нейтронных совпадений включает:

1. установку для контроля 200-литровых бочек со скрапом;
2. высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC для контроля плутониевых материалов в балк-форме;
3. специализированные блоки детектирования для контроля элементов и лотков сборок для быстрых критических стендов (БКС), топливных сборок реакторов-размножителей на быстрых нейтронах, стержней со смешанным оксидным топливом и емкостей с нитратом плутония;
4. счетчик совпадений для инвентарных образцов ISCC (Inventory Sample Coincidence Counter) для небольших образцов нитрата плутония, таблеток и порошка PuO_2;
5. установку для измерения раствора нитрата плутония непосредственно на технологической линии;
6. универсальный счетчик для сборок быстрых реакторов-размножителей (БР).

Эти и другие пассивные приборы и их применение описаны в разделах 17.2.1-17.2.8.

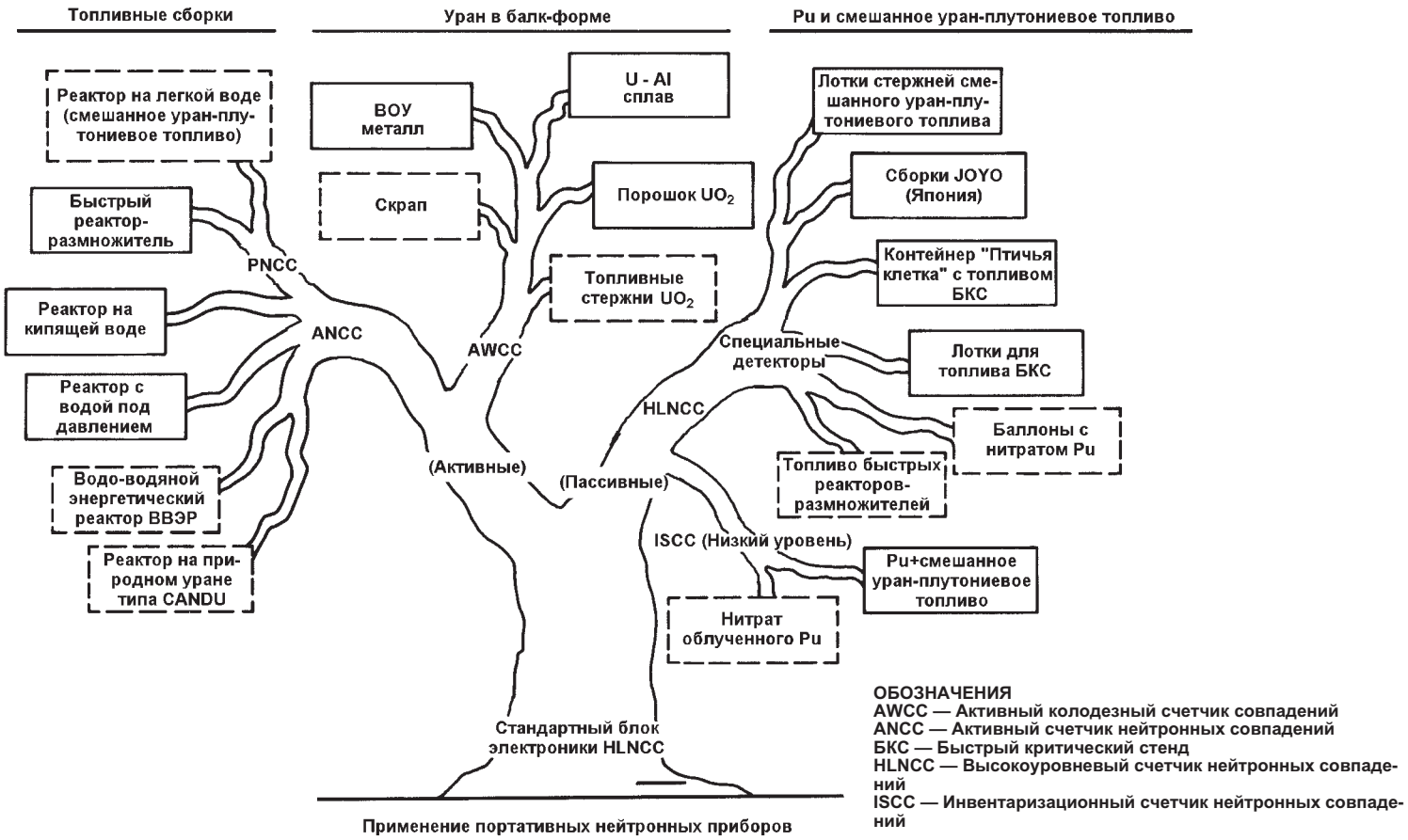

Рис. 17.1. *"Дерево" семейства активных и пассивных установок нейтронных совпадений, основанных на стандартном блоке сдвигового регистра, разработанном для счетчика HLNCC, и их применения*

17.2.1 Установка для контроля 200-литровых бочек

Первым применением метода нейтронных совпадений для измерений плутония была установка для контроля 200-литровых бочек [6]. Эта система была разработана для измерения спрессованного скрапа и отходов в 200-литровых бочках и коробках.

Материал не мог быть измерен традиционными химическими методами из-за его большой неоднородности.

Установка для контроля бочек, показанная на рис. 17.2, содержит BF_3-счетчики, помещенные в полиэтиленовый замедлитель. Блок детектирования построен на основе полиэтиленового кольца толщиной 10 см, в котором расположены 36 штук BF_3-счетчиков диаметром 5 см, причем сверху и снизу детектора имеются пластины из полиэтилена, в каждой из которых имеется по 9 штук BF_3-счетчиков. Блок детектирования разделяется на две части, что позволяет помещать внутрь 200-литровую бочку. Верхняя и боковая поверхности детектора окружены слоем водяной защиты толщиной 30 см. На рис. 17.2 показан общий вид установки для 4π-контроля бочек в открытом (раздвинутом) виде с помещенной внутрь 200-литровой бочкой.

Первоначально детектор не содержал кадмиевого экрана внутри полиэтиленового кольца. Такая конфигурация обладает максимально возможной эффективностью регистрации нейтронов и, как следствие, большим временем жизни нейтронов в детекторе (измерено 125 мкс). Эта конфигурация пригодна для работы с низкой скоростью счета нейтронов, соответствующей менее, чем нескольким граммам плутония в контейнере. Измеренная эффективность регистрации одиночных нейтронов равнялась 12 %, а измеренная эффективность регистрации нейтронных совпадений составляла 1,5 %. При введении кадмиевого экрана внутрь полиэтиленового кольца время жизни нейтронов уменьшилось со 125 до ~50 мкс и, как и ожидалось, эффективности регистрации одиночных нейтронов и нейтронных совпадений также уменьшились.

Рис. 17.2. *Пассивный счетчик нейтронных совпадений для 200-литровых бочек*

Было установлено, что нейтроны, вызванные космическим излучением, образуют значительный фон совпадений в детекторе. Для Лос-Аламоса, находящегося на высоте около 2250 м над уровнем моря, этот фон совпадений составил 0,250 ± 0,002 имп./с, что соответствовало скорости счета от образца плутония массой 0,2 г (с содержанием 20 % ^{240}Pu). Этот фон совпадений ограничивает порог чувствительности детектора на уровне около 0,25 г плутония, если не проводить измерения множественности с поправкой на космический фон. Вблизи уровня моря, где расположено большинство предприятий по производству промышленного плутония, влияние космического излучения будет почти в 2 раза ниже. Скорость счета фона может также отчасти зависеть от массы и состава отходов в контейнере. Например, когда в установку поместили 6 свинцовых кирпичей (массой 77 кг) для измерения эффекта образования нейтронов от космических лучей на материалах с высоким атомным номером Z, наблюдалась скорость счета совпадений, превышающая фон на 0,91 ± 0,02 имп./с, которая эквивалентна 0,7 г плутония (с содержанием 20 % ^{240}Pu).

Для анализа отходов, содержащих плутоний, пассивный метод нейтронных совпадений более точен, чем метод регистрации полного потока нейтронов, т.к. он нечувствителен к дополнительному нейтронному излучению, возникающему в матрице за счет (α,n)-реакций. Однако чувствительность регистрации может быть меньше в зависимости от химической формы материала и фоновой скорости счета совпадений.

17.2.2 Высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC

В 1975 г. по инициативе Лос-Аламосской национальной лаборатории была начата разработка портативного счетчика нейтронных совпадений, позволяющего измерять контейнеры, содержащие до 2500 г PuO_2. Детектор должен был иметь модульную конструкцию переменной конфигурации, легко приспосабливаемую под образцы с различной геометрией, такие как пластины или стержни. Разработка привела к созданию гексагональной модели установки, показанной на рис. 17.3. Показанный на рисунке промежуточный экран из кадмия был добавлен для снижения эффективности, времени жизни нейтронов в детекторе и чувствительности к матрице образца.

Установка HLNCC включает в себя шесть блоков счетчиков, причем каждый из них содержит по три ^{3}He-счетчика, размещенных в полиэтиленовом замедлителе. Счетчики диаметром 25 мм имеют активную длину 508 мм и наполнены газом под давлением 4 атм. Система имеет эффективность ~12 % и время жизни нейтронов 32 мкс [5].

Когда началась работа над установкой HLNCC, максимальное быстродействие электроники совпадений составляло обычно от 20 до 30 кГц. По этой причине параллельно была предпринята разработка быстродействующего портативного электронного блока сдвигового регистра. Электронный блок (рис. 17.4) содержит шесть электронных каналов, сдвиговый регистр (см. главу 16) и микропроцессор для передачи данных в программируемый калькулятор Hewlett Packard типа HP-97 или другой компьютер. Благодаря наличию интерфейса между сдвиговым регистром и программируемым калькулятором работа системы очень проста. Оператору необходимо только установить образец и нажать кнопку "ПУСК". Сбор данных, их преобразование, анализ погрешностей, градуировка и вывод результатов выполняются калькулятором.

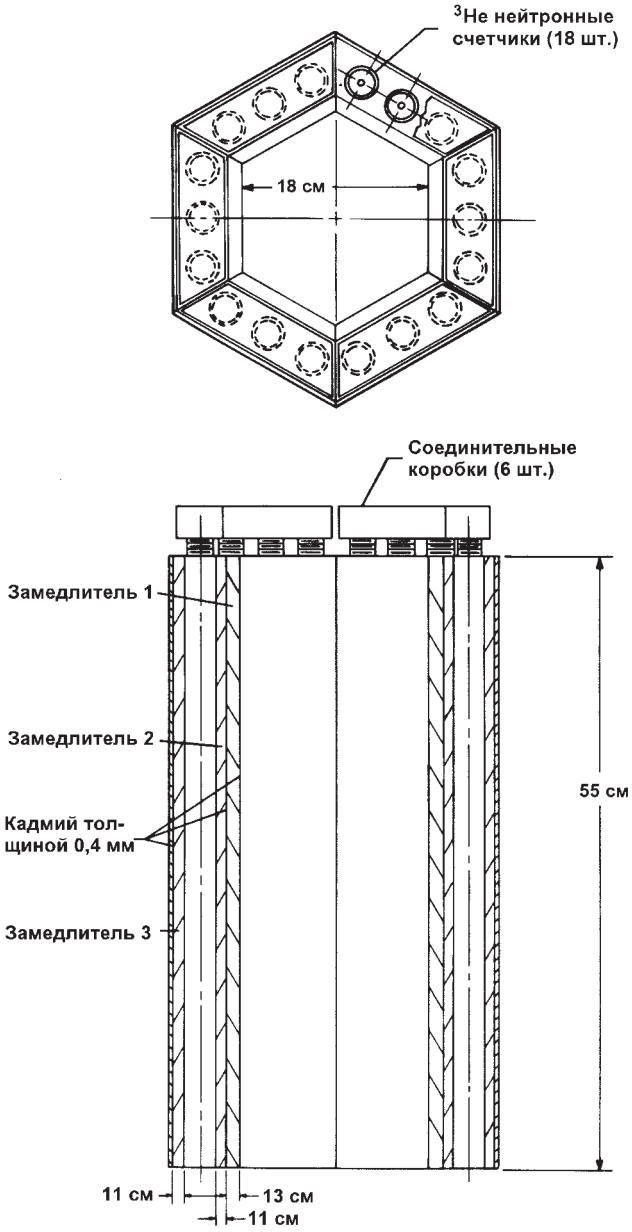

Рис. 17.3. *Портативный высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC для анализа массивных образцов плутония*

В течение последних 5 лет установка HLNCC использовалась для анализа большой номенклатуры образцов, включая контейнеры с порошком PuO_2, смешанное уран-плутониевое топливо в виде порошка, таблеток и стержней, а также топливных элементов и лотков сборок для быстрых критических стендов. Максимальная заданная масса 2,5 кг плутония была превышена почти в 2 раза, и полная скорость счета превосходила 300000 имп./с. Для такой скорости счета необходима большая поправка на мертвое время (коэффициент поправки составляет от 3 до 4 для скорости счета совпадений), а результаты могут быть использованы только на основе

Рис. 17.4. *Стандартный блок сдвигового регистра установки HLNCC и программируемый калькулятор HP-97. Это оборудование входит в комплект всех систем, указанных на рис. 17.1*

градуировочной кривой при соответствующей скорости счета. Стандартный блок детектирования установки HLNCC и его блок электроники коммерчески доступны и используются как операторами установок, так и инспекторами.

Последние усовершенствования блоков детектора и электроники установки HLNCC описываются в следующем разделе.

17.2.3 Усовершенствованный высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC-II

К настоящему времени разработан и изготовлен усовершенствованный вариант установки HLNCC. Детектор по-прежнему содержит 18 штук ^{3}He-счетчиков, но в полиэтиленовом замедлителе цилиндрической формы. В электронике установки были использованы более быстродействующие усилители и улучшена конструкция корпуса детектора. Вертикальный размер зоны равной эффективности

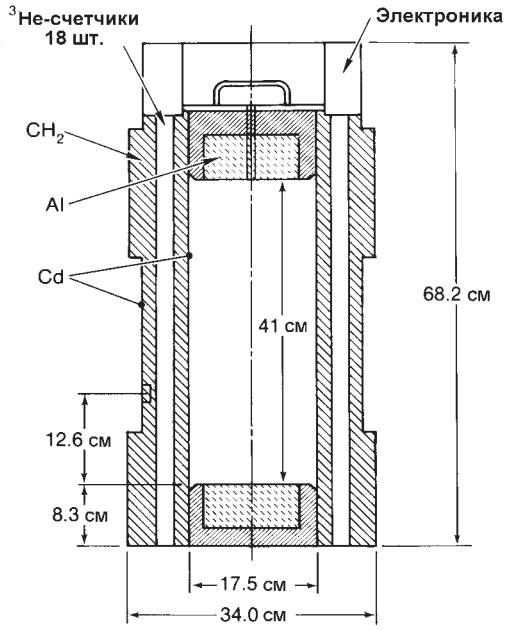

Рис. 17.5. *Продольный разрез усовершенствованной установки HLNCC-II*

Рис. 17.6. *Общий вид установки HLNCC-II. Видны 6 индикаторных лампочек на соединительной коробке наверху блока детектирования и блок сдвигового регистра на столе*

регистрации почти в три раза длиннее по сравнению с прототипом без увеличения размеров и массы. На рис. 17.5 показано сечение блока детектирования установки HLNCC-II, а на рис. 17.6 приведена фотография системы в сборе.

Первоначальная цель создания установки HLNCC-II состояла в том, чтобы получить ровную или плоскую характеристику чувствительности по высоте полости для образца при сохранении портативности установки. Это было достигнуто размещением колец из полиэтилена в виде прокладок вверху и внизу блока детектора для компенсации утечки нейтронов через торцы детектора. В дополнение к этим внешним кольцам внутренние полости торцевых пробок были сконструированы так, чтобы увеличить эффективность регистрации на концах детектора. Торцевые пробки изготовлены из полиэтилена с вкладышем из алюминия, которые дают лучшую чувствительность, чем пробки, изготовленные из какого-либо одного материала. Кроме того, полость для образца имеет кадмиевое покрытие для предотвращения возврата отраженных тепловых нейтронов назад в образец и устранения вынужденных делений. Поскольку кадмиевое покрытие не захватывает область торцевых пробок, полиэтилен этих пробок становится частью замедлителя для ^{3}He-счетчиков.

Характеристики чувствительности к полному потоку нейтронов и нейтронным совпадениям были измерены при перемещении источника ^{252}Cf вдоль оси измерительной полости для образца. Нормированные кривые чувствительности показаны на рис. 17.7, причем пунктирные кривые соответствуют первоначальной модели установки HLNCC. Улучшение чувствительности очевидно. В табл. 17.1 сравниваются некоторые ключевые параметры установки HLNCC и усовершенствованной установки HLNCC-II.

Таблица 17.1 – Сравнение параметров установок HLNCC и HLNCC-II

Параметр	HLNCC	HLNCC-II
Диаметр полости, см	17,5	17,5
Высота полости, см	35,0	41,0
Внешний диаметр, см	32–36	34,0
Масса установки, кг	48	43
^{3}He-счетчики:		
а) количество, шт.	18	18
б) активная длина, см	50,8	50,8
в) диаметр, см	2,5	2,5
г) давление газа, атм.	4	4
д) газовые добавки	Ar + CH_4	Ar + CH_4
Эффективность, %	12	17,5
Время жизни нейтронов, мкс	33	43
Кадмиевый экран	закрепленный	подвижный
Зона равной чувствительности, см		
счет совпадений (отклонение 2% от максимума)	11,0	30,5
общий счет (отклонение 1% от максимума)	10,5	33,5

Новый электронный блок регистрации, созданный параллельно с установкой HLNCC-II, базируется на гибридном зарядочувствительном предусилителе-дискриминаторе AMPTEK A-111 [7]. На выходе предусилителя импульсы от нейтронов дискриминируются на уровне амплитуды шумов и гамма-излучения. Такой подход устраняет необходимость в дополнительных цепях формирования и позволяет достигать скоростей счета в 1300 кГц, что в четыре раза выше, чем у предыдущей системы (см. раздел 16.6.5).

Новый электронный блок может измерять образцы значительно большей массы, обычно ограничиваемой только требованиями ядерной безопасности. Миниатюрный предусилитель-дискриминатор размещается в непосредственной близости от ^{3}He-счетчиков внутри герметичной коробки, что улучшает отношение сигнал/шум. Измеренная в лабораторных условиях стабильность полной скорости счета составила 0,002 % в течение двухнедельного периода. Эта наилучшая стабильность среди систем неразрушающего контроля.

Установка HLNCC-II с новой электроникой использовалась для анализа PuO_2, PuF_4, смешанного оксидного топлива и других типов плутониевых смесей. Пример отклика установки на PuO_2 как с поправкой на размножение, так и без нее приведен на рис. 17.8.

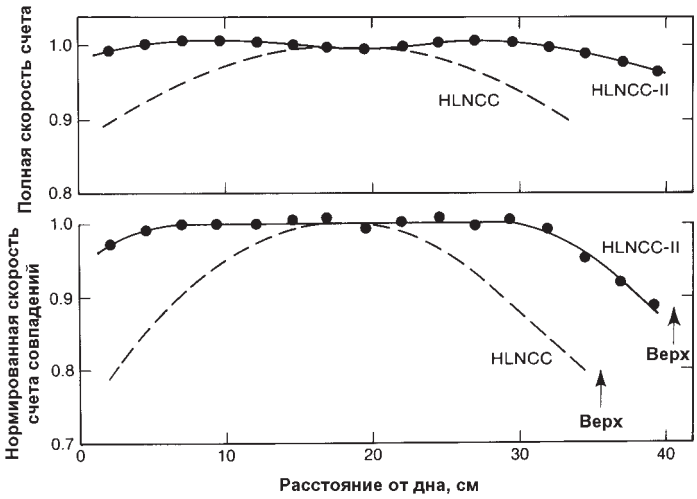

Рис. 17.7. *Нормированные кривые изменения чувствительности вдоль вертикальной оси детектора для полной скорости счета и скорости счета нейтронных совпадений установки HLNCC (пунктирная линия) и установки HLNCC-II (сплошная линия). Видно трехкратное удлинение области равномерной чувствительности установки HLNCC-II*

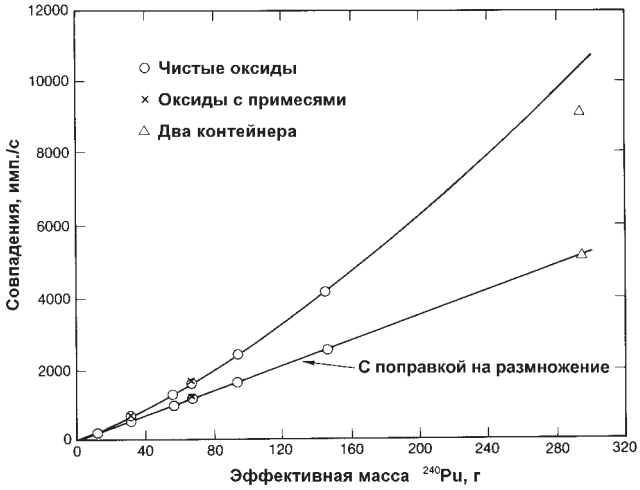

Рис. 17.8. *Отклик нейтронных совпадений для установки HLNCC-II с новой, более быстрой электроникой для образцов PuO_2 различной массы (с поправкой на саморазмножение и без нее)*

На этом рисунке наибольшая масса (около 300 г $^{240}Pu_{эфф}$) соответствует двум контейнерам с PuO_2, поставленным друг на друга. Воздушный зазор между двумя массами плутония уменьшает геометрическую связь по сравнению с одиночным контейнером с той же самой полной массой плутония. Такое уменьшение связи выражается в уменьшении эффекта размножения нейтронов и приводит к тому, что точка, соответствующая двум контейнерам, лежит ниже градуировочной кривой. Однако после введения поправки на размножение, как описано в разде-

ле 16.8, эта точка ложится на прямую линию, построенную по данным для одиночных контейнеров.

17.2.4 Специальные блоки детектирования для контроля элементов быстрых критических стендов

В большинстве случаев для потребителей желательна разработка блока детектирования в соответствии с областью его практического применения. Хотя такая специализация расширяет номенклатуру детекторов, она сокращает время анализа, затраты на градуировку, количество необходимых для этого стандартных образцов и уменьшает шанс возникновения ошибки при анализе. В этом разделе и разделах 17.2.5-17.2.8 дано описание некоторых из специализированных блоков детектирования, разработанных на основе установки HLNCC с использованием той же электроники.

В быстрых критических стендах (БКС) блочки металлического плутония обычно находятся в прямоугольных кассетах размером 5×5×40 см и желательно контролировать содержание плутония в блочках без извлечения их из лотка. Для этой цели был сконструирован канальный счетчик совпадений ССС (Channel Coincidence Counter) [8], показанный на рис. 17.9.

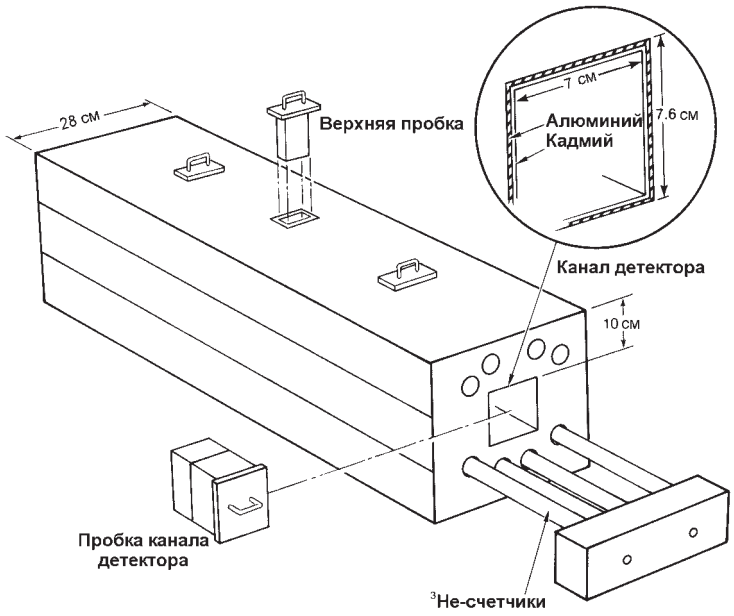

Рис. 17.9. *Изометрическая проекция канального счетчика нейтронных совпадений. Установка используется для анализа лотков с топливом для быстрых критических стендов и стержней со смешанным топливом*

Принципиальной особенностью этой установки является наличие канала размером 7×7 см, который проходит насквозь по всей длине (97 см) детектора. Этот канал имеет достаточный размер для размещения топливных кассет и лотков стержней БКС, но вполне мал, чтобы обеспечить высокую и приемлемо однородную эффективность по нейтронным совпадениям. Система имеет три верхние

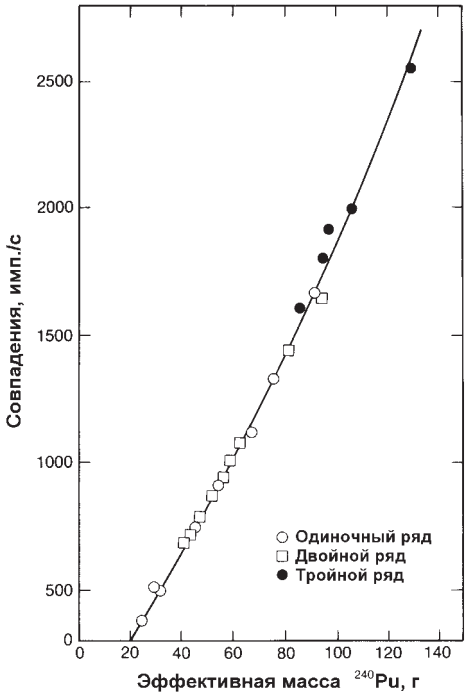

Рис. 17.10. *Градуировочный график для одного, двух и трех рядов плутониевых топливных пластин в кассете для быстрого критического стенда*

пробки, каждая из которых может быть вынута при необходимости измерений гамма-излучения исследуемого образца. Центральная верхняя пробка, кроме того, используется как держатель источника при градуировке детектора.

На рис. 17.10 приведена градуировочная кривая для кассет с пластинами плутония. Данные, использованные для построения этой кривой, были получены с пластинами для плутониевого реактора нулевой мощности ZPPR (Zero-Power Plutonium Reactor) уложенными в один, два и три ряда вместе с матрицей из железа, алюминия, углерода и обедненного урана. При увеличении массы плутония возрастает эффект размножения нейтронов, что приводит к дополнительному увеличению отклика установки. В частности, данные, полученные для трех рядов пластин плутония, показывают увеличение размножения по сравнению с одним или двумя рядами. Стандартная методика поправок на саморазмножение (см. раздел 16.8) может устранить эту разницу. Погрешность при измерении кассет БКС оказалась лучше 1 % при времени измерения 1000 с. Этот счетчик используется для обычных измерений на установке БКС [9].

Счетчик типа "Птичья клетка" был спроектирован для анализа таких же металлических блочков плутония, но было необходимо проводить измерения внутри "птичьей клетки", используемой для хранения и перемещения блочков. Блок детектирования содержит ^{3}He-счетчики, находящиеся внутри полиэтиленового замедлителя, и имеет прямоугольную форму с открывающейся внутренней полостью для размещения цилиндрического контейнера для хранения материала. Отклик нейтронных совпадений демонстрирует увеличение размножения нейтронов при возрастании загружаемой массы ядерного материала. При времени измерения 1000 с были получены точность и сходимость ~1 %. Этот счетчик используется для обычных измерений на установках БКС.

17.2.5 Специальные блоки детектирования для контроля топлива реакторов на быстрых нейтронах

Специальный счетчик нейтронных совпадений был сконструирован для контроля топливных стержней в лотках [10]. Этот счетчик для лотков, показанный на рис. 17.11, содержит плоскую сборку ^{3}He-счетчиков на полиэтиленовой плите. Через паз в блоке детектирования обеспечивается доступ к его рабочему объему для размещения в нем лотка из нержавеющей стали, используемого оператором установки для укладки топливных стержней партиями по 24 штуки. Лоток может быть загружен через переднюю часть счетчика и удален через его переднюю или заднюю часть, как желательно оператору. В отличие от более предпочтительной цилиндрической и гексагональной геометрии этот счетчик для лотков имеет плоскую форму, поэтому для достижения однородной пространственной чувствительности необходимо индивидуально подбирать группы счетчиков. Область однородной чувствительности составляет ~55 см в длину и 30 см в ширину, что соответствует активной плутониевой зоне топливного стержня. При измерениях лоток должен быть приподнят на высоту около 25 мм.

Установка может быть использована при измерениях лотка со стержнями для реактора на быстрых нейтронах за 2-3 мин с чувствительностью гораздо выше, чем при измерении одного стержня. Основным преимуществом данной установки является то, что контроль полного лотка со стержнями возможен без его перезагрузки или перемещения отдельных стержней. Этот счетчик для лотков с топливными стержнями реактора на быстрых нейтронах в настоящее время используется на заводе по производству плутониевого топлива.

Сборки для реакторов на быстрых нейтронах содержат большое количество плутония (от 5 до 16 кг), и контроль этого материала имеет важное значение для целей обеспечения гарантий ядерных материалов. На рис. 17.12 приведена фото-

Рис. 17.11. *Счетчик для контроля топливных стержней, используемый при проверке лотков со стержнями для реактора-размножителя на быстрых нейтронах. Блок сдвигового регистра и соединительная коробка с предусилителем находятся на верху детектора*

Рис. 17.12. *Цилиндрический счетчик нейтронных совпадений для контроля кассет топливных стержней реактора-размножителя на быстрых нейтронах*

графия цилиндрического счетчика совпадений, используемого для измерения топливных сборок для быстрых реакторов-размножителей, блок детектирования которого содержит 12 штук ^{3}He-счетчиков, размещенных в полиэтиленовом кольце для замедления нейтронов. Активная длина детектора составляет 1,21 м, так что весь участок топливной сборки, содержащий плутоний, размещается внутри счетчика. Полная эффективность счетчика составляет ~7 %. Первоначальная его конструкция обладала областью равномерной эффективности длиной около 60 см, которая была достаточна для прототипов сборок быстрых реакторов-размножителей, имевших меньшие размеры.

Некоторые быстрые реакторы имеют плутониевую активную зону длиной 92 см и используют сборки с массой плутония до 15 кг. Такая загрузка (15 кг плутония) почти в три раза превосходит массу, которая может быть удовлетворительно измерена с помощью традиционного блока электроники, разработанного для счетчика HLNCC. Необходимость измерять сборки полностью с большими загрузками привела к созданию универсального счетчика совпадений для сборок быстрых реакторов-размножителей UFBR (Universal Fast-Breeder-Reactor Counter) [11]. В этом счетчике впервые нашла практическое применение новая быстрая электронная схема регистрации AMPTEK [7].

На рис. 17.13 показан блок детектирования счетчика UFBR с аналоговой секцией электроники, размещенной в верхней части цилиндрического детектора. Длина детектора достаточна для размещения внутри него активной плутониевой зоны сборки. Для получения постоянной чувствительности вдоль активной зоны сборки (92 см) каждый из 12 штук ^{3}He-счетчиков окружен слоем полиэтилена и

Рис. 17.13. *Универсальный счетчик нейтронных совпадений UFBR для проверки кассет топливных стержней реактора-размножителя на быстрых нейтронах. В счетчике использована новая схема AMPTEK*

кадмием. Для увеличения эффективности и компенсации утечки нейтронов через торцы блока детектирования на концах детектора кадмий отсутствует. На рис. 17.14 показаны нормализованные полный отклик и отклик совпадений, измеренные вдоль оси детектора с помощью источника ^{252}Cf.

В блоке детектирования UFBR использованы ^{3}He-счетчики диаметром 2,54 см с активной длиной 122 см и давлением газа 4 атм. Эффективность системы равна 7,2 %, время жизни нейтронов составляет 21,6 мкс. Эти параметры позволяют получить сходимость измерений 0,5 % (1σ) за 1000 с для типичных сборок быстрых реакторов. Две из этих установок проходят испытания и доработку для дальнейшего использования при контроле сборок быстрых реакторов. Первоначальное тестирование и градуировка системы были проведены с использованием сборок испытательного реактора на быстрых нейтронах (Fast Flux Test Facility) в компании Washington Hanford Company в Ричланде, штат Вашингтон.

17.2.6 Счетчик совпадений для инвентарных измерений ISCC

Анализ инспекторами инвентарных образцов плутония значительно затруднен правилами транспортировки ядерных материалов. Для преодоления этих проблем и получения своевременных результатов, необходимы независимые измерения на местах, в том числе на заводах по переработке ядерного топлива и изготовлению плутония. Эта необходимость привела к разработке счетчика совпадений для инвентарных измерений ISCC (Inventory Sample Coincidence Counter) [12] для количественного контроля плутония в инвентарных образцах продук-

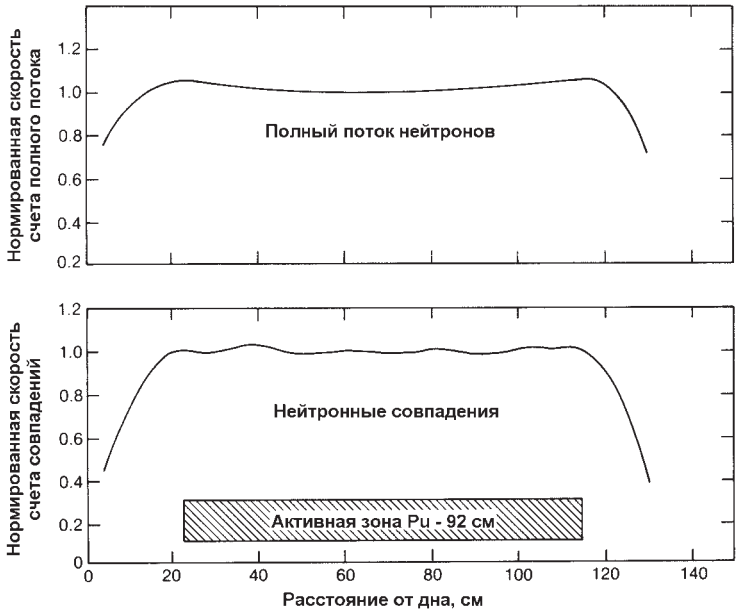

Рис. 17.14. *Графики нормированной чувствительности к полному потоку нейтронов и нейтронным совпадениям вдоль оси счетчика UFBR*

ции. Эта система портативна, и образцы могут анализироваться в ампулах, обычно используемых для передачи образцов в аналитическую лабораторию. Также могут быть проанализированы таблетки и порошки. Эта установка использует ту же самую электронику, что и стандартная установка HLNCC, но обладает повышенной эффективностью и рассчитана на меньший диапазон масс плутония (от 0,1 до 500 г).

На рис. 17.15 показан блок детектирования установки ISCC. Полость детектора приспособлена для образцов, которые помещаются в держателе диаметром 5 и высотой 14 см. Диаметр полости для образца можно увеличить до 8,8 см, вынув цилиндрический полиэтиленовый вкладыш. Замедлитель из полиэтилена высокой плотности и расположение нейтронных счетчиков были выбраны таким образом, чтобы сделать установку относительно нечувствительной к водородосодержащим материалам, входящим в матрицу образца. Эффективность установки ISCC составляет 35 %, что почти в 3 раза выше, чем у установки HLNCC, и поэтому требуемое время измерения небольших проб составляет около одной девятой времени, требуемого для установки HLNCC.

Так как установка ISCC принципиально предназначена для работы с маленькими образцами, эффекты ослабления и размножения нейтронов невелики и градуировочная характеристика очень близка к прямой, описываемой формулой $m = a R$, где m — эффективная масса изотопа ^{240}Pu, R — скорость счета нейтронных совпадений, a — градуировочная постоянная. Для образцов в виде растворов, таких как нитрат плутония, наблюдается некоторое количество актов деления за счет саморазмножения. В этих случаях градуировочная кривая аппроксимируется степенной функцией $m = a R^b$, где коэффициент b близок к единице.

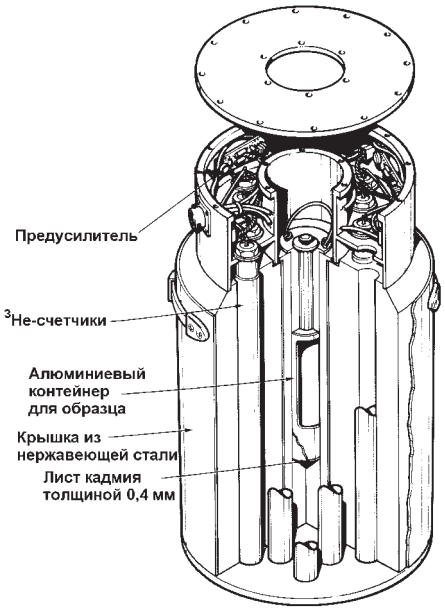

Рис. 17.15. *Изометрическая проекция счетчика нейтронных совпадений ISCC для инвентаризационных измерений*

Установка ISCC может измерять отдельные таблетки смешанного топлива или группы из нескольких таких таблеток. На рис. 17.16 показана статистическая погрешность 1σ как функция времени измерения. Для образца, содержащего четыре типовые таблетки обычного смешанного топлива или топлива для быстрого реактора, величина погрешности составляет ~1 % за время измерения 200 с. Для построения градуировочной кривой был использован набор стандартных образ-

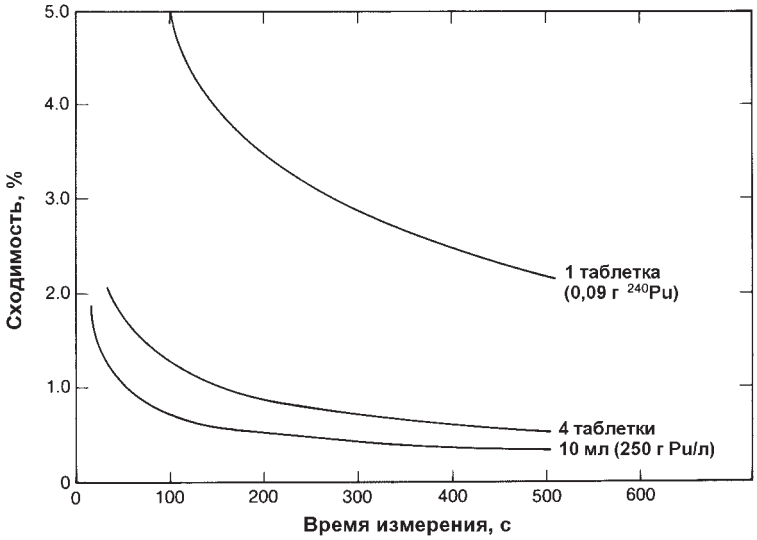

Рис. 17.16. *Зависимость сходимости результатов анализа на установке ISCC от времени измерения для типичных образцов смешанного топлива*

цов из таблеток смешанного топлива. На рис. 17.17 показана функция отклика для отдельных таблеток. Содержание плутония в этих таблетках (отношение $Pu/[PuO_2 + UO_2]$) лежит в диапазоне от 1,4 до 21,6 %. Прямая линия дает великолепное приближение к результатам. Ввиду небольшого количества делящегося материала в этих образцах форма или плотность практически не влияют на результаты измерений. Данные для образцов из порошка PuO_2 также хорошо ложатся на ту же самую градуировочную кривую, как и для таблеток.

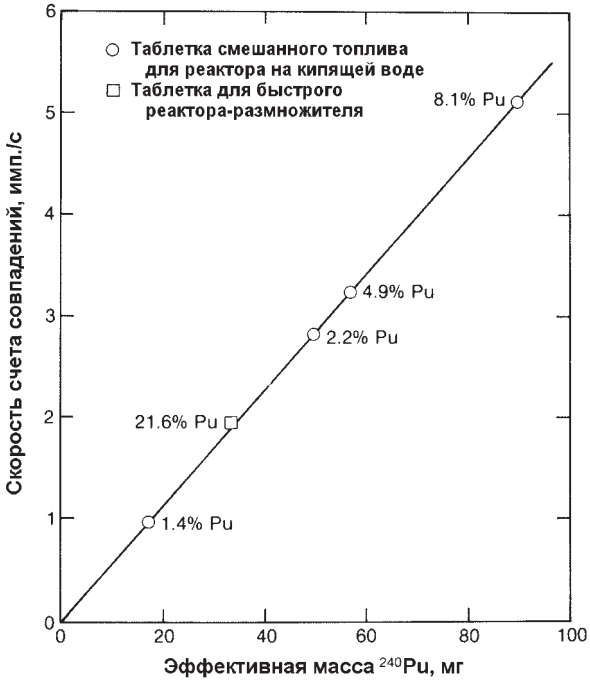

Рис. 17.17. *Отклик совпадений установки ISCC для таблеток смешанного топлива*

Для градуировки установки ISCC был изготовлен набор стандартных образцов раствора нитрата плутония. Объем раствора составлял от 3 до 9 мл и концентрация изменялась от 150 до 300 г/л. Для данного диапазона результаты анализа не зависят от объема, но растворы с большей массой плутония дают несколько больший (~5 %) отклик на грамм из-за саморазмножения нейтронов.

Ввиду того, что градуировочные кривые почти линейны, снижаются требования к физическим стандартам. Для привязки электроники к предварительно измеренной градуировочной кривой может быть использован градуировочный источник на основе ^{252}Cf. Другой подход состоит в использовании стандартных образцов предприятия. Например, могут быть взяты две топливные таблетки из материала, предъявленного для инвентаризации, и тщательно измерены на установке ISCC. Затем одна из них подвергается разрушающему химическому анализу, а другая, запаянная в оболочку, используется в качестве долговременного стандартного образца. Эта процедура по сути дела то же самое, что и использование ^{252}Cf градуировочного источника, но источник ^{252}Cf требует меньше времени для проведения обычных градуировочных измерений, с ним легко работать вручную и транспортировать ввиду его низкой активности (~4 мкКи), что в 10^6 раз меньше, чем активность плутониевого стандартного образца.

17.2.7 Установки для контроля растворов нитрата плутония

В принципе, спонтанное деление четных изотопов может быть зарегистрировано как в растворах, так и в металлах или оксидах. Равномерность плотности, распределения и матрицы материала раствора фактически могут дать очень точные и воспроизводимые результаты анализа. На практике, однако, замедление и поглощение нейтронов в растворе приводят к смещению результатов измерений. В этом разделе описаны две установки нейтронных совпадений, разработанные специально для анализа образцов с объемом от 1 л и более, в которых могут наблюдаться такие эффекты.

Счетчик нейтронных совпадений для растворов SNCC (Solution Neutron Coincidence Counter) [13] был разработан для контроля протекающих растворов, которые либо слишком объемны, либо содержат слишком много продуктов деления, чтобы использовать обычный анализ по гамма-излучению. На рис. 17.18 показана установка SNCC с внутренней измерительной камерой объемом 1 л, а также внешнее и внутреннее расположение счетчиков. ^{3}He-счетчики (26 штук) плотно располагаются двумя кольцами вокруг измерительной камеры для достижения высокой эффективности регистрации. Активная длина счетчика, равная 50 см, ограничивает чувствительный объем для измерения емкости с раствором. Используется частичное экранирование детектора кадмием для получения почти плоской кривой эффективности регистрации вдоль оси счетчика. Для обеспече-

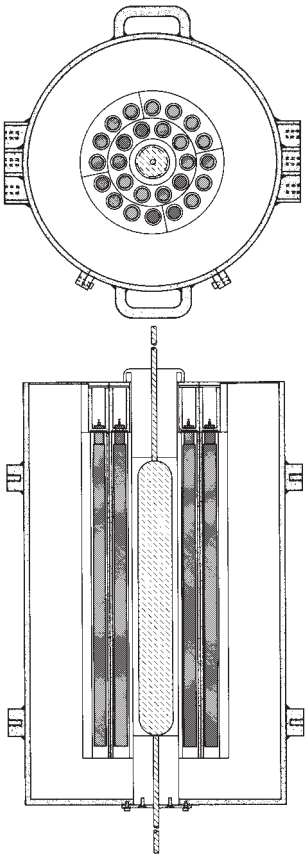

Рис. 17.18. *Поперечный и продольный разрезы установки нейтронных совпадений SNCC для растворов. Установка имеет внешнее и внутреннее кольца ^{3}He-счетчиков и измерительную камеру объемом 1 л*

ния оптимальной чувствительности к плутониевым растворам используется слой дополнительного полиэтилена толщиной только 1,1 см между раствором и первым кольцом ^{3}He-счетчиков, так как сам раствор может быть представлен как замедлитель толщиной ~2,6 см. При данной толщине полная эффективность прибора составляет 33 %, а время жизни нейтронов равно 38 мкс. Установка SNCC имеет диаметр 48 и длину 82 см, включая полиэтиленовую защиту толщиной 10 см и стальной корпус толщиной 1 см.

Счетчик SNCC был установлен на верху экспериментального вытяжного бокса установки по производству плутония в Лос-Аламосе. Емкости с раствором поступали в бокс с помощью заводского конвейера. Затем раствор подавался внутрь детектора с помощью пневмопочты, выполненной в виде двойных труб из нержавеющей стали. Нейтронный счетчик мог устанавливаться и сниматься без демонтажа трубопровода, перекачивающего раствор. Таким образом, счетчик SNCC мог быть установлен вокруг существующей трубы без врезки в магистраль.

С помощью установки SNCC анализировались растворы нитрата плутония в диапазоне концентраций от 2 до 100 г/л (от 0,2 до 12 г ^{240}Pu/л). Каждый раствор измерялся повторно для контроля стабильности и воспроизводимости результатов измерений. Результаты этих измерений сравнивались с результатами, полученными при химическом анализе на основе кулонометрического титрования или масс-спектрометрического анализа на основе изотопного разбавления. Данные, приведенные на рис. 17.19, показывают отклонение вверх относительно прямой, что объясняется эффектом саморазмножения в растворе. После введения поправки на этот эффект и подгонки к прямой линии, результаты неразрушающего анализа имели разброс 1,6 % относительно результатов, полученных с помощью химического анализа.

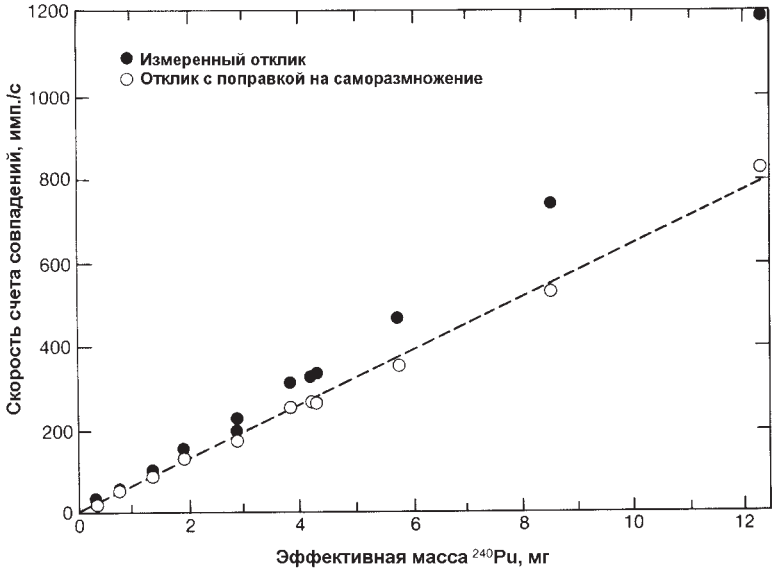

Рис. 17.19. *Результаты анализа раствора нитрата плутония на установке SNCC. Зависимость скорости счета нейтронных совпадений от ^{240}Pu с поправкой на саморазмножение и без нее*

Счетчик для баллонов с нитратом плутония PLBC (Plutonium Nitrate Bottle Counter) [14] был сконструирован для анализа растворов плутония в больших емкостях (10 см в диаметре и 105 см высотой). Детектор этой установки по размерам и форме подобен детектору установки для контроля сборок быстрых реакторов, который показан на рис. 17.12. Установка предназначена для использования на заводах по переработке топлива или конверсии нитратов в оксиды, где используются такие большие емкости. Первоначальные результаты анализа трех таких цилиндров приведены на рис. 17.20. Средний образец (концентрация около 100 г/л) имеет большее умножение, чем образец с наибольшей концентрацией (около 200 г/л). При концентрации свыше 100 г/л уменьшение содержания водорода приводит к снижению эффекта размножения.

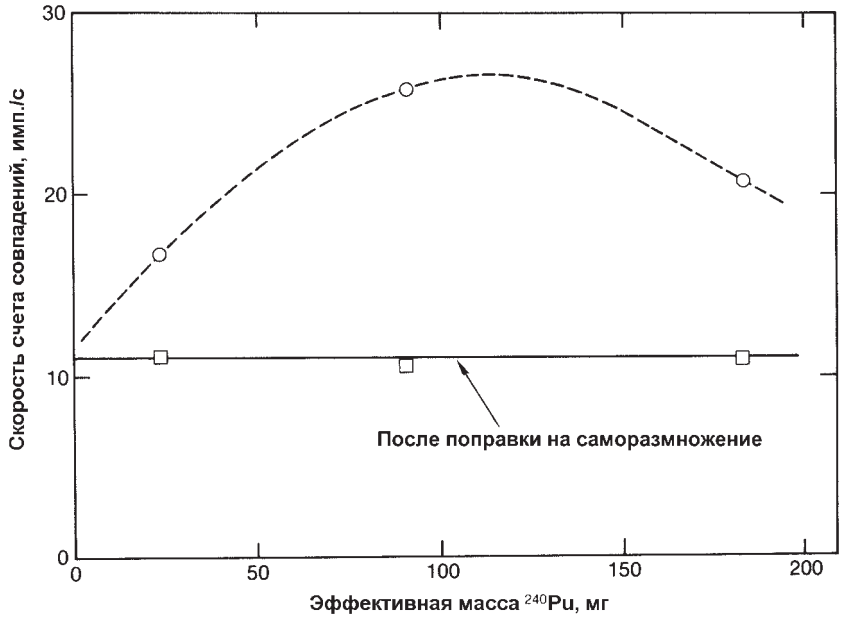

Рис. 17.20. *Результаты анализа больших емкостей с раствором нитрата плутония на установке PLBC. Зависимость скорости счета совпадений, нормированной на полную массу материала, от массы ^{240}Pu с поправкой на саморазмножение и без нее*

17.2.8 Двухдиапазонный счетчик совпадений DRCC

В многочисленных областях применения установок нейтронных совпадений желательно охватить диапазон масс PuO_2 от долей грамма до нескольких килограмм. Для достижения такого широкого диапазона была разработана и изготовлена установка типа DRCC [15]. Возможность измерения в двух диапазонах масс была достигнута путем использования двух выдвижных кадмиевых экранов вокруг ^{3}He-счетчиков. Эти экраны вставляются в детектор для проведения измерений с низкой эффективностью при малом времени жизни нейтронов и вынимаются из него для измерений с высокой эффективностью при большом времени жизни нейтронов в детекторе.

Геометрия такого детектора представлена на рис. 17.21. Передвижные кадмиевые экраны располагаются с двух сторон среднего полиэтиленового цилиндра

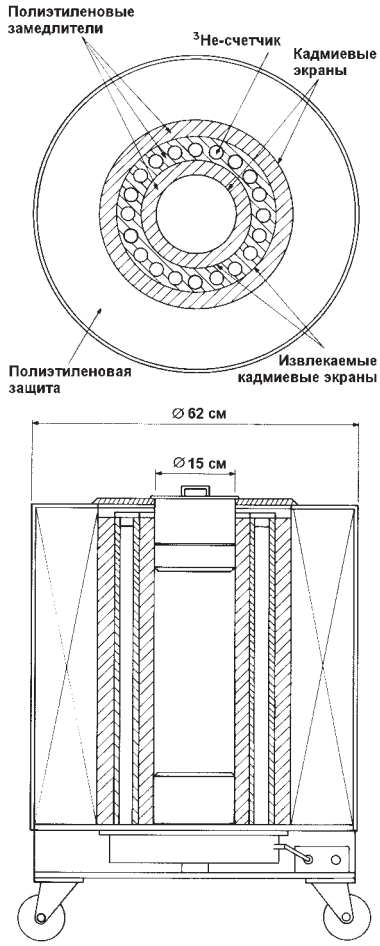

Рис. 17.21. *Двухдиапазонная установка нейтронных совпадений DRCC для анализа плутониевых образцов в области масс от 1 до 400 г*

(замедлителя). Детектор содержит 20 штук ^{3}He-счетчиков диаметром 2,54 см с давлением 4 атм. Внутренний и внешний полиэтиленовые цилиндры (замедлители) имеют по 3 см толщины каждый. Кадмиевый экран (толщиной 1,0 мм) внутри колодца детектора предназначен для поглощения тепловых нейтронов, возвращающихся назад из замедлителя в рабочую полость. Это сделано для снижения размножения нейтронов при загрузке в детектор большой массы ядерного материала. Внешний кадмиевый экран повышает эффективность наружной полиэтиленовой защиты толщиной 10 см.

Установка может работать в двух режимах:

1. измерение малых количеств плутония с двумя выдвинутыми кадмиевыми экранами для получения максимальной эффективности;

2. измерение больших масс, когда все экраны установлены на место, что приводит к малому времени жизни нейтронов и, следовательно, к использованию коротких ворот в электронном блоке совпадений.

В первом режиме эффективность регистрации одиночных нейтронов равна 22 % и время жизни составляет 52 мкс. Для второго режима эффективность снижается до 7 %, а время жизни — до 16 мкс.

Производственные испытания этой установки были проведены на разделительной площадке завода в Саванна-Ривер [16]. С помощью счетчика анализировались различные образцы поступающего металлического плутония и отправляемых оксидов. В течение испытательного периода длительностью 18 месяцев двухдиапазонный счетчик показал хорошую надежность и стабильность. Для больших образцов из металла и оксидов погрешность анализа (1σ) с учетом статистики отсчетов и воспроизводимости была меньше 1 %. Для чистых металлических образцов, с поправкой на саморазмножение, погрешность анализа составила 2 % (1σ). Для всех типов оксидов использовалась погрешность анализа двуокиси плутония 3 % (1σ) по индивидуальным градуировочным кривым, без поправки на саморазмножение. Для металла, содержащего примеси, погрешность анализа составила порядка 10 % (1σ). Для ограниченного набора образцов скрапа погрешность анализа колебалась от 5 до 15 % (1σ).

Двухдиапазонный счетчик, изготовленный Национальной ядерной корпорацией, используется на заводе в Хэнфорде (Rockwell Hanford Facility), штата Вашингтон для быстрого контроля упаковок, содержащих плутоний, перед их отправкой и после получения. В работе [17] сообщается об измерении около тысячи разных упаковок. Средний разброс (на один образец) между паспортными данными и результатами анализа (см. рис. 17.22) для металлического плутония составил 4 % (1σ). Для оксида плутония эта величина составила 5 % (1σ), для брусков из полистирола со смесью урана и плутония — 3 %(1σ), для скрапа топливных стержней — 27 % (1σ) и для смешанных отходов — 70 % (1σ). Рассматривая в целом каждую группу материалов, можно сказать, что расхождение между паспортным значением массы и ее оценкой составляет около 1 % для металла, оксида, брусков из полистирола и 10 % — для другого скрапа.

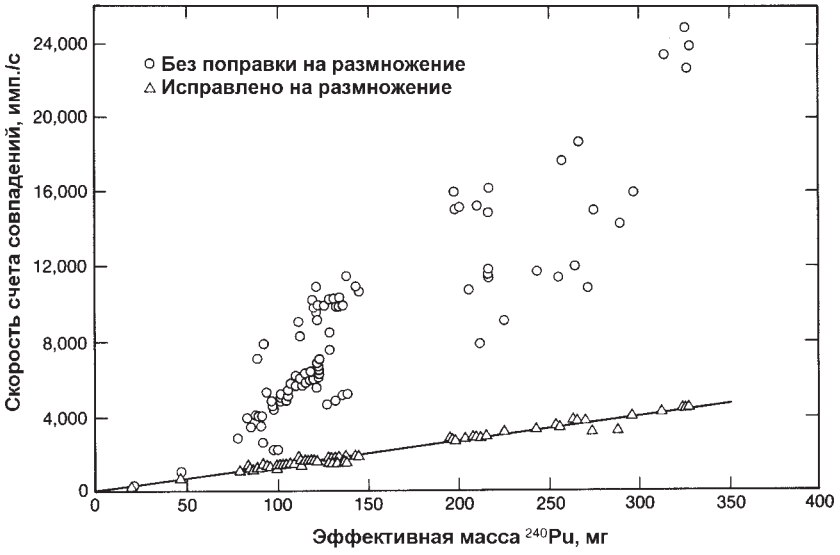

Рис. 17.22. *Результаты анализа металлического плутония двухдиапазонной установкой нейтронных совпадений DRCC на заводе в Хэнфорде [17]. Исправленные на размножение результаты имеют разброс около 4 % (1σ) по сравнению с результатами калориметрии и масс-спектрометрии*

Производственный опыт использования двухдиапазонного счетчика показал, что метод нейтронных совпадений обеспечивает точность анализа от 2 до 4 % для хорошо охарактеризованных плутониевых образцов в виде металла и оксида. Для гетерогенных оксидов и металлов с примесями метод нейтронных совпадений не имеет явного преимущества по сравнению с методом регистрации полного потока нейтронов. Это объясняется тем, что поправка на саморазмножение применима только для чистых металлических и хорошо охарактеризованных оксидных образцов, когда геометрические эффекты превосходят эффекты размножения, вызванные нейтронами (α,n)-реакций. В других больших размножающих образцах регистрация полного потока нейтронов часто обеспечивает более точный анализ ввиду его меньшей чувствительности к размножению. С другой стороны, метод нейтронных совпадений более точен для скрапа с низким размножением, когда бывает необходимо отсекать нейтроны сильных (α,n)-реакций или высокого фона в помещении. В общем случае, для всего многообразия материалов необходимо использовать как метод совпадений, так и метод регистрации полного потока нейтронов.

17.3 АКТИВНЫЕ СИСТЕМЫ ДЛЯ РЕГИСТРАЦИИ НЕЙТРОННЫХ СОВПАДЕНИЙ

Пассивная установка совпадений HLNCC и многие специализированные блоки детектирования, созданные на ее основе, применимы для пассивного анализа плутония. Однако это оборудование не может быть использовано для пассивного анализа большинства урановых образцов из-за предельно низкого уровня выхода нейтронов спонтанного деления. Для анализа урана были разработаны активные счетчики нейтронных совпадений, использующие те же самые портативные или транспортабельные блоки электроники, а также небольшие AmLi-источники нейтронов для облучения ^{235}U или ^{233}U. Активные счетчики нейтронных совпадений могут также работать в пассивном режиме при извлеченном источнике подсветки. Описание этих счетчиков представлено в данной главе, поскольку они схожи с пассивными счетчиками. Рассмотрены следующие приборы:

1. активный колодезный счетчик нейтронных совпадений AWCC (Active Well Coincidence Counter);

2. воротниковый счетчик нейтронных совпадений для урана UNCC (Uranium Neutron Coincidence Counter);

3. пассивный воротниковый счетчик нейтронных совпадений для плутония PNCC (Passive Neutron Coincidence Counter);

4. монитор для входного контроля баллонов с UF_6 RAM (Receipts Assay Monitor).

17.3.1 Активный колодезный счетчик нейтронных совпадений AWCC

На рис. 17.23 показана конструкция установки AWCC [18]. Она очень похожа на пассивную установку, за исключением наличия двух небольших (~5×10^4 нейтр./с) AmLi-источников, размещенных сверху и снизу измерительной полости. Два кольца ^{3}He-счетчиков дают высокую эффективность регистрации

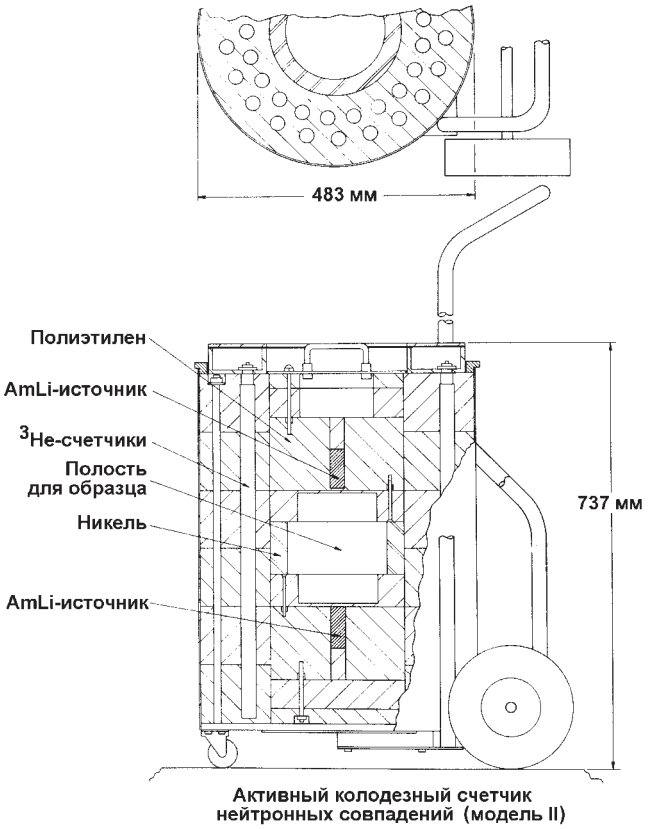

Рис. 17.23. *Чертеж активного колодезного счетчика нейтронных совпадений AWCC. Показано расположение ^{3}He-счетчиков, замедлителя и полости для образца, экранированной кадмием*

нейтронных совпадений, вызванных вынужденным делением. Сами AmLi-источники не производят совпадающих нейтронов, но зато образуют много случайных совпадений, что является главным источником погрешностей при анализе (см. раздел 16.7.2). Полиэтиленовый замедлитель и кадмиевые экраны сконструированы таким образом, чтобы обеспечить максимальную эффективность регистрации вынужденных делений и минимальную эффективность регистрации нейтронов (α,n)-реакции из AmLi-источников подсветки.

Никелевый отражатель в измерительной полости детектора обеспечивает более проникающее нейтронное облучение и слегка улучшенную статистическую точность, по сравнению с той, которая могла бы быть достигнута без него. При наличии этого отражателя максимальный диаметр образца составляет 17 см. Для образцов большого диаметра никелевый отражатель может быть удален, при этом измерительная полость имеет диаметр 22 см. Концевые пробки имеют полиэтиленовые диски, выполняющие роль прокладок, причем эти диски могут быть удалены для увеличения высоты рабочей полости. Убирая диски с верхней и нижней пробок, можно получить высоту рабочей полости, равную 35 см.

Кадмиевый экран с внешней стороны детектора уменьшает влияние фона низкоэнергетических нейтронов в помещении. Кадмиевый экран внутри колодца детектора поглощает тепловые нейтроны из нейтронного потока подсветки и улучшает экранирование между ^{3}He-счетчиками и AmLi-источником. При установленном на место кадмиевом экране режим работы AWCC называется "быст-

рым". В этом случае нейтронный спектр имеет относительно высокую энергию и установка хорошо подходит для анализа больших количеств ^{235}U. Конфигурация установки при удаленных кадмиевых экранах называется "тепловой". В этом случае спектр облучающих нейтронов имеет сравнительно низкую энергию, а чувствительность установки значительно повышается, но при этом проникающая способность таких нейтронов крайне низка. В данной конфигурации установка применяется для анализа небольших или низкообогащенных урановых образцов.

В табл. 17.2 представлены эксплуатационные характеристики установки AWCC как в быстром, так и в тепловом режимах работы. Абсолютная точность анализа практически не зависит от величин анализируемых масс (см. раздел 16.7.2). В общем, установка AWCC лучше всего подходит для анализа массивных образцов из высокообогащенного урана и ее не следует использовать для образцов с низким обогащением по ^{235}U, исключая анализ в тепловом режиме образцов с хорошо известными свойствами. Установка AWCC может также быть использована в пассивном режиме для контроля плутония, при этом Am-Li-источники должны быть удалены.

Таблица 17.2 – Основные характеристики установки AWCC

Характеристика	Тепловой режим	Быстрый режим
Эффективность регистрации, %		28
Время жизни нейтронов, мкс		50
Диапазон масс ^{235}U, г	0 — 100	100 — 20000
Чувствительность к низкообогащенному U_3O_8, имп./с·г ^{235}U	11	0,18
Чувствительность к высокообогащенному металлу, имп./с·г ^{235}U	-	0,08
Абсолютная погрешность для больших образцов при времени измерения 1000 с, г ^{235}U	0,3	18
Порог чувствительности * для небольших образцов при времени измерения 1000 с, г ^{235}U	1	24

* Определяется как чистый сигнал совпадений, равный 3σ от скорости счета внешнего фона при времени измерения 1000 с.

По сравнению с обычной установкой, регистрирующей быстрые нейтронные совпадения, например, типа “Рэндом драйвер” [1], счетчик AWCC более портативен, легок, стабилен и менее подвержен влиянию внешнего гамма-фона. Последняя особенность делает его применимым для контроля материалов уран-ториевого топливного цикла, которые обладают очень высоким уровнем гамма-излучения из-за продуктов распада изотопа ^{232}U. Установка “Рэндом драйвер” имеет преимущество в том, что нейтроны подсветки в ней имеют большую среднюю энергию и потому обладают большей проникающей способностью [19]. Эта уста-

новка имеет в тысячу раз меньшую ширину ворот совпадений, делая возможным использование источника подсветки с большей интенсивностью для улучшения чувствительности.

Установка AWCC обеспечивает решение нескольких измерительных задач, представляющих интерес для инспекторов. Список измеряемых материалов включает:

1. высокообогащенный уран (93 % ^{235}U) в металлических блоках весом от 1 до 4 кг, который является исходным материалом для производства топлива;

2. контейнеры с уран-алюминиевыми отходами производства топливных элементов;

3. контейнеры с порошком оксида урана;

4. смесь оксида урана и графита;

5. уран-алюминиевые слитки и топливные стержни;

6. топливные элементы для материаловедческих реакторов.

Типичные градуировочные кривые для случаев 1, 3 и 4 приведены на рис. 17.24 и 17.25. На всех кривых заметны эффекты самопоглощения нейтронов в уране, а противоположный эффект размножения нейтронов в металле виден на рис. 17.24.

Недавние производственные испытания установки с топливными элементами материаловедческого реактора [20] показали, что можно получить сходимость результатов анализа на уровне ~1 % при времени измерения 400 с. Преимущество установки AWCC перед традиционной методикой, основанной на регистрации гамма-излучения этих материалов для анализа топливных элементов материаловедческого реактора, состоит в том, что эта установка не имеет проблем, связанных с геометрией измерений и низким содержанием ^{235}U. Для контроля анализа топливных элементов и пластин для материаловедческого реактора установка AWCC видоизменяется, как показано на рис. 17.26 [21]. Два AmLi-источника устанавливаются внутри полиэтиленового вкладыша, в который помещаются топливные элементы. На рис. 17.27 показана градуировочная кривая для типовых пластин и элементов материаловедческого реактора.

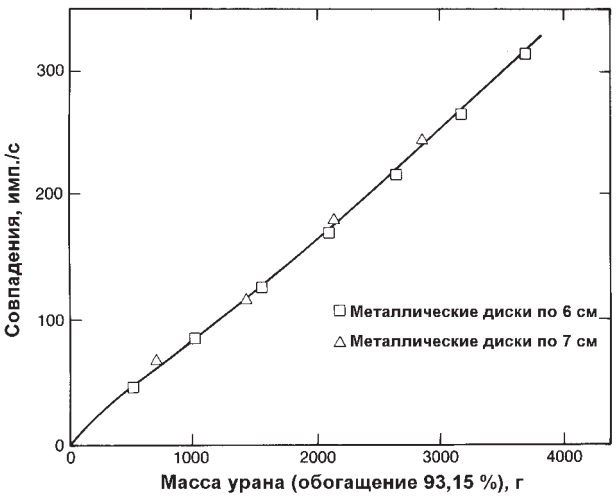

Рис. 17.24. *Зависимость чувствительности установки AWCC от массы урана. Образцы набраны в виде стопки металлических дисков по 6 и 7 см*

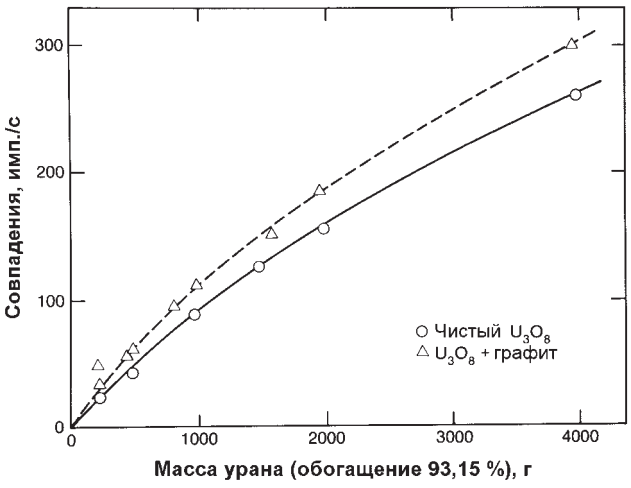

Рис. 17.25. *Зависимость чувствительности установки AWCC от массы порошка оксида высокообогащенного урана и его смеси с графитом [19]*

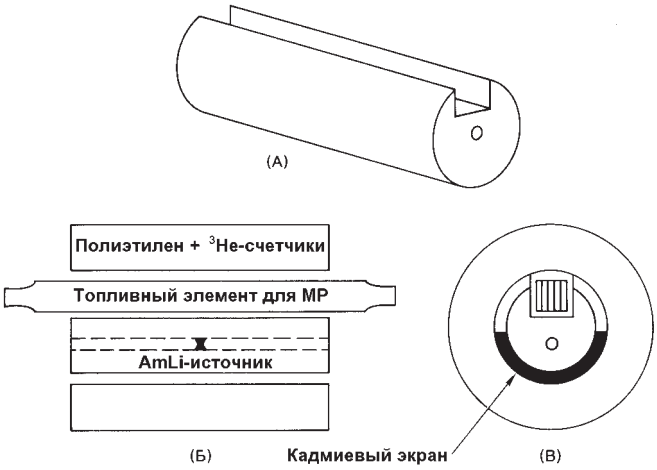

Рис. 17.26. *Горизонтальное расположение установки AWCC с полиэтиленовым вкладышем, используемым для анализа топливных пластин и элементов материаловедческих реакторов (МР)*

17.3.2 Воротниковый счетчик нейтронных совпадений для урана UNCC

Для целей ядерных гарантий большой интерес представляет измерение топливных сборок целиком, так как они являются выходным продуктом завода и входным для реактора. Обогащенный уран часто перемещается с одной установки или из страны на другую установку или в страну виде топливных сборок. Активный метод нейтронной подсветки [22] разрабатывался для измерения содержания ^{235}U в свежих топливных сборках. Метод использует AmLi-нейтронный источник для возбуждения реакции деления в сборке и регистрацию совпадений нейтронов, полученных в результате этой реакции. Регистрация совпадений устраняет нежелательные акты регистрации случайных нейтронов от самого AmLi-источника подсветки, а также влияние внешнего фона. Когда источник подсветки

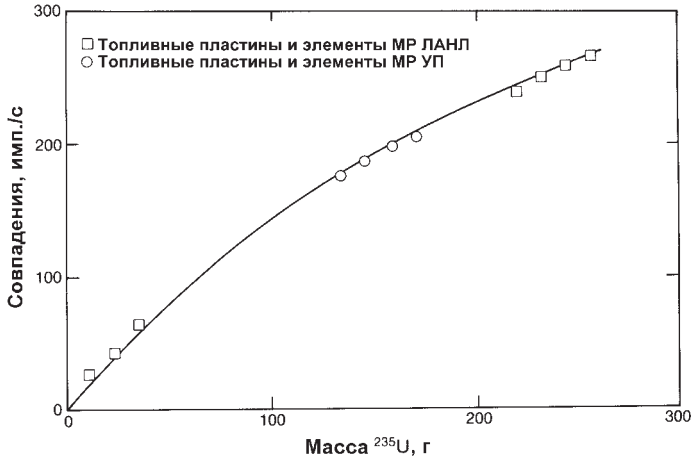

Рис. 17.27. *Градуировочный график установки AWCC для топливных пластин и элементов материаловедческих реакторов (МР) Лос-Аламосской национальной лаборатории (ЛАНЛ) и Университета штата Пенсильвания (УП)*

отсутствует, скорость счета пассивных нейтронных совпадений дает возможность измерять ^{238}U по реакции спонтанного деления. При наличии внешнего источника увеличение скорости счета совпадений дает возможность измерять ^{235}U. Воротниковый счетчик UNCC может быть применен для определения содержания делящихся материалов в сборках реактора на кипящей воде, реактора с водой под давлением и других типов топливных сборок для инвентарного учета ядерных материалов, контроля ядерной безопасности и целей ядерных гарантий.

Активные нейтронные системы, использующие подсветку тепловыми нейтронами, такие, как установка UNCC, имеют недостаток, связанный с самоэкранировкой, что ограничивает их чувствительность к материалу, находящемуся внутри объема сборки. Но современная установка UNCC компенсирует это ограничение эффектом размножения на быстрых нейтронах, который выше в центральной области сборки. Эффект размножения проявляется в увеличении скорости счета совпадений из-за увеличения эффективного числа связанных во времени нейтронов, испускаемых образцом, когда происходит вынужденное деление ядерных материалов. Фактически система работает как измеритель реактивности для топливных сборок. Удаление делящегося материала из сборки понижает нейтронную реактивность и, как следствие, число совпадений.

Установка UNCC состоит из трех блоков ^{3}He-счетчиков и AmLi-источника нейтронов, помещенных в корпус из полиэтилена высокой плотности без кадмиевого экрана. 18 штук ^{3}He-счетчиков имеют диаметр 2,54 см и активную длину 33 см. Корпус из полиэтилена выполняет три основные функции:

- является несущей конструкцией;
- замедляет нейтроны источника подсветки;
- замедляет нейтроны, родившиеся в результате вынужденного деления, для их регистрации ^{3}He-счетчиками.

Для инспекторских целей желательно, чтобы система была портативной. Вес системы ~30 кг.

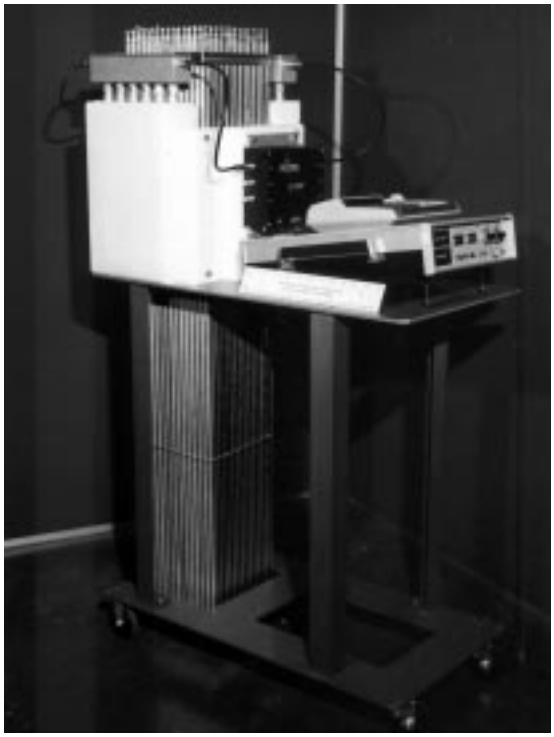

Рис. 17.28. *Воротниковый счетчик нейтронных совпадений UNCC для урана на базе стандартного блока сдвигового регистра. Установка находится в положении для измерения макетов топливных сборок реактора с водой под давлением*

Система в сборе, показанная на рис. 17.28, состоит из блока детектирования, электронного оборудования, микрокалькулятора HP-97 и несущей тележки, на которой при практическом применении система подкатывается к сборке. Задняя часть блока детектирования выполнена в виде дверцы, позволяющей охватить детектором измеряемую сборку.

Испытания и оценка установки UNCC были выполнены на заводе по производству топлива как для реакторов с водой под давлением [23], так и реакторов на кипящей воде [24]. С помощью активного режима с внешней подсветкой измерялось содержание ^{235}U, а пассивный режим использовался для определения содержания ^{238}U. Установка UNCC измеряет содержание ^{235}U или ^{238}U на единицу длины, которое пропорционально обогащению для данного типа сборки. Длина измеряемой зоны образца составляет ~400 мм, симметрично относительно центральной плоскости детектора.

Была выполнена серия измерений [23] с использованием полноразмерных (17×17 стержней) топливных сборок для реакторов с водой под давлением [23] с обогащением в диапазоне от 1,8 до 3,4 % по ^{235}U. Подсветка тепловыми нейтронами была доведена до уровня насыщения для всех сборок, однако отклик измерительной установки продолжал увеличиваться как функция обогащения, потому что увеличивалось размножение на быстрых нейтронах. Подобные измерения были выполнены для топлива реакторов на кипящей воде. Градуировочная кривая на рис. 17.29 соответствует сборке 8×8 стержней для реактора на кипящей воде.

В итоге статистическая погрешность для измерения длительностью 1000 с изменялась от 0,6 до 0,9 % (1σ) в зависимости от типа сборки. Для более длительного времени регистрации, состоящего из нескольких циклов измерений, точ-

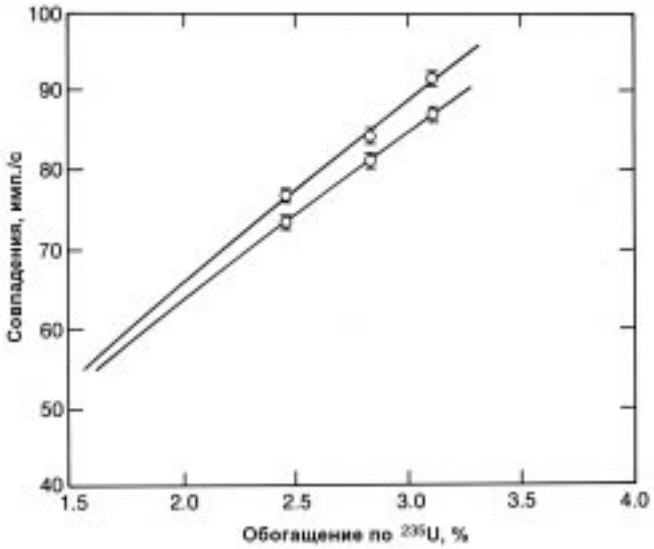

Рис. 17.29. *Градуировочные графики установки UNCC для топливных сборок реактора на кипящей воде (8×8 стержней) с различным содержанием добавки гадолиния*

ность для фиксированной геометрии составила около 0,1 %. Интенсивность приборного отклика для топлива реакторов на легкой воде не входила в насыщение и продолжала возрастать с ростом обогащения в обычном для топлива диапазоне. Относительно небольшое изменение загрузки, обычно не превышающее 1,9 %, могло быть зарегистрировано за время измерения 1000 с. Увеличение времени измерения может в дальнейшем уменьшить статистическую погрешность. Установка UNCC недавно поступила в опытную эксплуатацию для инспекторских целей.

17.3.3 Пассивный воротниковый счетчик нейтронных совпадений PNCC

Описанная выше установка UNCC была модифицирована для контроля смешанного оксидного топлива для сборок быстрых реакторов или реакторов на легкой воде [25]. Сборки со смешанным топливом имеют мощный внутренний источник нейтронов в результате спонтанного деления ^{240}Pu и (α,n)-реакции, так что нет необходимости использовать внешний AmLi-источник подсветки для возбуждения делений. Пассивный воротниковый счетчик нейтронных совпадений PNCC (рис. 17.30) подобен установке UNCC за исключением того, что стенка, содержащая AmLi-источник, заменена на четвертый блок детекторов, и между внутренней стенкой рабочей полости и сборкой установлены выдвижные кадмиевые экраны. Установка PNCC имеет те же основные размеры и характеристики, что и стандартная установка UNCC, для взаимозаменяемости их составных частей.

В пассивном режиме работы установки нейтроны, образованные в результате спонтанного деления, измеряются с помощью обычной методики нейтронных совпадений для определения эффективной массы ^{240}Pu. В активном режиме пассивные нейтроны отражаются назад в сборку, вызывая реакции деления в ядерном материале топлива. Для определения доли отраженных нейтронов изменяется альбедо пограничного слоя, т.е. замедлителя, окружающего сборку, посредством введения и удаления кадмиевого экрана.

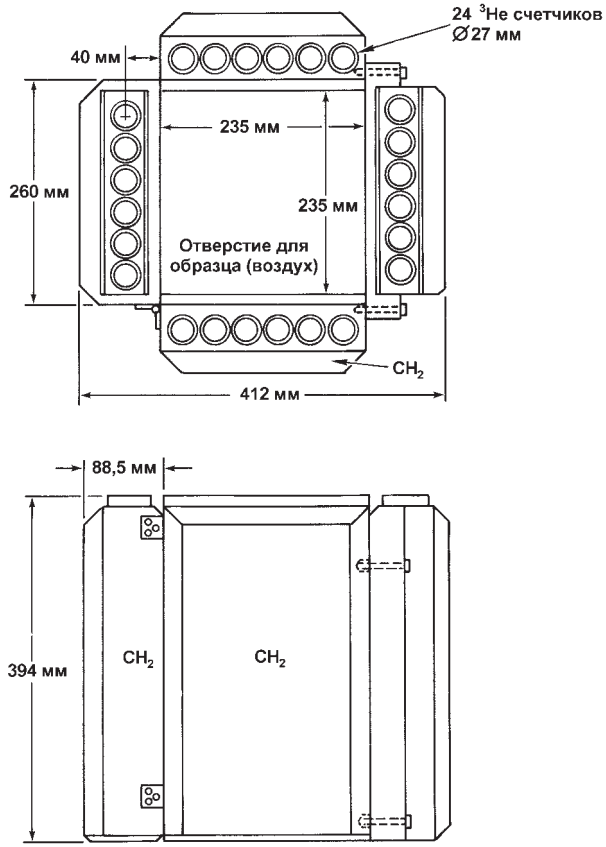

Рис. 17.30. *Чертеж пассивного воротникового счетчика нейтронных совпадений PNCC, используемого для пассивного и активного анализов сборок из смешанного топлива*

Скорость счета совпадений R и полная скорость счета T измерялись как с кадмиевым экраном, так и без него. В пассивном режиме градуировочная кривая является функцией R от эффективной массы ^{240}Pu и обычно необходимо вводить поправку на размножение в делящихся компоненах топлива. Для этого могут быть использованы различные методики. Кадмиевое отношение дает возможность определить количество делящегося материала и эффект размножения.

Скорость вынужденного деления от отраженных нейтронов пропорциональна величине ΔR = R(без кадмия) — R(с кадмием). Однако величина ΔR также пропорциональна общему выходу первичных нейтронов, который отличается для каждой сборки. Устранить это влияние можно, пронормировав ΔR на T, тогда получается величина $\Delta R/T$, которая характеризует только содержание делящегося материала и не зависит от общего потока нейтронов из сборки.

Предварительные измерения со сборками для быстрого реактора были проведены в Англии на установке в Уиндскейл [26]. Использовались как активный, так и пассивный методы. Рис. 17.31 показывает результаты измерений. Нижняя кривая описывает обычные результаты измерения эффективной массы ^{240}Pu с кадмиевыми экранами, верхняя кривая показывает увеличение счета, когда экраны убраны. Это увеличение возникает из-за образования добавочных делений за счет самоподсветки тепловыми нейтронами. Если бы делящийся материал отсутствовал, то не было бы различия между этими кривыми. Результаты испытаний

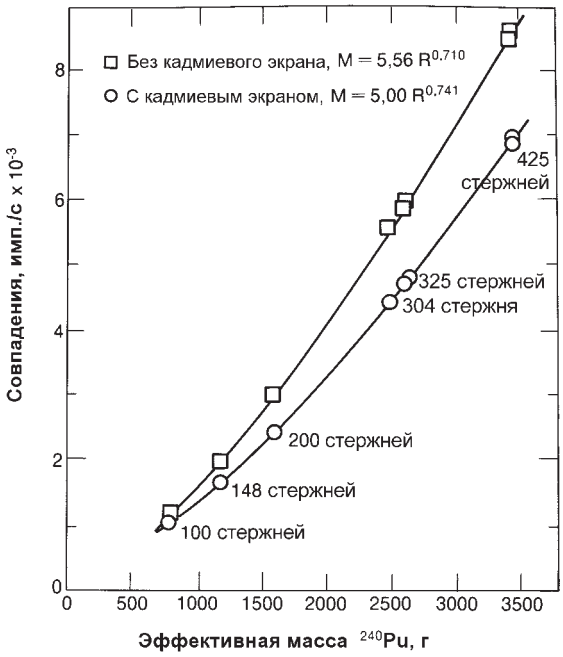

Рис. 17.31. *Результаты пассивного анализа установкой PNCC сборок для быстрых реакторов-размножителей с различным количеством стержней*

дали стандартное отклонение на уровне 0,75 % для пассивного режима и от 3 до 7 % при активном режиме за время измерений 1000 с. Это оборудование предполагается в будущем использовать для контроля содержания плутония в свежих топливных сборках.

17.3.4. Монитор для входного контроля баллонов с UF_6 RAM

Для обеспечения гарантий и учета высокообогащенного урана, произведенного на заводах по обогащению урана, необходимо измерять содержание ^{235}U в контейнерах (баллонах) для хранения UF_6. При обогащении выше 20 % по ^{235}U хранение UF_6 производится в баллонах типа "Модель-5А", которые имеют диаметр 127 и высоту 914 мм. Традиционный метод измерения обогащения этого материала включает регистрацию выхода гамма-излучения изотопа ^{235}U с энергией 186 кэВ в непосредственной близости от поверхности контейнера. В работе [27] описана новая методика определения содержания ^{235}U в контейнере "Модель-5А" с UF_6. Пассивный метод совпадений, основанный на эффекте самоподсветки, был признан после оценки возможных применений нейтронного счетчика совпадений. Монитор RAM, который был разработан для применения этой методики, показан на рис. 17.32.

Монитор RAM [27] содержит 20 штук ^3He-счетчиков с активной длиной 61 см. Кадмиевые экраны на ^3He-счетчиках используются для получения постоянной эффективности вдоль высоты баллона с UF_6, которая обычно составляет от 30 до 40 см. Быстрая электроника типа AMPTEK встроена в верхнюю крышку детектора, причем в этой области предусмотрены специальные материалы для смягчения возможных ударов при загрузке контейнера с материалом внутрь детектора. Уникальной особенностью установки RAM является то, что она имеет механически перемещаемый кадмиевый экран, который может управляться либо

Рис. 17.32. *Монитор RAM входного контроля для проверки содержания ^{235}U в UF_6 в баллонах типа "Модель-5А"*

вручную, либо с помощью внешнего микропроцессора. Обычная процедура анализа состоит в измерении продолжительностью 120 с при снятом кадмиевом экране и измерении в течение 360 с при установленном экране с погрешностью определения скорости счета около 0,5 %.

В этой новой пассивно-активной методике нейтроны (α,n)-реакций в UF_6 вызывают вынужденные деления в ^{235}U. Так как (α,n)-нейтроны случайны во времени, скорость счета совпадений R дает прямое измерение скорости вынужденного деления. Выход (α,n)-источника самоподсветки определяется путем измерения полной скорости счета T. Отношение T/R пропорционально M(M-1), где M — умножение нейтронов утечки, которое не зависит от величины полного потока (α,n)-нейтронов. Величина M(M-1), таким образом, полностью соответствует содержанию ^{235}U.

Первичным источником (α,n)-нейтронов в обогащенном UF_6 являются альфа-частицы распада ^{234}U, взаимодействующие с атомами фтора (см. табл. 11.3 в главе 11). Кроме того, ^{232}U также дает некоторый вклад в общее количество альфа-частиц. Имеется вклад связанных во времени нейтронов от спонтанного деления ^{238}U. Их выход невелик ($1{,}36\times10^{-2}$ нейтр./с·г ^{238}U) и им можно пренебречь в случае больших обогащений из-за уменьшения доли ^{238}U и увеличения доли ^{234}U. Величина вклада спонтанных делений ^{238}U составляет около 10 % от сигнала для ^{235}U при обогащении 20 % по ^{235}U и менее 1 % при обогащении более 50 % по ^{235}U (см. табл. 14.3 и 14.4 в главе 14).

На рис. 17.33 показаны результаты анализа для 38 баллонов типа "Модель-5А" с UF_6, полученные с помощью методики самоподсветки [27]. Отношение R/T было скорректировано с учетом эффекта увеличения полной скорости счета, который имеет место при удалении кадмиевого экрана. Эта поправка помогает скомпенсировать изменения плотности UF_6 и эффект саморазмножения при переходе от одного баллона к другому. Наблюдаемый разброс результатов отно-

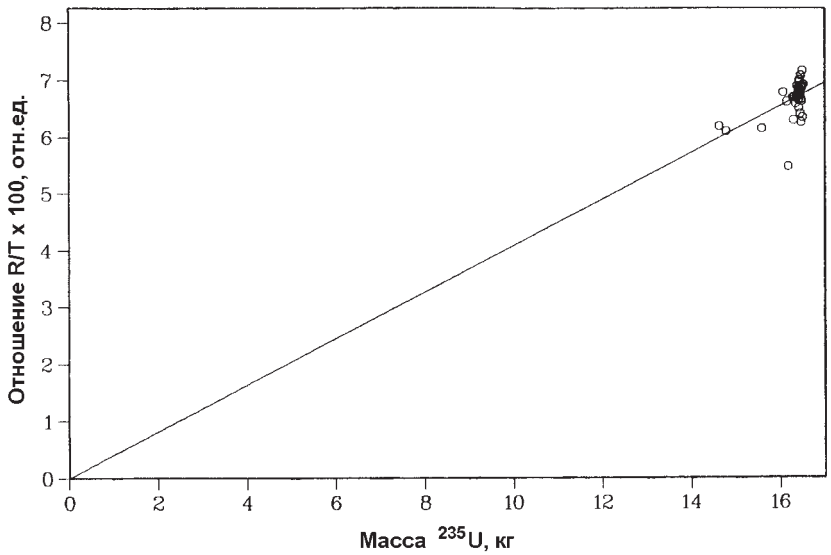

Рис. 17.33. *Результаты анализа установкой RAM содержания UF_6 в 38 баллонах типа "Модель-5А". Показано измеренное в пассивном режиме отношение R/T как функция содержания ^{235}U, исправленное с учетом эффекта увеличения полной скорости счета при удалении кадмиевого экрана*

сительно аппроксимирующей кривой составляет около 10 % (1σ) без поправки и 2,8 % с поправкой. Можно ожидать, что этот разброс будет уменьшен, когда механизм поправки, основанный на выдвижном кадмиевом экране, будет лучше понят. На рис. 17.33 не показаны результаты для многих частично заполненных баллонов, но скорректированное отношение R/T обеспечит почти линейную градуировочную кривую, что даст возможность определить содержание ^{235}U в широком диапазоне высот заполнения.

ЛИТЕРАТУРА

1. J.E. Foley and L.R. Cowder, "Assay of the Uranium Content of Rover Scrap with the Random Source Interrogation System," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-5692-MS (1974).
2. D. Langner, T. Canada, N. Ensslin, T. Atwell, H. Baxman, L. Cowder, L. Speir, T.Van Lyssel, and T. Sampson, "The CMB-8 Material Balance System," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8194-M (August 1980).
3. T. Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications,* NUREG/CR-0602 and SAI-MLM-2585, (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).
4. J.E. Swansen, P.R. Collinsworth, and M.S. Krick, "Shift-Register Coincidence Electronics System for Thermal Neutron Counters," *Nuclear Instruments and Methods* 176, 555 (1980).
5. M.S. Krick and H.O. Menlove, "The High-Level Neutron Coincidence Counter (HLNCC): Users' Manual," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7779-M (1978).

6. J.E. Foley, "4π Neutron Counter for 55-Gallon Barrels," in "Nuclear Safeguards Research and Development Program Status Report, September-December 1970," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-4605-MS (January 1971), pp.24-26.

7. J.E. Swansen, "Dead-Time Reduction in Thermal Neutron Coincidence Counters," Los Alamos National Laboratory report LA-9936-MS (1984).

8. M.S. Krick and H.O. Menlove, "Channel Coincidence Counter: Version I," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8404-MS (June 1980).

9. A.J.G. Ramalho, E. Dahn, E.G. Selleck, V. Kupryashkin, and A. Dubreuil, "The High-Level Neutron Coincidence Counter (HLNCC) Family of Detectors and Its Use," International Symposium on Recent Advances in Nuclear Materials Safeguards, Vienna, Austria, November 8-12, 1982, International Atomic Energy Agency report IAEA-SM-260.

10. L. Cowder and H.O. Menlove, "Neutron Coincidence Counter for MOX Fuel Pins in Storage Trays: Users' Manual," Los Alamos National Laboratory report LA-9493-M (August 1982).

11. G.W. Eccleston, H.O. Menlove, and O.R. Holbrooks, "Universal Fast Breeder Reactor (FBR) Coincidence Counter Design," in "Safeguards and Security Status Report, February—July 1982," J. Shipley and D. Smith, Comps., Los Alamos National Laboratory report LA-9595-PR (February 1983), pp.29-31.

12. H.O. Menlove, O.R. Holbrooks and A. Ramalho, "Inventory Sample Coincidence Counter Manual," Los Alamos National Laboratory report LA-9544-M (November 1982).

13. N. Ensslin, E. Adams, D. Bowersox, and J. Stewart, "Neutron Coincidence Counting of Plutonium Solutions," *Transactions of the American Nuclear Society* 39, 335-336(1981).

14. H.O. Menlove, E.L. Adams, and O.R. Holbrooks, "Plutonium Nitrate Bottle Counter Manual," Los Alamos National Laboratory report LA-10009-M (1984).

15. N. Ensslin, M.L. Evans, H.O. Menlove, and J.E. Swansen, "Neutron Coincidence Counters for Plutonium Measurements," *Nuclear Materials Management* VII (2), 43-65 (1978).

16. N. Ensslin, A. Gibbs, C. Denard, and P. Deason, "Test and Evaluation of the Dual-Range Coincidence Counter at the Savannah River Plant," Los Alamos National Laboratory report LA-8803-MS (April 1981).

17. G.A. Westsik, "Rockwell Dual Range Coincidence Counter," Rockwell Hanford Operations report RHO-QA-SA-004 (1984).

18. H.O. Menlove, "Description and Operation Manual for the Active Well Coincidence Counter," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7823-M (1979).

19. H.O. Menlove, N. Ensslin, and T.E. Sampson, "Experimental Comparison of the Active Well Coincidence Counter with the Random Driver," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7882-MS (1979).

20. M.S. Krick and P.M. Rinard, "Field Tests and Evaluations of the IAEA Active Well Coincidence Counter," Los Alamos National Laboratory report LA-9608-MS (December 1982).

21. R. Sher, "Active Neutron Coincidence Counter for the Assay of MTR Fuel Elements," Los Alamos National Laboratory report LA-9665-MS (February 1983).

22. H.O. Menlove, "Description and Performance Characteristics for the Neutron Coincidence Collar for the Verification of Reactor Fuel Assemblies," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8939-MS (August 1981).

23. C. Beets, "Optimization of NDA Measurements in Field Conditions for Safeguards Purposes," Centre D'Etude de L'Energie Nucleaire Third Progress Report BLG553 — Contract RB/2274 (January 1982).

24. H.O. Menlove and A. Keddar, "Field Test and Evaluation of the IAEA Coincidence Collar for the Measurement of Unirradiated BWR Fuel Assemblies," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-9375-MS (December 1982).

25. H.O. Menlove, "Passive/Active Coincidence Collar for Total Plutonium Measurement of MOX Fuel Assemblies" Los Alamos Scientific Laboratory report LA-9288-MS (May 1982).

26. H.O. Menlove and A. Keddar, "Field Test and Evaluation of the Passive Neutron Coincidence Collar for Prototype Fast Reactor Fuel Subassemblies," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-9449-MS (August 1982).

27. J.E. Stewart, N. Ensslin, H.O. Menlove, L.R. Cowder, and P.J. Polk, "Confirmatory Measurement of UF_6 Using the Neutron Self-Interrogation Method," Proc. Inst. Nucl. Math. Manage. Conference, Albuquerque, New Mexico, July 1985, Los Alamos National Laboratory document LA-UR 85-2567.

Глава 18

Измерения облученного топлива

Дж. Р. Филлипс
(Переводчик А.Н. Григорьев)

18.1 ВВЕДЕНИЕ

В США работает свыше 100 атомных электростанций с общей установленной мощностью более 85 ГВт (гигаватт, 1 ГВт = 10^9 Вт) [1]. Ежегодно из этих реакторов выгружается от 5000 до 10000 облученных тепловыделяющих сборок (ТВС). Некоторые сборки в течение года или двух лет охлаждаются, а затем снова загружаются в реактор для оптимизации выгорания остаточного делящегося материала; другие, достигнув максимального проектного значения выгорания, помещаются в бассейн выдержки рядом с реактором до тех пор, пока они не будут отправлены на объект долговременного хранения или на захоронение. Эти тысячи ТВС поштучно пересчитываются, а в качестве учетных данных используются заявленные оператором значения обеднения первоначального делящегося материала (^{235}U или ^{239}Pu) и значения накопления делящихся изотопов плутония (^{239}Pu и ^{241}Pu). Чтобы усовершенствовать этот не совсем точный метод учета, был разработан ряд методик неразрушающих измерений для проверки заявленных оператором величин.

Перед облучением можно получить характеристики реакторного топлива, применяя методики измерения излучения гамма-квантов и нейтронов, рассмотренные в главах 7, 8, 15 и 17. Однако после значительного облучения топлива в реакторе характеристики урана и плутония полностью искажаются из-за излучения продуктов деления, активированных элементов конструкции сборок и трансурановых элементов, образующихся в результате процесса деления. Таким образом, ни измерения гамма-излучения, ни измерения нейтронов из облученного топлива не дают количественных характеристик ^{235}U, ^{239}Pu или ^{241}Pu. Вместо них для оценки этих величин должны использоваться косвенные характеристики, базирующиеся на характеристиках излучения продуктов деления или трансурановых элементов и применяющиеся для определения выгорания и времени охлаждения облученного топлива. Из величин выгорания затем могут быть определены расчетными методиками величины накопления ^{239}Pu и ^{241}Pu в топливе.

Можно также использовать методики активного нейтронного анализа для определения количества делящегося материала, присутствующего в облученных ТВС. Для этих методик требуется применение источника нейтронов (например, ^{252}Cf) или ускорителя, и в большинстве случаев необходимо стационарное оборудование.

В этой главе рассматриваются физические характеристики реакторного топлива (раздел 18.2), косвенные характеристики выгорания (раздел 18.3) и измерения гамма- и нейтронного излучения облученного топлива (разделы 18.4 и 18.5). В разделе 18.6 обобщаются пассивные и активные методы оценки содержания плутония в облученном топливе.

18.2 ХАРАКТЕРИСТИКИ РЕАКТОРНОГО ТОПЛИВА

18.2.1 Физическое описание

За исключением одного высокотемпературного реактора с газовым охлаждением (Форт Сант-Врейн), все энергетические реакторы, работающие в настоящее время в США, являются реакторами с водой под давлением (PWR) или реакторами на кипящей воде (BWR). Проводятся исследования на быстрых реакторах-размножителях (FBR). Параметры топлива и активной зоны реакторов PWR, BWR и FBR сравниваются в табл. 18.1 [2 и 3]. На рис. 18.1 показаны отличия в габаритных размерах топливных стержней и тепловыделяющих сборок.

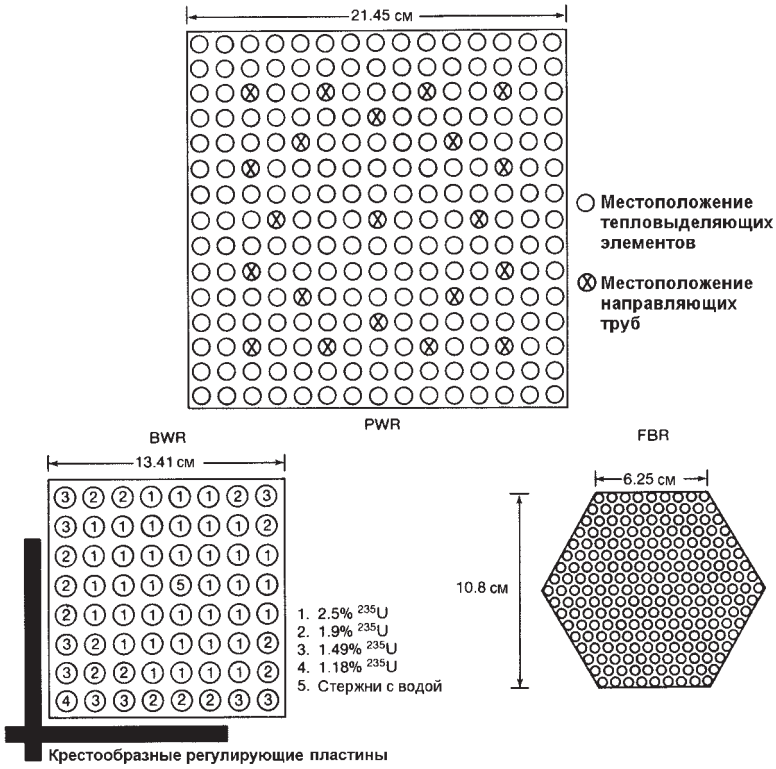

Рис. 18.1. *Поперечное сечение тепловыделяющих сборок реактора с водой под давлением PWR (вверху), реактора на кипящей воде BWR (внизу слева) и быстрого реактора — размножителя FBR (внизу справа)*

Исходное реакторное топливо состоит из делящегося (^{235}U или ^{239}Pu) и воспроизводящего материалов (^{238}U). Эти материалы обычно присутствуют в форме керамических оксидов или карбидов, учитывая их коррозионную стойкость, относительную простоту изготовления и очень хорошие характеристики в части радиационной стойкости. В реакторах PWR или BWR топливо находится в виде керамических таблеток UO_2, имеющих 1 см в диаметре и длину 2 см. Таблетки укладываются в трубки из нержавеющей стали или циркалоя стопками до активной длины 3,7 м. Циркалой представляет собой циркониевый сплав, используемый

большей частью в стержнях для PWR и BWR из-за его малого сечения поглощения нейтронов. Для предотвращения химической реакции с воздухом, водой или другими материалами, используемыми для охлаждения, топливо помещается в оболочку из специального материала.

Когда облученные топливные стержни рубятся и выщелачиваются во время переработки, образуются отходы переработки отработанных ТВЭЛов (принятое название "шелуха" — прим. пер.). Остающийся в шелухе делящийся материал образует особый вид облученного топлива. Измерения этого материала важны для обеспечения приемлемого учета ядерных материалов в технологическом процессе [4].

Таблица 18.1 — Параметры топлива и активной зоны реакторов

	PWR	BWR	FBR
Параметры топлива			
Материал оболочки	Циркалой-4	Циркалой-2	SS 316
Диаметр оболочки, см	0,95	1,23	0,74
Толщина оболочки, см	0,06	0,08	0,03
Материал топлива, см	UO_2	UO_2	$(U,Pu)O_2$
Исходное обогащение по ^{235}U	2,1/2,6/3,1 %	2,8 % (средн.)	25 % Pu
Диаметр таблетки, см	0,82	1,04	0,67
Высота таблетки, см	1,5	1,04	0,7
Решетка сборки	15×15 или 17×17	8×8	шестигранник (17 по диагонали)
Число топливных стержней в сборке	201 или 264	63	217
Параметры активной зоны			
Число тепловыделяющих сборок	193	740	394
Общее количество топлива, кг	98 000	150 000	25 000
Диаметр активной зоны, см	340	366	222
Высота активной зоны, см	366	376	91
КПД, %	33	34	39
Проектное выгорание топлива, гВт·сут/т U	33	28	100
Цикл перегрузки топлива	1/3 всего топлива в год	1/4 всего топлива в год	1/3 всего топлива в год

18.2.2 Определение выгорания и глубины выгорания

Два общепринятых термина для облучения топлива — выгорание и глубина выгорания часто применяются как взаимозаменяемые. Выгорание (в процентах атомов) определяется как число делений на 100 тяжелых ядер (урана или плутония), первоначально присутствующих в топливе. Глубина выгорания определяется как полная энергия, высвобождаемая при делении тяжелых ядер, первоначально присутствующих в топливе. (В российской практике оба определения относятся к термину "выгорание" — прим. ред.) Глубина выгорания имеет размерность мегаватт- или гигаватт-сутки (тепловой выход реактора) на метрическую тонну (1000 кг) исходного урана: МВт·сут/т U или ГВт·сут/т U. Для неразрушающих измерений облученного топлива последнее определение более полезно, потому что реальное содержание тяжелых ядер непосредственно не определяется.

Эти два определения приблизительно связаны следующим уравнением:

$$1\,\text{ат.\%}\,\text{выгорания} \approx 9{,}6\,\text{ГВт}\cdot\text{сут}/\text{т U}\,. \qquad (18.1)$$

Зависимость между выгоранием и глубиной выгорания изменяется как функция выгорания из-за изменения отношения делений урана к делениям плутония. Количество энергии, высвобождаемой при делении плутония (212 МэВ) приблизительно на 5 % больше количества энергии, высвобождаемой при делении изотопа ^{235}U (202 МэВ).

Средние проектные значения выгорания реакторного топлива включены в табл. 18.1. Реальные значения могут находиться в диапазоне от 55 до 60 ГВт·сут/т U для PWR, от 45 до 50 ГВт·сут/т U для BWR и 150 ГВт·сут/т U для FBR.

18.2.3 Выход продуктов деления

При реакциях деления первичными источниками энергии являются деление ^{235}U, ^{239}Pu и ^{241}Pu с некоторым вкладом от деления ^{238}U быстрыми нейтронами. В табл. 18.2 [5] перечислены относительные количества делений для каждого из этих четырех изотопов в зависимости от глубины выгорания топлива для одного типичного случая. Таблица показывает, что изотопы плутония начинают вносить значительный вклад в общую сумму только после того, как значение глубины выгорания составит несколько ГВт·сут/т U, а после того, как глубина выгорания составит свыше 20 ГВт·сут/т U, они становятся доминирующим источником деления.

Каждое деление приводит к образованию двух продуктов деления со средней массой. На рис. 18.2 [6 и 7] показаны кривые распределения массы для деления тепловыми нейтронами ^{235}U и ^{239}Pu. Основное отличие между двумя кривыми состоит в незначительном смещении кривой для ^{239}Pu в сторону более высоких массовых чисел относительно кривой для ^{235}U. Смещение хорошо видно для относительного выхода ^{106}Ru при делении ^{235}U и ^{239}Pu. Деления в ^{239}Pu дают выход ^{106}Ru в 11 раз больше, чем деления ^{235}U. Таким образом, измерение выхода гамма-излучения из изотопа ^{106}Ru может определить относительную долю делений ^{239}Pu к полному числу делений. С другой стороны, изотоп, подобный ^{137}Cs, имеет почти одинаковые выходы при делении как изотопа ^{235}U, так и ^{239}Pu. Выход гамма-излучения от ^{137}Cs может быть использован для определения полного числа делений.

Таблица 18.2 – Полное число делений (в процентах) как функция глубины выгорания топлива для реактора PWR с первоначальным обогащением 2,56% ^{235}U

Глубина выгорания, ГВт·сут/т U	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu
0	100,0	0,0	0,0	0,0
1,2	88,1	6,7	5,1	0,01
4,7	76,3	6,9	16,4	0,35
9,9	60,6	7,4	29,6	2,4
15,1	49,5	7,8	37,5	5,3
20,0	41,1	8,1	42,8	8,0
25,6	32,9	8,5	47,3	11,3
29,6	27,6	8,8	40,9	13,7
34,7	23,8	9,9	58,2	18,1
40,0	16,7	9,3	55,3	18,7
46,8	11,7	9,6	57,5	21,2

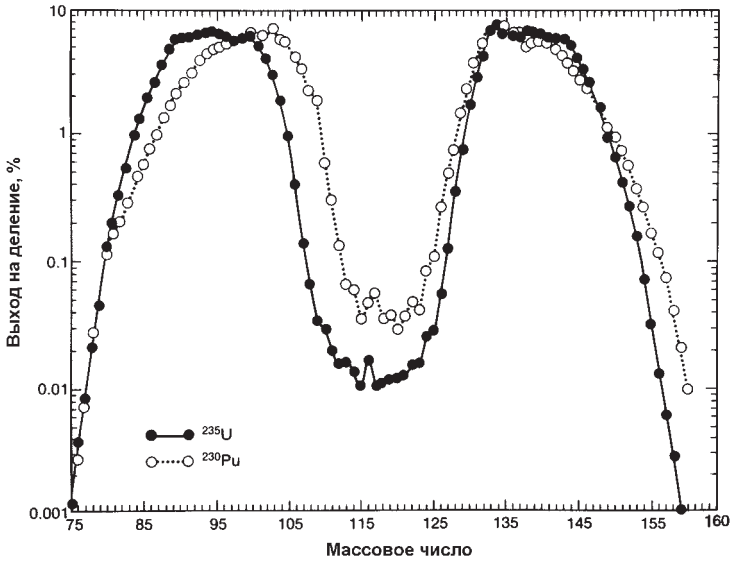

Рис. 18.2. *Массовое распределение продуктов деления при делении ^{235}U и ^{239} Pu тепловыми нейтронами [6 и 7]*

Большинство продуктов деления первоначально содержат избыточное количество нейтронов и подвергаются бета-распаду, переходя к устойчивому со-

стоянию. Кроме излучения бета-частиц продукты деления также излучают гамма-кванты, характеристики которых можно измерить. На рис. 18.3 показан спектр гамма-излучения тепловыделяющей сборки PWR, имеющей интегральную глубину выгорания 32 ГВт·сут/т U и время охлаждения 9 месяцев (время после выгрузки из реактора). Как можно видеть из этого спектра, существует только около 10 изотопов, которые можно измерить. В табл. 18.3 [8] перечислены доминирующие изотопы наряду с характеристиками их гамма-квантов и периодом полураспада. Выход на деление — это среднее число образованных ядер каждого изотопа (в процентах) на одно деление тепловыми нейтронами ^{235}U или ^{239}Pu. Кроме гамма-квантов продуктов деления, также присутствуют гамма-кванты, образованные при активации оболочки топлива и таких материалов, как ^{54}Mn, ^{58}Co и ^{60}Co, которые также присутствуют в конструкции; они включены в табл. 18.3.

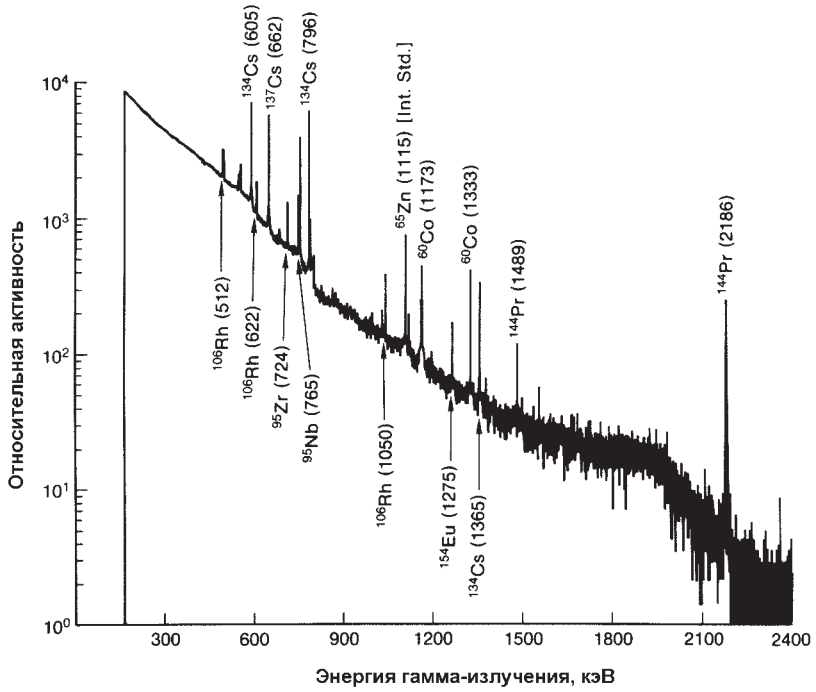

Рис. 18.3. *Спектр гамма-излучения тепловыделяющей сборки реактора PWR с глубиной выгорания 32 ГВт · сут/т U и временем охлаждения 9 месяцев*

Облучаемый нейтронами уран может также захватить нейтроны и образовать трансурановые элементы, как это показано на рис. 18.4 [5]. Многие из этих нуклидов испускают нейтроны при спонтанном делении или реакции (α,n). Интенсивности образования нейтронов при спонтанном делении и реакции (α ,n) для источников первичных нейтронов — ^{238}Pu, ^{240}Pu, ^{242}Pu, ^{241}Am, ^{242}Cm и ^{244}Cm — включены в табл. 11.1 и 11.3 в главе 11.

Таблица 18.3 – Изотопы, идентифицируемые с помощью гамма-квантов в типовой сборке облученного топлива [8]

Изотопы продуктов деления	Период полураспада	Выход на деление ^{235}U, %	Выход на деление ^{239}Pu, %	Энергия гамма-излучения, кэВ	Доля распада, %
^{95}Zr	64,0 сут	6,50	4,89	724,2	43,1
				756,7	54,6
^{95}Nb	35,0 сут	6,50	4,89	765,8	99,8
^{103}Ru	39,4 сут	3,04	6,95	497,1	86,4
				610,3	5,4
^{106}Ru-Rh	366,4 сут	0,40	4,28	622,2	9,8
				1050,5	1,6
^{134}Cs	2,06 года	$1,27 \times 10^{-5}$*	$9,89 \times 10^{-4}$*	604,7	97,6
				795,8	85,4
				801,8	8,7
				1167,9	1,8
				1365,1	3,0
^{137}Cs	30,17 года	6,22	6,69	661,6	85,1
^{144}Ce-Pr	284,5 сут	5,48	3,74	696,5	1,3
				1489,2	0,3
				2185,6	0,7
^{154}Eu	8,5 года	$2,69 \times 10^{-6}$*	$9,22 \times 10^{-5}$*	996,3	10,3
				1004,8	17,4
				1274,4	35,5
Продукты активации					
^{54}Mn	312,2 сут			834,8	100,0
^{58}Co	70,3 сут			811,1	99,0
^{60}Co	5,27 года			1173,2	100,0
				1332,5	100,0

* Значения для ^{154}Eu и ^{134}Cs даются только для непосредственного образования изотопа при делении. На самом деле каждый из этих изотопов в первую очередь образуется путем поглощения нейтронов. Для топливного материала реактора PWR, облученного до глубины выгорания 25 ГВт·сут/т U, “накопленный выход на деление” изотопов ^{154}Eu и ^{134}Cs составил, соответственно, 0,15 и 0,46 %.

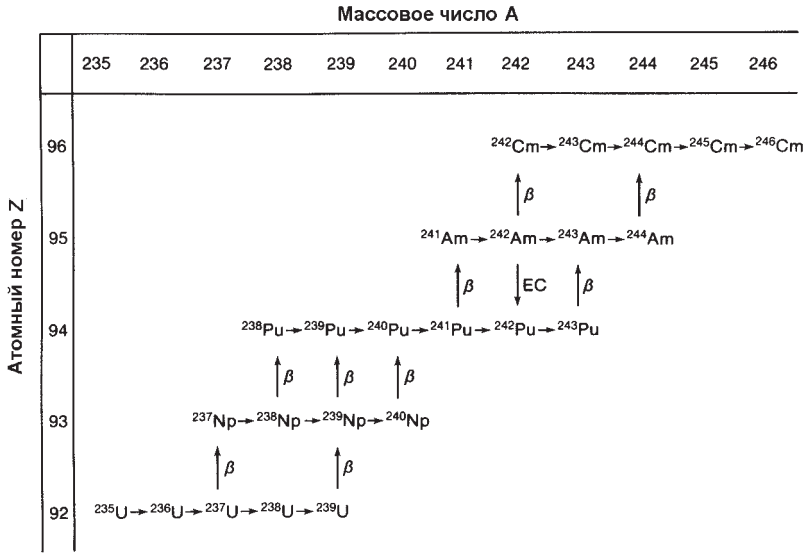

Рис. 18.4. *Основные реакции захвата нейтронов (горизонтальные стрелки) и реакции бета-распада (вертикальные стрелки), приводящие к образованию в облученном топливе трансурановых элементов. Для изотопов ^{240}Np, ^{242}Am и ^{244}Am существуют как стабильные, так и метастабильные состояния*

Гамма-кванты продуктов деления и нейтроны из ядер трансурановых элементов полностью маскируют гамма-кванты и нейтроны изотопов урана и плутония в топливе. Этот эффект показан в табл. 18.4, в которой перечислены относительные плотности атомов и выход гамма-излучения на грамм исходного урана для ^{137}Cs, линии 186 кэВ ^{235}U и линии 414 кэВ ^{239}Pu. Эти результаты основаны на реальной предыстории облучения тепловыделяющей сборки в реакторе PWR. Топливо имело первоначальное обогащение 2,6 % ^{235}U и облучалось в течение четырех реакторных циклов до достижения максимальной глубины выгорания 46,8 ГВт·сут/т U. Плотности продуктов деления и трансурановых элементов рассчитывались с помощью программы оценки обеднения реакторного топлива [6 и 7]. Даже несмотря на то, что плотности атомов для ^{137}Cs, ^{235}U и ^{239}Pu сравнимы для глубины выгорания 46,8 ГВт·сут/т U, число излученных гамма-квантов ^{137}Cs составляет в $4{,}5\times10^7$ и $2{,}7\times10^7$ раз больше, чем число гамма-квантов основных изотопов ^{235}U и ^{239}Pu, соответственно. Изотоп ^{137}Cs является одним из 10 доминирующих продуктов деления, излучающих гамма-кванты.

Похожие результаты получаются, когда проводят исследования выхода нейтронов из облученных топливных материалов. В табл. 18.5 [4] приведен выход нейтронов из уранового оксидного топлива после достижения глубины выгорания, равной 33,0 ГВт·сут/т U, и времени охлаждения 1 год. Выход собственных нейтронов из плутония уступает на 2 порядка величине выхода нейтронов из изотопов кюрия.

Таблица 18.4 – Сравнение атомной плотности и активности гамма-излучения ^{137}Cs, ^{235}U и ^{239}Pu

Глубина выгорания, ГВт·сут/т U	^{137}Cs		^{235}U		^{239}Pu	
	атомная плотность*	линия 661,6 кэВ, квант/г U	атомная плотность *	линия 185,72 кэВ, квант/г U	атомная плотность*	линия 413,69 кэВ, квант/г U
0	0,0	0,0	$6{,}28 \times 10^{19}$	$1{,}06 \times 10^{3}$	0,0	0,0
1,2	$1{,}94 \times 10^{17}$	$1{,}20 \times 10^{8}$	$5{,}94 \times 10^{19}$	$1{,}00 \times 10^{3}$	$1{,}66 \times 10^{18}$	$2{,}28 \times 10^{1}$
4,7	$7{,}63 \times 10^{17}$	$4{,}73 \times 10^{8}$	$5{,}05 \times 10^{19}$	$8{,}51 \times 10^{2}$	$5{,}39 \times 10^{18}$	$7{,}41 \times 10^{1}$
9,9	$1{,}60 \times 10^{18}$	$9{,}94 \times 10^{8}$	$3{,}98 \times 10^{19}$	$6{,}70 \times 10^{2}$	$8{,}74 \times 10^{18}$	$1{,}20 \times 10^{2}$
15,1	$2{,}43 \times 10^{18}$	$1{,}51 \times 10^{9}$	$3{,}12 \times 10^{19}$	$5{,}25 \times 10^{2}$	$1{,}05 \times 10^{19}$	$1{,}44 \times 10^{2}$
20,0	$3{,}17 \times 10^{18}$	$1{,}97 \times 10^{9}$	$2{,}47 \times 10^{19}$	$4{,}16 \times 10^{2}$	$1{,}14 \times 10^{19}$	$1{,}57 \times 10^{2}$
25,6	$4{,}05 \times 10^{18}$	$2{,}51 \times 10^{9}$	$1{,}87 \times 10^{19}$	$3{,}14 \times 10^{2}$	$1{,}19 \times 10^{19}$	$1{,}64 \times 10^{2}$
29,6	$4{,}64 \times 10^{18}$	$2{,}87 \times 10^{9}$	$1{,}52 \times 10^{19}$	$2{,}56 \times 10^{2}$	$1{,}20 \times 10^{19}$	$1{,}65 \times 10^{2}$
34,7	$5{,}40 \times 10^{18}$	$3{,}35 \times 10^{9}$	$1{,}15 \times 10^{19}$	$1{,}94 \times 10^{2}$	$1{,}20 \times 10^{19}$	$1{,}65 \times 10^{2}$
40,0	$6{,}15 \times 10^{18}$	$3{,}81 \times 10^{9}$	$8{,}59 \times 10^{18}$	$1{,}45 \times 10^{2}$	$1{,}20 \times 10^{19}$	$1{,}65 \times 10^{2}$
46,8	$7{,}14 \times 10^{18}$	$4{,}43 \times 10^{9}$	$5{,}80 \times 10^{18}$	$9{,}78 \times 10^{1}$	$1{,}18 \times 10^{19}$	$1{,}62 \times 10^{2}$

* Число атомов на грамм исходного тяжелого металла

Таблица 18.5 – Типичная интенсивность образования нейтронов из оксидного топлива

Изотоп	г/т U	n(СД*)/с·т U	n(α,n)/с·т U
^{238}Pu	$1{,}35 \times 10^{2}$	$3{,}67 \times 10^{5}$	$2{,}48 \times 10^{6}$
^{240}Pu	$2{,}32 \times 10^{3}$	$2{,}02 \times 10^{6}$	$4{,}66 \times 10^{5}$
^{242}Pu	$4{,}61 \times 10^{2}$	$8{,}16 \times 10^{5}$	
^{241}Am	$8{,}83 \times 10^{1}$		$3{,}21 \times 10^{5}$
^{242}Cm	2,43	$5{,}44 \times 10^{7}$	$1{,}15 \times 10^{7}$
^{244}Cm	18,3	$2{,}07 \times 10^{8}$	$1{,}88 \times 10^{6}$
		$2{,}65 \times 10^{8}$	$1{,}66 \times 10^{7}$

* СД — спонтанное деление (прим. пер.)

18.3 КОСВЕННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ВЫГОРАНИЯ ТОПЛИВА

Как описывается в разделе 18.2.3, при пассивном анализе нейтронного или гамма-излучения облученного топлива нельзя непосредственно измерить содержание делящихся элементов или выгорание топлива из-за высоких уровней окружающей радиации. В этом разделе рассматривается множество косвенных методик для качественного или количественного определения выгорания топлива, при применении многих из которых как раз используются высокие уровни окружающей радиации.

18.3.1 Физические атрибутивные признаки

Перед определением выгорания инспектор может провести идентификацию сборок облученного топлива и проверить их массы. Тепловыделяющие сборки представляют собой отдельные опечатанные единицы с идентификационными номерами. Если вода в бассейне выдержки чистая, идентификационный номер можно прочесть с помощью комплекта биноклей через плавающее плексигласовое окошко, используемое для устранения ряби. Если вода слишком грязная для того, чтобы осуществить эту простую проверку, можно использовать подводный перископ или видеокамеру, использующиеся на многих реакторных бассейнах выдержки. Информация о физической целостности тепловыделяющей сборки может быть получена с помощью динамометрического датчика для определения массы. Большинство бассейнов выдержки имеют крановый механизм для перемещения тепловыделяющих сборок, на котором можно смонтировать такой динамометрический датчик.

При визуальном контроле тепловыделяющей сборки обычно можно идентифицировать, была ли она в активной зоне реактора. Свежая тепловыделяющая сборка имеет блестящую поверхность, в то время как поверхность облученной тепловыделяющей сборки подвержена незначительному окислению, вызывающему появление тусклой красноватой пленки. Кроме того, на сборке облученного топлива может образоваться визуально определяемая корочка, и сборка может оказаться чуть искривленной или скрученной.

18.3.2 Черенковское излучение

Гамма-кванты продуктов деления или активации производят электроны, которые приводят к черенковскому излучению. Таким образом, измерения черенковского излучения можно использовать для идентификации присутствия материала, испускающего гамма-излучение. Эта косвенная характеристика может применяться для проверки сборок отработавшего топлива, хранящегося под водой [9 и 10].

Электромагнитное черенковское излучение образуется всякий раз, когда заряженная частица проходит через среду со скоростью, превышающей фазовую скорость света в этой среде. В воде фазовая скорость света составляет около 75 % от величины фазовой скорости в вакууме. Таким образом, например, любой электрон, проходящий через воду и имеющий кинетическую энергию, равную по крайней мере 0,26 МэВ, будет генерировать черенковское излучение. Сборки облученного топлива являются сильным источником бета-частиц, гамма-квантов и

нейтронов. Все три вида излучения могут непосредственно или косвенно образовывать черенковское излучение.

Наиболее значительное образование черенковского излучения происходит от высокоэнергетического гамма-излучения продуктов деления, которое взаимодействует с оболочкой топлива или водой из бассейна выдержки. При этом взаимодействии образуются электроны и позитроны в результате комптоновского рассеяния или других процессов. Расчеты количества фотонов черенковского излучения, генерируемых из этих бета-частиц, показывают, что образование черенковского излучения в диапазоне длин волн видимого света от 4000 до 6000 ангстрем (4×10^{-7} до 6×10^{-7} м) пренебрежительно мало для гамма-квантов с энергией ниже 0,5 МэВ, но резко увеличивается с повышением энергии. Гамма-кванты с энергией 2 МэВ производят в 500 раз больше фотонов черенковского излучения по сравнению с гамма-квантами с энергией 0,6 МэВ.

Общий уровень черенковского излучения и его затухание во времени связаны с выгоранием. Сокрытие переключения ядерного материала либо путем подмены топливных сборок холостыми, либо неправильно заявленным значением выгорания затруднительно, если можно точно измерить интенсивность черенковского излучения.

18.3.3 Интенсивность гамма-излучения отдельных продуктов деления

Образование определенных продуктов деления может быть использовано в качестве количественной меры выгорания. Полная интенсивность гамма-излучения определенного продукта деления может служить средством контроля выгорания, если удовлетворяются следующие условия [11]:

1. Продукт деления должен иметь равные выходы на деление основных делящихся изотопов урана и плутония. Если выходы сильно отличаются, то эффективный выход будет зависеть частично от характера протекания процесса в реакторе.

2. Сечение захвата нейтронов продуктом деления должно быть достаточно малым, чтобы концентрация исследуемого продукта деления была обусловлена только делением тяжелого элемента, а не вторичными реакциями захвата нейтронов.

3. Период полураспада продукта деления должен быть длительным по сравнению со временем облучения топлива, чтобы количество образованного продукта деления было приблизительно пропорционально числу делений.

4. Гамма-кванты продуктов деления должны обладать относительно высокой энергией (500 кэВ или больше), чтобы они могли покинуть топливный стержень. Для стержня оксидного топлива диаметром 1 см 39 % гамма-квантов изотопа ^{137}Cs с энергией 662 кэВ поглощаются внутри стержня. Это сильное поглощение приводит к тому, что измерение пассивного гамма-излучения тепловыделяющих сборок практически ограничивается внешними рядами стержней. Следующая сложность заключается в том, что неравномерный поток нейтронов во время облучения может привести к неравномерному выгоранию внутри сборки. Это особенно верно для тепловыделяющих сборок реактора BWR, так как две стороны каждой сборки примыкают к регулирующим пластинам.

Если вышеуказанные условия выполняются, измеренная интенсивность гамма-излучения I (имп./с) продукта деления пропорциональна числу ядер продукта деления N, образованных во время облучения топлива:

$$I = \varepsilon k S N \lambda e^{-\lambda T}, \qquad (18.2)$$

где ε — полная эффективность детектора;
k — квантовый выход;
S — поправка на ослабление;
λ — интенсивность распада продуктов деления;
T — время охлаждения.

После решения уравнения (18.2) относительно N, выгорание топлива может быть рассчитано из уравнения

$$\text{Выгорание в ат.\%} = 100 \times (N / Y) / U, \qquad (18.3)$$

где Y — эффективный выход продуктов деления;
U — число исходных атомов урана.

Цезий-137 — наиболее широко применяемый индикатор выгорания топлива, так как сечение поглощения им нейтронов пренебрежимо мало, выходы на деление ^{235}U и ^{239}Pu приблизительно равны, а 30-летний период полураспада делает необязательным введение поправки на изменение во времени мощности реактора. На рис. 18.5 показано расчетное накопление изотопа ^{137}Cs для тепловыделяющей сборки реактора PWR с глубиной выгорания 46,8 ГВт·сут/т U, рассмотренной в разделе 18.2.3. Накопление ^{137}Cs имеет приблизительно линейный характер по всему диапазону выгорания. Сравнение измеренной активности ^{137}Cs с выгоранием приводится в разделе 18.4.3. Существующий опыт с контролем выгорания

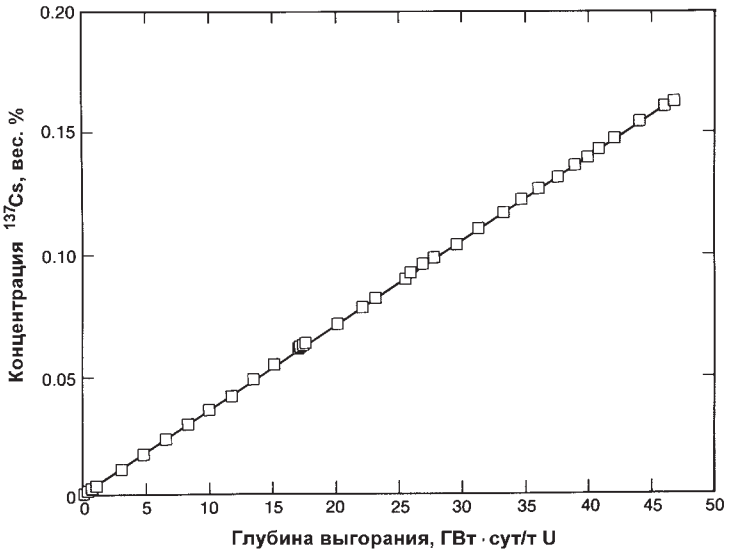

Рис. 18.5. *Расчетная зависимость концентрации продукта деления ^{137}Cs, выраженная в процентах от исходной концентрации урана при глубине выгорания тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3, равной 46,8 ГВт·сут/т U*

^{137}Cs показывает, что измерение абсолютной активности ^{137}Cs может определить выгорание с точностью от 1 до 4 % для отдельных ТВЭЛов.

Для измерения гамма-излучения выщелоченных отходов переработки отработанных ТВЭЛов гамма-линия ^{144}Ce-Pr с энергией 2186 кэВ является более предпочтительной, чем гамма-линия ^{137}Cs с энергией 662 кэВ, благодаря ее большей проникающей способности и потому, что ^{144}Ce-Pr менее восприимчив к выщелачиванию во время растворения топлива.

18.3.4 Полная интенсивность гамма-излучения

Полная интенсивность гамма-излучения облученного топлива является суммой интенсивностей излучения каждого продукта деления и трансуранового элемента, полученных из уравнения, аналогичного уравнению (18.2). Большая часть интенсивности гамма-излучения определяется несколькими важными продуктами деления. Вклад каждого продукта деления в общую интенсивность изменяется со временем охлаждения, как это проиллюстрировано в примере, представленном на рис. 18.6. Для времени охлаждения, большем чем 1 год, полная интенсивность гамма-излучения приблизительно пропорциональна выгоранию. Для более коротких времен охлаждения эта зависимость не выдерживается, потому что полная интенсивность гамма-излучения в большей степени определяется накоплением и распадом короткоживущих продуктов деления, подобных ^{95}Nb и ^{95}Zr. Концентрация этих изотопов зависит частично от характера протекания рабочего процесса реактора и близости материалов стержней регулирования реактора. После более продолжительного времени охлаждения короткоживущие изотопы распадаются, а отклик детектора в первую очередь определяется долгоживущими изотопами, концентрация которых в меньшей степени зависит от характера протекания рабочего процесса и других факторов.

Наиболее быстрый способ определения достоверности заявленных оператором значений выгорания и времени охлаждения был разработан с использованием полной интенсивности гамма-излучения [12 и 13]. Полная интенсивность гам-

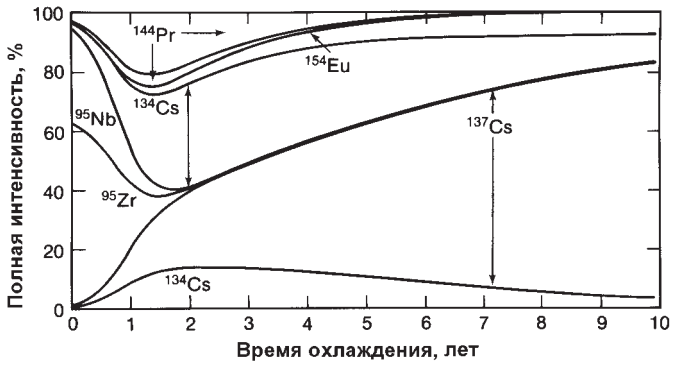

Рис. 18.6. *Пример изменения интенсивности гамма-излучения продуктов деления в зависимости от времени охлаждения. Интенсивность основных гамма-линий каждого продукта деления представлена в виде относительного вклада в полную интенсивность. Обратите внимание, что изотопы ^{144}Pr и ^{134}Cs имеют две основные гамма-линии. Кривые основаны на измерениях тепловыделяющей сборки реактора PWR с глубиной выгорания 12,18 ГВт·сут/т U и временем охлаждения 2 года. Экстраполяция для более продолжительных и более коротких времен охлаждения сделана расчетным путем*

ма-излучения делится на заявленное выгорание и выражается графической зависимостью от заявленных времен охлаждения. Результатом является зависимость в виде формулы aT^b, где a и b — масштабные параметры, а T — время охлаждения. Пример этой зависимости для тепловыделяющих сборок реактора PWR приводится на рис. 18.7. Форма кривой в первую очередь обусловлена периодом полураспада изотопов ^{134}Cs и ^{137}Cs.

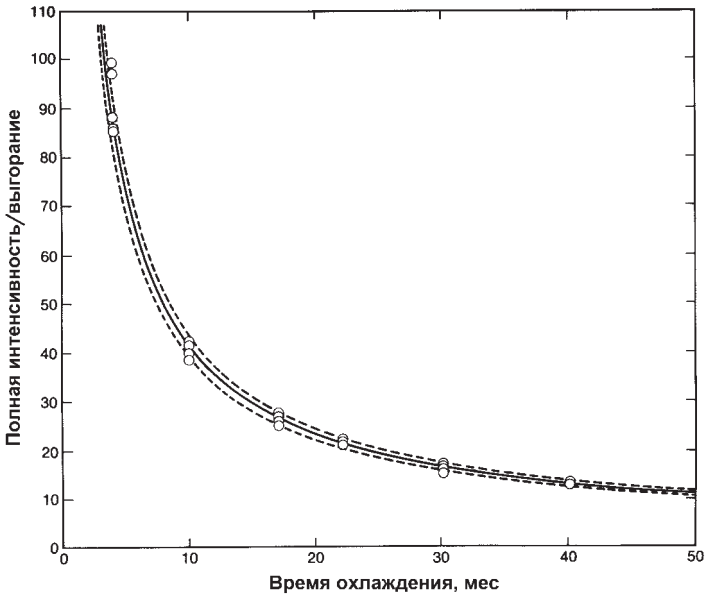

Рис. 18.7. *Измеренная полная интенсивность, деленная на выгорание, в зависимости от времени охлаждения для тепловыделяющих сборок реактора PWR. Аппроксимирующая кривая иллюстрирует, как полная интенсивность может быть использована для проверки достоверности заявленных оператором значений выгорания и времени охлаждения*

18.3.5 Отношение активностей продуктов деления

Выгорание облученного топлива может также определяться из отношений концентраций некоторых изотопов продуктов деления. Отношения изотопов можно определять из отношений интенсивностей гамма-излучений, применяя уравнения, аналогичные уравнению (18.2). Двумя наиболее широко применяемыми изотопными отношениями являются отношения $^{134}Cs/^{137}Cs$ и $^{154}Eu/^{137}Cs$.

^{134}Cs образуется при захвате нейтронов изотопом ^{133}Cs, следовательно, для его образования требуются два нейтронных взаимодействия. В первом — нейтрон вызывает деление урана или плутония, а вторым является реакция $^{133}Cs(n,\gamma)$. Так как эти взаимодействия являются основным источником образования ^{134}Cs, концентрация ^{134}Cs в топливе приблизительно пропорциональна квадрату интегрального потока нейтронов. Разделив концентрацию изотопа ^{134}Cs на концентрацию ^{137}Cs, которая прямо пропорциональна интегральному потоку, отношение становится приблизительно пропорциональным выгоранию (полному потоку). Это — упрощенное объяснение, так как существуют и другие факторы, такие, как спектральная зависимость сечения (n,γ), которые должны учитываться для уста-

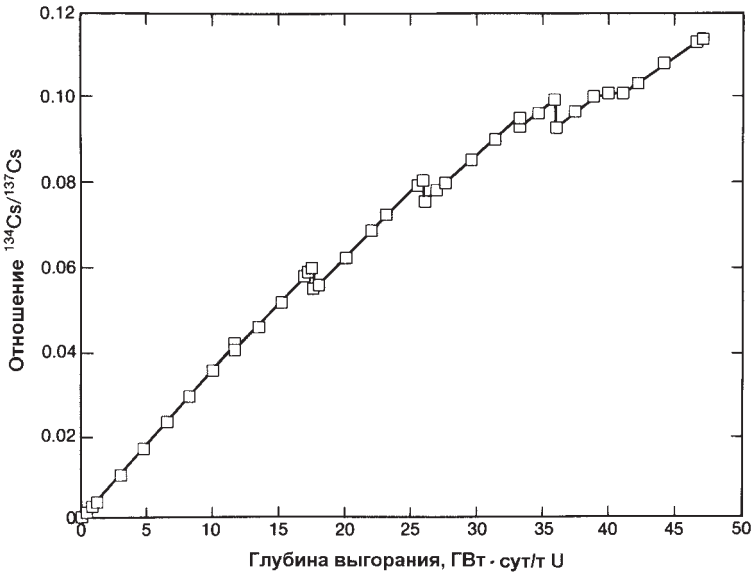

Рис. 18.8. *Расчетная зависимость отношения изотопов $^{134}Cs/^{137}Cs$ от глубины выгорания для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3. Скачки кривой обусловлены перерывами в процессе работы реактора*

новления более точного отношения. Однако практически отношение изотопов $^{134}Cs/^{137}Cs$ хорошо работало для определения выгорания для топливных материалов как легководного реактора, так и быстрого реактора-размножителя [14 и 15]. Отношение изотопов $^{154}Eu/^{137}Cs$ также имеет почти линейную зависимость от удельной глубины выгорания [8 и 16].

На рис. 18.8 показано расчетное отношение изотопов $^{134}Cs/^{137}Cs$ в виде функции глубины выгорания тепловыделяющей сборки реактора PWR с глубиной выгорания 46,8 ГВт·сут/т U, описанной в разделе 18.2.3. Скачки на кривой рис. 18.8 обусловлены скачками в характере протекания рабочего процесса реактора, что подчеркивает тот факт, что для применения изотопного отношения требуется введение поправки, учитывающей распад изотопов. Эта поправка важна для отношения $^{134}Cs/^{137}Cs$ из-за 2,06-летнего периода полураспада ^{134}Cs. Для отношения изотопов $^{154}Eu/^{137}Cs$ 8,5-летний период полураспада изотопа ^{154}Eu и 30,2-летний период полураспада ^{137}Cs делают поправку менее важной. Вообще градуировочные кривые рассчитываются ко времени выгрузки сборки, чтобы устранить влияние различных интенсивностей распада продуктов деления. Было предложено несколько методик определения поправок на время охлаждения путем исследования определенных отношений изотопов [13, 16-18].

Для полевых измерений намного легче определить отношения активностей продуктов деления, нежели абсолютные активности, поскольку должны быть известны только относительные эффективности детектора. Однако необходимо проводить поправку на изменения эффективности регистрации с энергией гамма-излучения. Гамма-кванты изотопов ^{134}Cs, ^{137}Cs и ^{154}Eu имеют разные энергии и, следовательно, различные эффективности регистрации. Градуировка относительной эффективности может быть выполнена, используя множественные гамма-кванты изотопов ^{134}Cs и ^{154}Eu; процедура идентична той, что описана в разде-

ле 8.4.1 главы 8 для определения кривой относительной эффективности для измерений изотопного состава плутония. Градуировка позволяет получить относительную эффективность регистрации соответствующих гамма-квантов, используя только спектр исходного гамма-излучения.

18.3.6 Полный выход нейтронов

Измерение полного выхода нейтронов из облученного топлива может также служить в качестве индикатора выгорания и имеет как преимущества, так и недостатки по сравнению с измерением интенсивности гамма-излучения. Нейтронный сигнал приходит только из топлива, а не из материала оболочки ТВЭЛа. Ослабление нейтронов внутри тепловыделяющей сборки меньше, чем ослабление гамма-излучения; фактически, вынужденные деления внутри сборки приводят к приблизительно равным откликам внутренних и внешних топливных стержней. Измерения нейтронов могут быть сделаны сразу после выгрузки топлива из реактора, в то время, как сигнал гамма-излучения еще определяется в первую очередь распадом короткоживущих изотопов, которые отражают недавние уровни мощности реактора. Недостатки нейтронного сигнала заключаются в том, что количество изотопов, испускающих первичные нейтроны, косвенно коррелирует с глубиной выгорания. Кроме того, в принципе, детекторы нейтронов чувствительны к гамма-излучению, хотя камеры делений, используемые сейчас для измерений, практически почти полностью нечувствительны к нему.

Пять основных источников нейтронов в тепловыделяющей сборке реактора PWR с типичной глубиной выгорания 31,5 ГВт·сут/т U показаны на графике рис. 18.9 в виде функции времени охлаждения. Для других тепловыделяющих

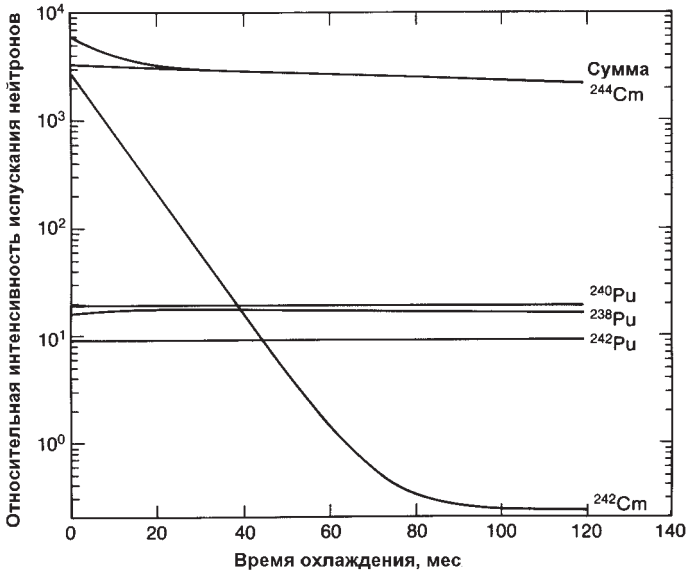

Рис. 18.9. *Пять основных источников нейтронов в тепловыделяющей сборке реактора PWR с глубиной выгорания 31,5 ГВт·сут/т U. При длительном времени охлаждения распад ^{242}Cm следует за распадом его материнского изотопа ^{242m}Am, метастабильного состояния ^{242}Am с периодом полураспада 153 года*

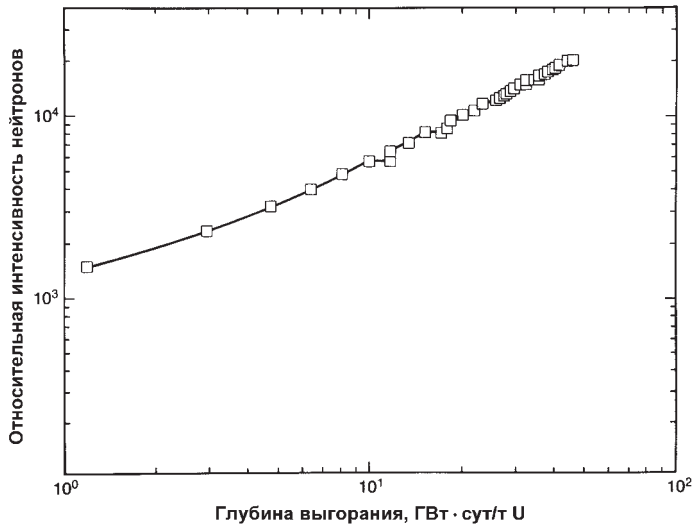

Рис. 18.10. *Расчетная зависимость полного выхода нейтронов от глубины выгорания для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3*

сборок или других уровней выгорания, изотопы ^{241}Am или ^{246}Cm также могут быть значительными источниками нейтронов. Однако двумя доминирующими изотопами, испускающими нейтроны, обычно являются ^{244}Cm и ^{242}Cm. Из-за коротких периодов полураспада этих двух изотопов (18,1 и 0,45 года, соответственно) время охлаждения топлива должно быть известно для того, чтобы правильно интерпретировать полный выход нейтронов. Значения времени охлаждения, заявленные оператором, могут быть проверены путем измерения полной интенсивности гамма-излучения, как описано в разделе 18.3.4.

На рис. 18.10 показана расчетная зависимость между полным выходом нейтронов и глубиной выгорания для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3. Свыше значения глубины выгорания, равного 10 ГВт·сут/т U, зависимость может быть аппроксимирована следующей эмпирической степенной функцией:

$$\text{Скорость счета нейтронов} = \alpha\,(\text{глубина выгорания})^{\beta}. \qquad (18.4)$$

Справедливость уравнения (18.4) доказана для большого разнообразия топлива легководных реакторов [19-22] и делает возможным определение выгорания, измеряя полный выход нейтронов. Значения β обычно лежат между 3,0 и 4,0.

Скорость накопления основных трансурановых изотопов, испускающих нейтроны, относительно нечувствительна к плотности исходного топлива и уровню мощности; однако исходное обогащение изотопом ^{235}U и предыстория облучения топлива могут значительно повлиять на интенсивность накопления этих изотопов. На рис. 18.11 показано влияние исходного обогащения ^{235}U на скорость испускания нейтронов (эффекты ослабления и размножения не учитывались при определении этих величин). Для идентичной глубины выгорания низкообогащенное топливо имеет более высокую скорость испускания нейтронов. Низкообогащенное топливо имеет меньше делящегося материала на единицу объема и, следовательно, требует более высокого флюенса нейтронов для того, чтобы до-

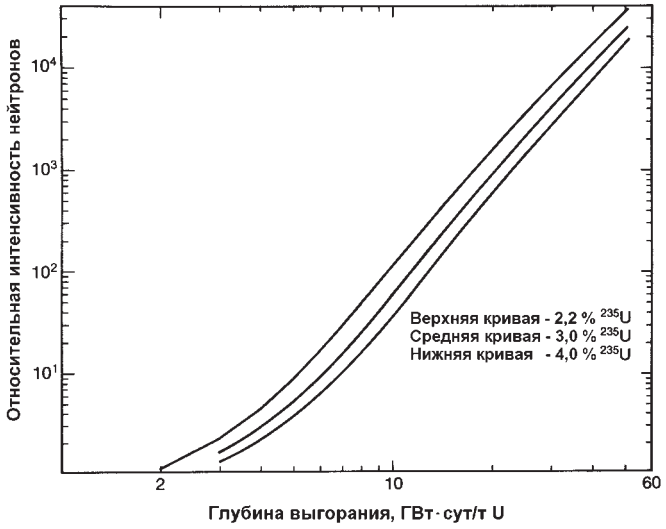

Рис. 18.11. *Расчетная зависимость полного выхода нейтронов от исходного обогащения топлива для идентичных значений глубины выгорания. Расчеты сделаны для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3*

стигнуть того же выгорания, что и высокообогащенное топливо. Более высокий флюенс нейтронов приводит к большему накоплению ^{242}Cm и ^{244}Cm и, соответственно, более высокой интенсивности испускания нейтронов.

Цикличные предыстории облучения могут также оказывать значительное влияние на интенсивность испускания нейтронов, как это показано кривыми, представленными на рис. 18.12. Влияние цикличной предыстории облучения

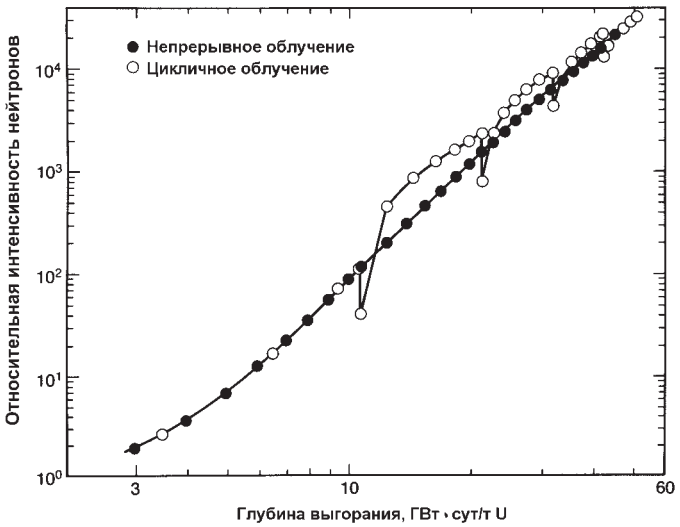

Рис. 18.12. *Расчетная зависимость полного выхода нейтронов от предыстории эксплуатации реактора для тепловыделяющей сборки реактора PWR, описанной в разделе 18.2.3. Непрерывная 5-летняя предыстория облучения (темные кружки) сравнивается с цикличной предысторией чередования облучения и охлаждения (светлые кружки)*

кратковременно, благодаря, в первую очередь, повышенному образованию ^{242}Cm, следующему за любым периодом времени охлаждения. В течение любого периода, свободного от облучения, ^{241}Pu (период полураспада 14,35 г.) распадается, образуя ^{241}Am (период полураспада 433,6 г.). Когда этот материал повторно оказывается под действием нейтронного потока, образуются большие количества ^{242}Cm путем захвата нейтронов изотопом ^{241}Am. Если топливо было бы измерено после более продолжительного времени охлаждения (~2 лет), большая часть ^{242}Cm распалась бы, и измеренные скорости испускания нейтронов более бы соответствовали скоростям, полученным для материала топлива, которое подвергалось непрерывному облучению.

18.4 ГАММА-ИЗМЕРЕНИЯ ОБЛУЧЕННОГО ТОПЛИВА

18.4.1 Измерения полной интенсивности гамма-излучения

Полная интенсивность гамма-излучения погруженной в воду ТВС может быть измерена ионизационными камерами, сцинтилляторами или термолюминесцентными дозиметрами (ТЛД). Ионизационные камеры и сцинтилляторы обеспечивают непосредственное считывание показаний всего за 1-2 мин, необходимые для установки детекторов и сбора данных. Термолюминесцентные дозиметры необходимо вытаскивать из воды и снимать показания с помощью специальной аппаратуры. На рис. 18.13 представлена геометрия, применяемая для гамма-измерений облученных ТВС, и показана ионизационная камера, размещенная в верхней части тепловыделяющей сборки.

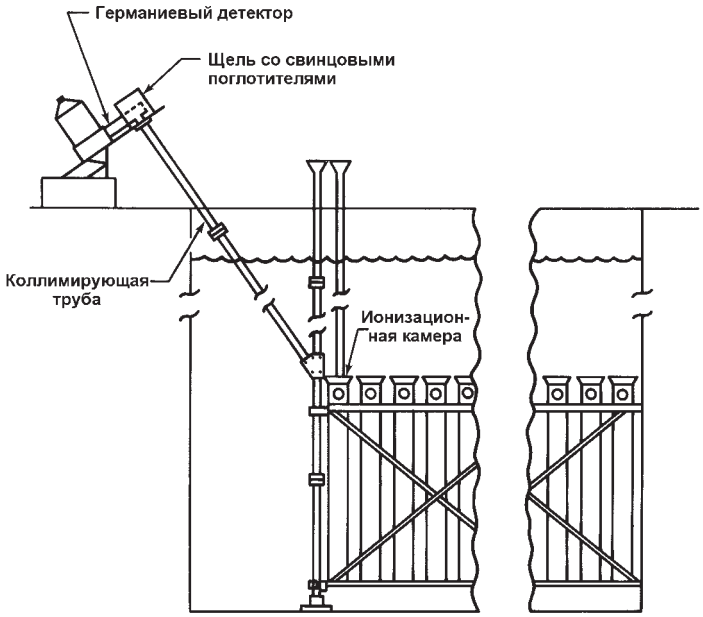

Рис. 18.13. *Гамма-измерения облученного топлива в бассейне выдержки. На рисунке показан германиевый детектор высокого разрешения с коллимирующей трубой и ионизационной камерой, установленной сверху бассейна выдержки. При проведении измерений тепловыделяющая сборка поднимается вертикально*

Когда полная интенсивность гамма-излучения измеряется в верхней части ТВС, то сигнал определяется в первую очередь продуктами активации ^{60}Co, ^{58}Co и ^{54}Mn в материалах конструкции. Когда тепловыделяющая сборка поднимается со стеллажа бассейна выдержки, но все еще остается в воде, то измерения полной интенсивности гамма-излучения могут быть проведены вдоль сборки. В этом случае сигнал обусловлен в основном продуктами деления в тепловыделяющих элементах. В этих условиях достоверность заявленных оператором значений времени охлаждения и выгорания проверяется с точностью около 10 %. ТВС с необычными предысториями облучения легко идентифицируются. Ионизационная камера, спроектированная для размещения напротив боковой стороны ТВС, объединена с вилочным детектором, описанным в разделе 18.5.

18.4.2 Измерения интенсивности высокоэнергетического гамма-излучения

Более точные гамма-измерения могут быть проведены детектором на базе Be(γ,n). Такой детектор состоит из ^{235}U-камеры деления, окруженной полиэтиленом, который в свою очередь окружен бериллием. Нейтроны, образованные в фотонейтронной реакции в бериллии, замедляются в полиэтилене до тепловой энергии и регистрируются камерой деления. Так как порог образования фотонейтрона в бериллии равен 1665 кэВ, единственной значительной характеристикой продуктов деления, регистрируемой детектором, является гамма-излучение ^{144}Ce-Pr с энергией 2186 кэВ.

Если детектор Be(γ,n) размещается вдоль материалов облученного топлива, то он будет измерять относительную активность продуктов деления ^{144}Ce-Pr и будет нечувствителен к низкоэнергетическим продуктам активации. Подобно другим гамма-детекторам, этот детектор бесполезен при размещении его сверху облученной тепловыделяющей сборки, потому что гамма-излучение экранируется материалами конструкции. Нейтроны, излучаемые топливом или образованные в бериллии при реакциях (n,2n), могут давать вклад в измерения фотонейтронов, если их количество значительно.

18.4.3 Гамма-спектрометрия высокого разрешения

Наиболее подробную информацию о выгорании топлива можно получить с помощью гамма-спектрометрии высокого разрешения. Концентрацию конкретных продуктов деления можно определить, измеряя активности отдельных продуктов деления; эти концентрации изотопов могут быть соотнесены с выгоранием топлива (см. раздел 18.3.3). Кроме того, некоторые отношения активностей (интенсивностей гамма-излучения) можно использовать для расчета изотопных отношений продуктов деления, которые могут быть соотнесены с выгоранием (см. раздел 18.3.5).

Целью гамма-измерений высокого разрешения является получение спектров гамма-излучения, которые точно представляют инвентарное количество продуктов деления и активацию всей тепловыделяющей сборки. Аппаратура, необходимая для выполнения этих измерений, более сложная, чем та, которая требуется для измерения полной интенсивности гамма-излучения или измерения черенковского излучения. Для сбора и анализа спектров требуется германиевый детектор со стандартным усилителем с высокой разрешающей способностью и многоканальный анализатор. Магнитный носитель также весьма желателен для записи

данных. Германиевый детектор наблюдает за погруженной в воду ТВС через длинный, заполненный воздухом коллиматор (с минимальной длиной 3 м для защиты от излучения), как показано на рис. 18.13. Оператор для проведения измерений подводит отдельные тепловыделяющие сборки к сканирующей системе.

Заполненный воздухом коллиматор выделяет сегмент из объема ТВС, гамма-спектр которого измеряется. Благодаря своей длине, коллиматор снижает мощность дозы у детектора до приемлемого уровня. Максимальная мощность дозы, полученная с коллиматором длиной 6 м и диаметром 5 см от топлива с глубиной выгорания 40 ГВт·сут/т U с двухлетним сроком охлаждения, составляет около 10 мР/ч. Обычно уровень радиационного фона находится приблизительно в том же диапазоне. Германиевый детектор необходимо экранировать от радиационного фона, иначе детектор потеряет чувствительность к гамма-излучению ТВС. Кроме того, перед детектором можно поместить тонкие пластины свинца, меди и кадмия, чтобы уменьшить интенсивность излучения ТВС.

Самоослабление излучения топливного материала может значительно повлиять на измеряемые сигналы. Например, как обсуждалось в разделе 18.3.5, для определения выгорания ТВС можно использовать отношение изотопов $^{154}Eu/^{137}Cs$. Почти 92 % измеренного излучения изотопа ^{137}Cs (661,6 кэВ) возникает в трех наружных рядах топливных стержней в тепловыделяющей сборке реактора PWR [23]. Так как только 78 % квантов ^{154}Eu (1275 кэВ) возникает в этих трех наружных рядах, то по отношению $^{154}Eu/^{137}Cs$ нельзя точно охарактеризовать тот же самый сегмент объема ТВС.

Если требуются только относительные значения, то анализ данных измерений с высоким разрешением не труден. Итоговые площади пиков ^{137}Cs, ^{1347}Cs и ^{154}Eu можно получить с помощью многоканального анализатора. Концентрации и отношения изотопов можно получить, используя уравнение (18.2). Для отношений изотопов можно получить поправки на относительную эффективность, используя градуировку относительной эффективности, как описано в разделе 18.3.5 [24-26]. Эта методика корректирует отличия в самоослаблении материалов источника, эффективности детекторов и геометрии сканирования. Кроме того, стандартные методы анализа требуют внесения поправок, учитывающих распад изотопов к моменту выгрузки из реактора или к какому-либо другому конкретному времени. Затем можно построить график концентрации ^{137}Cs и изотопных отношений $^{134}Cs/^{137}Cs$ и $^{154}Eu/^{137}Cs$ для партии ТВС, чтобы получить относительные значения выгорания. Если доступен хотя бы один способ разрушающего анализа топлива, можно рассчитать абсолютные значения выгорания.

Во многих отчетах (например, [16 и 27]) описывается применение гамма-излучения для определения характеристик облученных топливных материалов. Два таких практических примера представлены на рис. 18.14 и 18.15, на которых сравниваются активность ^{137}Cs и отношение изотопов $^{134}Cs/^{137}Cs$ с выгоранием для 14 ТВС реактора PWR с глубиной выгорания от 16 до 33 ГВт·сут/т U. Каждый набор данных анализировался с помощью регрессионного анализа для получения линейной зависимости. Другие две линии на каждом графике представляют пределы 95 % доверительной вероятности; результат любого последующего измерения будет лежать в этих пределах. Средняя разность между линией регрессии и точками результатов измерений составила 4,9 % для ^{137}Cs и 4,6 % для $^{134}Cs/^{137}Cs$. Похожие величины с погрешностью от 4 до 8 % можно получить для большинства условий измерений.

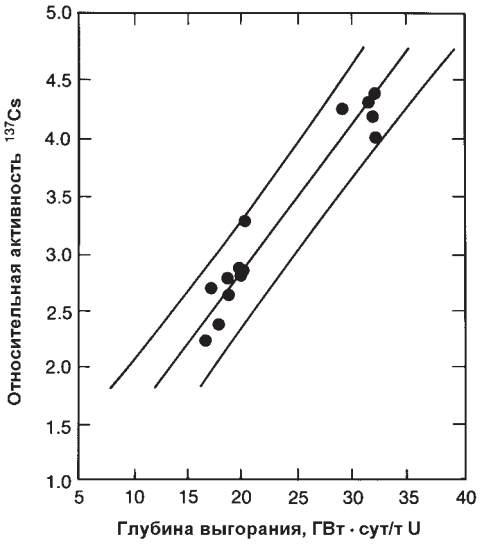

Рис. 18.14. *Корреляция измеренной активности ^{137}Cs (произвольные единицы) с заявленной оператором глубиной выгорания для 14 сборок реактора PWR [16]*

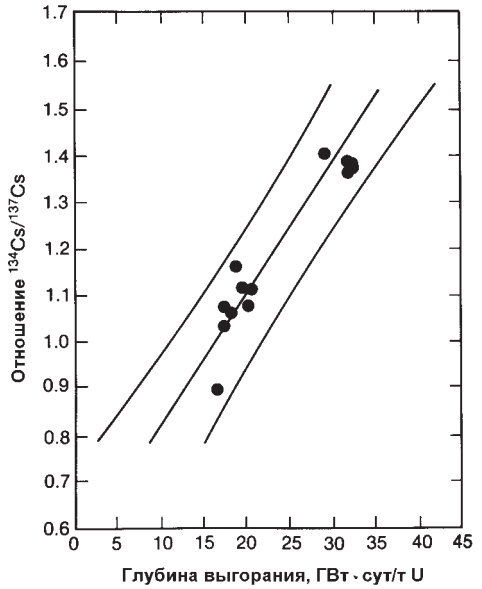

Рис. 18.15. *Корреляция измеренного отношения изотопов ^{134}Cs/^{137}Cs с заявленной оператором глубиной выгорания для 14 сборок реактора PWR [16]*

18.4.4 Измерения черенковского излучения

Измерение черенковского излучения обеспечивает быстрый неразрушающий метод для проверки наличия источника гамма-излучения, распределенного внутри ТВС. Также это измерение можно использовать для обнаружения отсутствия топливного стержня в ТВС. Тепловыделяющие сборки можно контролировать и без размещения какой-либо аппаратуры в воде бассейна выдержки. Однако большую часть искусственного освещения необходимо выключить, чего оператор установки не может допустить. Когда искусственное освещение может быть вы-

ключено, инспектор должен перемещаться практически в темноте, чтобы провести измерения. Поэтому черенковский прибор должен: а) быть легким и переноситься в руке; б) обеспечивать незамедлительный результат измерений; в) быть радиационностойким и г) иметь точность, гарантирующую приемлемые результаты измерений для инвентаризации топлива.

На рис. 18.16 показан прибор, который способен как регистрировать черенковское свечение, так и определять его интенсивность [10]. Прибор состоит из двух основных составных частей: элементов, усиливающих изображение, и электронно-оптического блока, в котором используется трубка фотоумножителя для измерения интенсивности света, проходящего через диафрагму и полевую линзу. Ток на выходе трубки фотоумножителя обеспечивает цифровую индикацию интенсивности поступающего света. Градуировка прибора производится с применением источника света на базе углерода-14 и фосфора, встроенного в специальную головку линзы.

Рис. 18.16. *Переносной прибор наблюдения черенковского свечения облученного топлива и определения его интенсивности. Прибор (справа) является адаптацией промышленного прибора ночного видения (слева)*

Когда прибором производят горизонтальное сканирование вдоль верхней части сборки, контур изображения очень четкий из-за весьма коллимированного характера черенковского излучения. Для топлива, хранящегося в стандартных вертикальных сборках, отверстия в верхних и поперечных пластинах и промежутки между топливными стержнями служат в качестве каналов черенковского излучения. Эти каналы позволяют излучению проходить через всю длину тепловыделяющей сборки, подвергаемой проверке сверху. Был выполнен ряд измерений в хранилищах для демонстрации полезности метода для быстрой проверки облученных тепловыделяющих сборок [10]. На рис. 18.17 показано изображение черенковского излучения двух ТВС реактора PWR, установленных на стеллаже реакторного бассейна выдержки. Светлые пятна соответствуют каналам вывода свечения из тепловыделяющей сборки с 15×15 стержнями. Смежные ТВС не показывают одинаковые группы светлых пятен, потому что наблюдатель не находится на одной прямой с осями сборок.

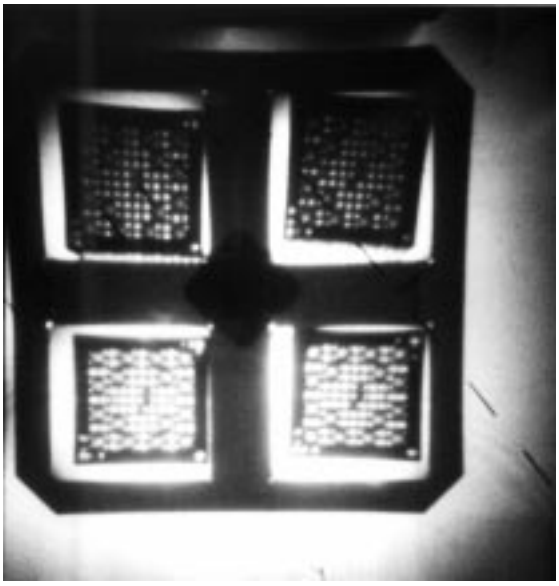

Рис. 18.17. *Изображение черенковского свечения двух тепловыделяющих сборок реактора PWR в бассейне выдержки реактора*

Измерения черенковского свечения менее восприимчивы к действию смежных сборок, чем измерения интенсивности гамма-излучения, сделанные в верхней части сборок [28]. Это происходит потому, что черенковский свет проходит по каналам вверх по всей длине сборки, в то время как гамма-измерения, сделанные в верхней части, главным образом обусловлены активацией элементов конструкции. Пространственное распространение черенковского свечения, окружающего изолированную облученную сборку в воде, определяется гамма-излучением из наружных стержней сборки. Толщина воды, необходимая для снижения интенсивности гамма-квантов с энергией 1 МэВ в десять раз, составляет ~36 см, что является приемлемой оценкой черенковской "короны" вокруг изолированного точечного источника. Однако излучение продуктов деления из внутренних стержней сборки должно проникнуть в более плотный состав оболочки топлива и промежуточную воду, которая значительно снижает перекрестное действие стержней.

18.5 НЕЙТРОННЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ ОБЛУЧЕННОГО ТОПЛИВА

Нейтронные измерения облученного топлива относительно просты и могут обеспечить быстрое определение выгорания. Оборудование для детектирования довольно простое и его обслуживание не представляет особых трудностей, а предварительный анализ данных может быть выполнен и на самой установке. Детектор нейтронов размещается в непосредственной близости от ТВС, а сигнал анализируется с помощью одноканального анализатора. Предпочтительным детектором является камера деления на базе ^{235}U, благодаря ее нечувствительности к гамма-излучению. Хотя нейтроны более легко, чем гамма-кванты, могут проникнуть в ТВС, их ослабление в воде более сильное. Поток гамма-излучения уменьшается в воде в 10 раз на расстоянии приблизительно 36 см, в то время как нейтронный

поток снижается в 10 раз на расстоянии около 10 см. Таким образом, становится важным размещение детектора нейтронов вблизи ТВС.

18.5.1 Вилочный детектор и блок электроники ION-1

На рис. 18.18 проиллюстрирована система измерения нейтронов, разработанная для инспекторов системы гарантий [29 и 30]. Эта система спроектирована для измерения полного потока нейтронов и полной интенсивности гамма-излучения погруженной в воду тепловыделяющей сборки. На рис. 18.19 показаны два основных компонента: вилочный детектор и блок электроники ION-1.

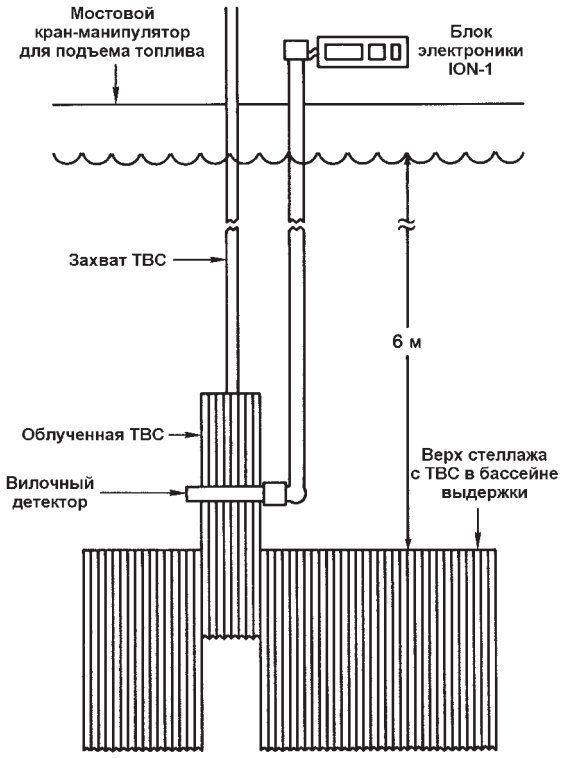

Рис. 18.18. *Схема измерительной системы для проведения измерений полного нейтронного и полного гамма-излучения от облученного топлива. Система состоит из блока электроники ION-1, длинной стрелы с кабелем и вилочного детектора*

Вилочный детектор представляет собой водонепроницаемый полиэтиленовый детектор, содержащий две группы ионизационных камер и камер деления для одновременного измерения ТВС с двух противоположных сторон. Каждое плечо содержит ионизационную камеру, работающую в токовом режиме для измерения полного выхода гамма-квантов, и две камеры деления, работающие в импульсном режиме для измерения полного выхода нейтронов. В каждом плече одна из камер деления обернута оболочкой из кадмия, а другая — без оболочки. Если необходимо определить содержание бора в воде (обычно 2000 млн.$^{-1}$) для корректировки скорости счета нейтронов, то это можно сделать, определив отношение числа импульсов в камере деления без оболочки к числу импульсов в покрытой кадмием камере [31 и 32]. Вилочный детектор выпускается в двух различ-

Рис. 18.19. *Блок электроники ION-1 и вилочный детектор*

ных конфигурациях, одна — для сборок реактора PWR, а другая — для сборок реактора BWR.

Блок электроники ION-1 — это микропроцессорный блок с питанием от аккумулятора, который выполняет внутреннюю диагностику и помогает инспектору в сборе и анализе данных [33]. Если измерения необходимо сделать вдоль вертикальной оси тепловыделяющей сборки для того, чтобы получить профиль выгорания по оси, ION-1 позволяет инспектору провести процедуру пошагового сканирования.

Большинство измерений с блоком электроники ION-1 и вилочным детектором проводятся только посередине тепловыделяющей сборки. В среднем от 5 до 7 мин требуется для того, чтобы 1) установить мостовой кран -манипулятор, поднимающий топливо; 2) приподнять тепловыделяющую сборку со стеллажа бассейна; 3) выполнить измерения и 4) опустить тепловыделяющую сборку на стеллаж бассейна выдержки. Включая время на сборку и разборку оборудования, процедура измерений в бассейне выдержки реактора обычно занимает от 2 до 3 дней. С хорошей градуировкой вилочный детектор может определить выгорание отдельных тепловыделяющих сборок с точностью около 5 %.

18.5.2 Нейтронные измерения выгорания

На рис. 18.20 показаны результаты измерений в хранилище облученного топлива реактора BWR. Измеренная интенсивность нейтронов 36 тепловыделяющих сборок BWR показана на графике в зависимости от заявленной глубины выгорания, которая изменяется от 8,5 до 29 ГВт·сут/т U. Видно, что результат измерений одной ТВС с цикличным облучением четко идентифицируется как выброс. Эта отдельная ТВС была облучена до уровня 18,0 ГВт·сут/т U, находилась в бассейне выдержки в течение 3 лет, а затем была возвращена в реактор для дополнительного облучения еще на 3 ГВт·сут/т U. В течение трехлетнего промежутка вре-

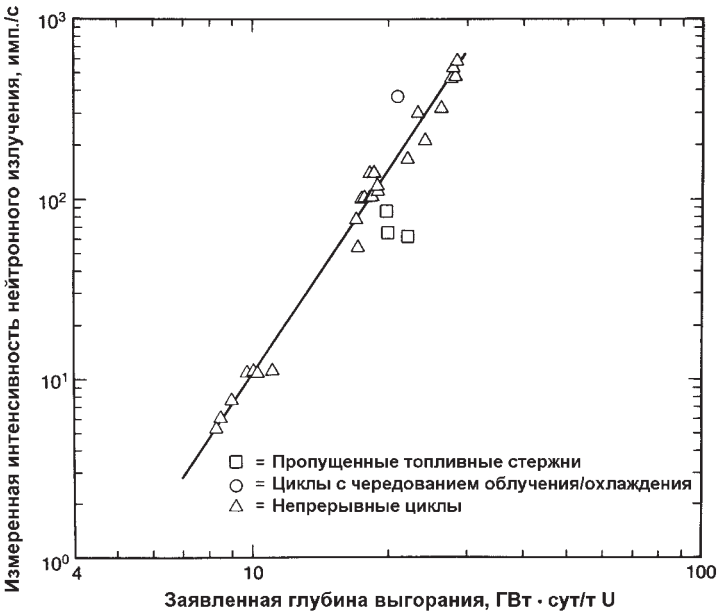

Рис. 18.20. *Зависимость измеренной интенсивности нейтронного излучения 36 тепловыделяющих сборок реактора BWR от заявленной глубины выгорания. Сплошная линия представляет собой степенную функцию, описывающую экспериментальные данные*

мени между облучениями, ^{241}Pu распался с образованием ^{241}Am, который, в свою очередь, привел к образованию большого количества изотопа ^{242}Cm при повторной загрузке топлива в реактор (см. раздел 18.3.6).

Три других точки данных на рис. 18.20 лежат значительно ниже аппроксимирующей линии. Эти ТВС были собраны из других сборок, имеющих различные значения глубины выгорания. Кроме того, несколько топливных стержней из каждой ТВС были пропущены. Оба этих фактора внесли вклад в снижение измеренной интенсивности испускания нейтронов. Если пересобранные сборки и сборки с цикличной предысторией облучения исключаются из анализа данных, то существует средняя разность в 30 % между заявленным значением глубины выгорания и значениями, полученными из функционального соотношения между скоростью счета и глубиной выгорания (уравнение (18.4)). Эта степенная функция была определена путем подгонки методом наименьших квадратов по экспериментальным данным, и значение β составило 3,7. Путем поправки на время охлаждения, данные по сборке с цикличной предысторией облучения могут быть также хорошо согласованы.

На рис. 18.21 показаны результаты нейтронных измерений, сделанных на хранилище топлива реактора PWR. Отклик 17 ТВС построен в виде функции заявленной глубины выгорания, которая изменялась от 25 до 35 ГВт·сут/т U. Эти данные указывают на влияние обогащения, которое было предсказано расчетами выгорания, описанными в разделе 18.3.6. Четыре сборки с исходным обогащением 2,4 % ^{235}U имеют более высокие скорости счета нейтронов по сравнению со сборками с идентичными глубинами выгорания и временами охлаждения, но с исходным обогащением 3,6 % ^{235}U. Низкообогащенное топливо имеет значительно меньше делящегося материала и, следовательно, требует более высокого флю-

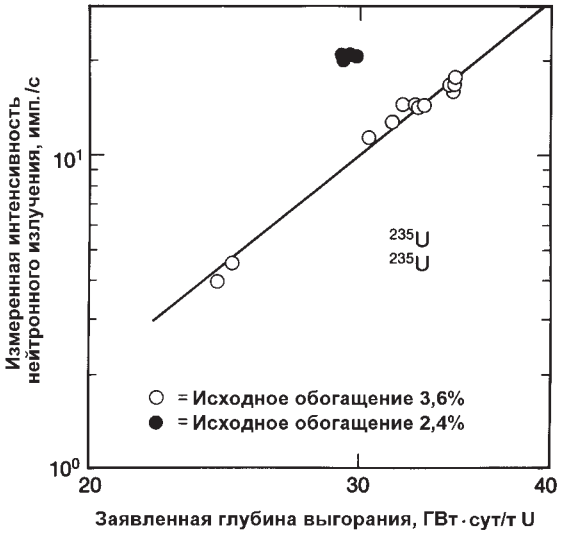

Рис. 18.21. *Зависимость измеренной интенсивности нейтронного излучения 17 облученных тепловыделяющих сборок PWR от заявленной глубины выгорания. Сплошная линия представляет собой степенную функцию, описывающую сборки, имеющие исходное обогащение 3,6 %*

енса нейтронов для достижения той же глубины выгорания, что и высокообогащенное топливо. Из рисунка видно, что данные по топливу с исходным обогащением 3,6 % образуют степенную зависимость между скоростью счета и глубиной выгорания с $\beta = 3{,}9$. Заявленные оператором глубины выгорания отличаются от расчетных значений в среднем на 0,9 %.

18.6 ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ДЕЛЯЩИХСЯ МАТЕРИАЛОВ В ОБЛУЧЕННОМ ТОПЛИВЕ

В разделах 18.4 и 18.5 рассматривается множество методов пассивных неразрушающих измерений облученного топлива. Каждый метод обеспечивает косвенное измерение выгорания топлива. Ни уникальные характеристики гамма-излучения, ни нейтронные характеристики изотопов урана или плутония не могут быть измерены непосредственным образом. Для определения реальной концентрации делящихся материалов существуют два возможных подхода. Один метод использует расчетные или определенные эмпирически зависимости, связывающие выгорание с остаточным содержанием ^{235}U и плутония. Другой метод использует активную подсветку нейтронами, чтобы подавить сигнал собственных нейтронов и получить результирующий отклик нейтронов вынужденного деления делящихся изотопов. Оба метода в настоящее время разрабатываются в нескольких странах. Они кратко описаны в конце этого раздела.

18.6.1 Косвенное определение характеристик топлива с помощью пассивных измерений выгорания

Большинство методов пассивных неразрушающих измерений облученного топлива в полевых условиях сейчас ограничиваются проверкой уровней относительного выгорания сборок. При ограничении времени и наличия технического персонала традиционно проводится измерение максимально возможного количе-

ства сборок, но для большинства из них измерение проводится только в одной точке их длины. Если измерения в этой точке представительные, то могут быть получены относительные значения выгорания сборок. Предварительно установленные соотношения между выгоранием и уровнями пассивного излучения затем позволяют проверить тот факт, что результаты измерений соответствуют заявленным значениям выгорания и времени охлаждения (точность заявленных оператором значений выгорания из-за изменений параметров активной зоны не может быть лучше 5 %). Так как очень трудно намеренно удалить делящийся материал из сборок без устранения также источников излучения продуктов деления, эта проверка подразумевает, что делящийся материал остается в целости.

В принципе, содержание делящихся материалов в топливе может быть определено косвенно с помощью измерения сигналов гамма-излучения и нейтронов. Сначала необходимо было бы получить абсолютное значение выгорания топлива с помощью разрушающего анализа части топлива. Затем результаты гамма-измерений высокого разрешения активностей отдельных продуктов деления или отношения активностей продуктов деления могли быть приведены к результатам разрушающего анализа для получения абсолютной градуировки. Измерения нейтронов также могли бы быть связаны с абсолютным значением выгорания. Результаты измерений нейтронов и гамма-излучения следовало бы интегрировать по осевым профилям ТВС, чтобы откорректировать неравномерность выгорания. Чтобы абсолютная градуировка, сделанная на одной установке, была использована и на другой, такая градуировка должна быть откорректирована для различных специфичных для реактора параметров, включая обогащение топлива, предысторию технологического процесса, и концентрации замедлителей и поглотителей. Некоторые примеры влияния таких параметров даны в разделах 18.3.5 и 18.3.6.

Если можно установить абсолютные значения выгорания топлива, то путем расчета можно получить концентрацию делящихся изотопов. Эти расчеты обычно выполняются с помощью таких сложных компьютерных программ, как CINDER [6 и 7]. Пример результатов такого расчета дан на рис. 18.22, на котором построен график зависимости концентрации изотопов плутония от выгорания. Точность таких компьютерных программ для урана и плутония обычно составляет от 5 до 10 %. Если характер протекания процесса в реакторе не известен, то погрешность может возрасти до 5-15 % [11].

Это косвенное определение содержания делящихся материалов путем пассивных измерений собственного излучения трудно осуществимо из-за многих измеряемых переменных и участвующих параметров активной зоны реактора. Косвенная связь содержания делящихся материалов с результатами пассивных измерений страдает от неопределенности, в то время как прямое подтверждение неизменности характеристик топлива по результатами измерения сейчас является хорошо отработанной и надежной методикой.

18.6.2 Определение характеристик топлива методом активной нейтронной подсветки

Непосредственное измерение содержания делящихся материалов в облученном топливе возможно с помощью мощного источника нейтронов, вызывающих деление. Такой источник может быть ускорителем, генератором нейтронов с энергией 14 МэВ или изотопным источником типа RaBe, SbBe или калифорния.

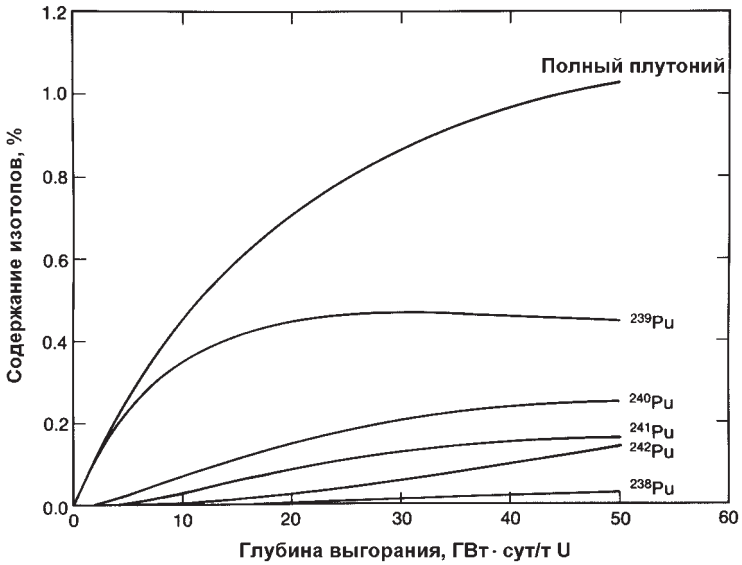

Рис. 18.22. *Зависимость относительной концентрации изотопов плутония (выраженной в весовых процентах от исходного урана) от глубины выгорания. Данные были получены путем расчетов с помощью программы EPRI-CINDER [5]*

Источник размещается рядом с облученным топливом, где он и образует сигнал вынужденного деления, пропорциональный количеству делящегося материала. Типичная интенсивность нейтронных источников должна быть порядка от 10^8 до 10^9 нейтрон/с для индуцирования сигнала деления, сравнимого по величине с выходом собственных нейтронов. Практически системы активной нейтронной подсветки не могут определять разницу между ураном и плутонием. Сигнал вынужденного деления пропорционален полной массе делящихся изотопов ^{235}U, ^{239}Pu и ^{241}Pu.

Комбинированная система активного и пассивного нейтронного анализа разработана Г. Шульцем, Х. Уэрзом и другими [19] с помощью источника на базе ^{252}Cf. Система может определить выгорание топлива и исходное содержание урана. Содержание плутония может быть получено косвенным путем из соотношения изотопов.

На нескольких установках для измерений облученного топлива применялась активационная методика по запаздывающим нейтронам. На перерабатывающей установке в Даунри (Великобритания) применялся генератор нейтронов с энергией 14 МэВ для анализа контейнеров с "шелухой" [34]. Недавно эта система была преобразована в “калифорниевый шаффлер” для подсветки нейтронами [35]. Мощная система на базе “калифорниевого шаффлера” была также разработана для анализа высокообогащенного облученного урана [36]. Однако в настоящее время в эксплуатации не существует активных нейтронных систем для измерения тепловыделяющих сборок энергетических реакторов. Это произошло потому, что для активных нейтронных систем необходим ускоритель, нейтронный генератор или большой, хорошо экранированный изотопный источник, которые ограничивают использование этих систем стационарными установками в научно-исследовательских лабораториях или на перерабатывающих установках. Состояние активных нейтронных методов и результаты измерений обобщены в работах [4 и 11].

Таблица 18.6 – Методики неразрушающего анализа для контроля облученных тепловыделяющих сборок

Специальный уровень проверки	Методика измерений		Аппаратура
	гамма-излучение	нейтронное излучение	
Физические характеристики			Визуальный контроль
Индикация глубины выгорания	Черенковское излучение		Прибор наблюдения черенковского свечения
	Наличие гамма-излучения		Ионизационные камеры Термолюминесцентные детекторы Сцинтилляторы
		Наличие нейтронного излучения	Камеры деления Детекторы на базе ^{10}Be
Физическая целостность тепловыделяющей сборки	Черенковское излучение		Прибор наблюдения черенковского свечения
	Относительные интенсивности высокоэнергетических гамма-квантов		Германиевый детектор Детектор Be(γ,n)
		Относительные значения интенсивностей испускания нейтронов	Камеры деления Детекторы на базе ^{10}Be
Наличие продуктов деления и актинидов	Качественная идентификация определенных линий спектра гамма-излучения		Германиевый детектор Детектор Be(γ,n)
		Относительные значения интенсивностей испускания нейтронов	Камеры деления Детекторы на базе ^{10}Be

Окончание таблицы 18.6

Специальный уровень проверки	Методика измерений		Аппаратура
	гамма-излучение	нейтронное излучение	
Относительные концентрации продуктов деления и актинидов	Количественные измерения ^{137}Cs, $^{134}Cs/^{137}Cs$ и $^{154}Eu/^{137}Cs$; корреляция с заявленной оператором информацией		Германиевые детекторы
		Количественные измерения интенсивностей испускания нейтронов; корреляция с заявленной оператором информацией	Камеры деления Детекторы на базе ^{10}Be
Непосредственное измерение содержания делящегося материала	Косвенно путем корреляции результатов измерений НРА и разрушающего анализа		Германиевые детекторы
		Количественные измерения нейтронов вынужденных делений в ядерном материале	Нейтронный источник Камеры деления Детекторы на базе ^{10}Be

18.7 ОБЗОР МЕТОДОВ НЕРАЗРУШАЮЩЕГО АНАЛИЗА ДЛЯ КОНТРОЛЯ ОБЛУЧЕННОГО ТОПЛИВА

В табл. 18.6 обобщены методики неразрушающего анализа, применяемые для контроля облученных тепловыделяющих сборок. В зависимости от необходимого уровня контроля инспектор может использовать одну или несколько методик гамма- и нейтронных измерений, рассмотренных в этой главе. Вообще наиболее эффективный контроль может быть осуществлен сочетанием гамма- и нейтронных измерений.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Nucleonics Week,* January 2, 1986.
2. Duderstadt and Hamilton, "*Nuclear Reactor Analysis"* (John Wiley and Sons, Inc., New York, 1976).
3. A.V. Nero, *A Guidebook to Nuclear reactors* (University of California Press, Berkeley, California, 1979.
4. T.D. Reilly, "The Measurement of Leached Hulls," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7784-MS (1979).
5. G.E. Bosler, J.R. Phillips, W.B. Wilson, R.J. LaBauve, and T.R. England, "Production of Actinide Isotopes In Simulated PWR. Fuel and Their Influence on Inherent Neutron Emission," Los Alamos National Laboratory report LA-9343 (1982).
6. T.R. England, W.B. Wilson, and M.G. Stamatelatos, "Fission Product Data for Thermal Reactors, Part 1: A Data Set for EPRI-ClNDER Using ENDF/B-IV," Electric Power Research Institute report EPRI NP/356, Part 1, and Los Alamos Scientific Laboratory report EA-6745-MS (1976).
7. T.R. England, W.B. Wilson, and M.G. Stamatelatos, "Fission Product Data for Thermal Reactors, Part 2: Users Manual for EPRI-CINDER Code and Data," Electric Power Research Institute report EPRI NP/356, Part 2, and Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6746-MS (1976).
8. D. Cobb, J. Phillips, G. Bosler, G. Eccleston, J. Halbig, C. Hatcher, and S.T. Hsue, "Nondestructive Verification and Assay Systems for Spent Fuels," Los Alamos National Laboratory report LA-9041, Vol. 1 (April 1982).
9. E.J. Dowdy, N. Nicholson, and J.T. Caldwell, "Irradiated Fuel Monitoring by Cerenkov Glow Intensity Measurements," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7838-MS(1979).
10. N. Nicholson and E.J. Dowdy, "Irradiated Fuel Examination Using the Cerenkov Technique," Los Alamos National Laboratory report LA-8767-MS (1981).
11. S.T. Hsue, T.W. Crane, W.L. Talbert, and J.C. Lee, "Nondestructive Assay Methods for Irradiated Nuclear Fuels," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-6923(1978).
12. J.R. Phillips, G.E. Bosler, J.K. Halbig, S.F. Klosterbuer, and H.O. Menlove, "Nondestructive Verification with Minimal Movement of Irradiated Light-Water Reactor Fuel Assemblies," Los Alamos National Laboratory report LA-9438-MS (1982).

13. P.M. Rinard, "A Spent-Fuel Cooling Curve for Safeguard Applications of Gross-Gamma Measurements," Los Alamos National Laboratory report LA-9757-MS (1983).

14. Advisory Group Meeting on the Nondestructive Analysis of Irradiated Power Reactor Fuel, International Atomic Energy Agency report AG-241 (October 29- November 2, 1979).

15. J.R. Phillips, B.K. Barnes, and T.R. Bement, "Correlation of the Cesium-134/Cesium-137 Ratio to Fast Reactor Burnup," *Nuclear Technology* 46, 21(I979).

16. J.R. Phillips, J.K. Halbig, D.M. Lee, S.E. Beach, T.R. Bement, E. Dermendjiev, C.R. Hatcher, K. Kaieda, and E.G. Medina, "Application of Nondestructive Gamma-Ray and Neutron Techniques for the Safeguarding of Irradiated Fuel Materials," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8212 (1980).

17. S.T. Hsue, C.R. Hatcher, and K. Kaieda, "Cooling Time Determination of Spent Fuel," *Nuclear Materials Management* 8, 356-367 (Fall 1979).

18. A.J.G. Ramalho and W.E. Payne, "Spent Fuel Measurements Using High-Resolution Gamma Systems," *Nuclear Materials Management* 8, 76 (1979).

19. G. Schulze, H. Wuerz, L. Koch, and R. Wellum, "Neutron Assay Plus Isotopic Correlalions: A Method for Determining Pu and Burnup In Spent LWR Fuel Assemblies," *Proc. Second Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management,* Edinburgh, Scotland, March 26-28, 1980 (European Safeguards Research and Development Association, Brussels, Belgium, 1980), pp.396-403.

20. J.R. Phillips, G.E. Bosler, J.K. Halbig, S.F. Klosterbuer, D.M. Lee, and H.O. Menlove, "Neutron Measurement Techniques for the Nondestructive Analysis of Irradiated Fuel Assemblies," Los Alamos National Laboratory report LA-9002-MS (1981).

21. P. Fedotov, N.M. Kazarinov, and A.A. Voronkov, "The Use of Neutron Scanning Method for Analysis of Spent VVFR Assemblies In Safeguarding Systems," presented at the IAEA Advisory Group Meeting on Methods and Techniques for NDA Safeguards Measurements of Power Reactor Spent Fuel, Vienna, October 28-November 2, 1979.

22. S.T. Hsue, J. Stewart, K. Kaieda, J. Halbig, J. Phillips, D. Lee, and C. Hatcher. "Passive Neutron Assay of Irradiated Nuclear Fuels," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7645-MS (1979).

23. J.R. Phillips and G.E. Bosler, "Calculated Response Contribution of Gamma Rays Emitted from Fuel Pins in an Irradiated PWR Fuel Assembly," Los Alamos National Laboratory report LA-9837 (1983).

24. R.J.S. Harry, J.K. Aaldijk, and J.P. Braak, "Gamma Spectrometric Determination of Isotopic Composition Without Use of Standards," In Proceedings of the International Symposium on Nuclear Materials Safeguards, Vienna, October 20-24, 1975 (lAEA-SM-201/68).

25. T.N. Dragnev, "Intrinsic Sell-Calibration of Nondestructive Gamma Spectrometric Measurements (Determination of U, Pu, and Am-241 Isotopic Ratios)," International Atomic Energy Agency report IAEA/STR-60 (1976).

26. T.R. Bement and J.R. Phillips, "Evaluation of Relative Detection Efficiency on Sets of Irradiated Fuel Elements," Proc. of the 1980 DOE Statistical Symposium, October 29-31, 1980(CONF-801045).

27. T. Suzaki, H. Tsuruto, and S. Matsura, "Non-Destructive Gamma-Ray Spectrometry and Analysis on Spent Fuel Assemblies of the JPDR-I Core," Japan Atomic Energy Research Institute report JAERI-memo 8164 (1979).

28. C.E. Moss and D.M. Lee, "Gross Gamma-Ray Measurements of Light-Water Reactor Spent-Fuel Assemblies in Underwater Storage Arrays," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8447 (1980).

29. J.R. Phillips, G.E. Bosler, J.K. Halbig, S.F. Klosterbuer, H.O. Menlove, and P.M. Rinard, "Experience Using a Spent-Fuel Measurement System," presented at the 24th Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials management, Vail, Colorado, July 10-13, 1983.

30. R.N. Olsen, Ed., "Instructions for the Use of the ION-1 and the Fork Detector," International Atomic Agency report IMI No. 42 (November 1984).

31. P.M. Rinard, "Neutron measurements in Borated Water for PWR Fuel Inspections," Los Alamos National Laboratory report LA-10068-MS (1984).

32. P.M. Rinard and G.E. Bosler, "BWR Spent-Fuel Measurements with the ION-1/Fork Detector and Calorimeter," Los Alamos National Laboratory report LA-10758-MS (1986).

33. S. Klosterbuer and J. Halbig, "Portable Spent-Fuel Gamma-Ray and Neutron Detector Electronics User Manual," Los Alamos National Laboratory report LA-8707-M (1983).

34. B. McDonald, G. Fox, and W. Bremner, "Nondestructive Measurements of Plutonium and Uranium in Process Wastes and Residues," in *Safeguarding Nuclear Matreials,* Proc. Symp., Vienna, 1975 (IAEA Pub 408, Vol. II, p.589, 1976).

35. G. Eccleston, H. Menlove, T. Van Lyssel, G. Walton, D.C. Garcia, and G. Ortiz, "Dounreay Shuffler," in "Safeguards and Security Progress Report, January-December 1983," Los Alamos National Laboratory report LA-10170 (September 1984), p.59.

36. G.W. Eccleston, H.O. Menlove, and M.W. Echo, "A Measurement Technique for High Enrichment Spent Fuel Assemblies and Waste Solids," *Nuclear Materials Management* 8, 344-355 (1979).

Глава 19

Радиационные мониторы контроля периметра

Пол И. Фелау
(Переводчик А.Н. Григорьев)

19.1 ВВЕДЕНИЕ

Радиационные мониторы контроля периметра размещаются по периферии контролируемых зон, содержащих ядерные материалы, и зон с радиоактивным загрязнением местности для обнаружения случайного или скрытого перемещения ядерных и/или радиоактивных материалов. В настоящее время применяются два типа мониторов контроля периметра: мониторы [радиоактивного] загрязнения и мониторы ядерных материалов. Мониторы загрязнения обнаруживают загрязнение на теле человека или поверхности объекта. В этих случаях регистрируется неэкранированное излучение с большой площади. Мониторы ядерных материалов должны обнаруживать небольшие количества ядерных материалов, возможно экранированных, которые могут быть спрятаны, например, в портфеле. В этом случае небольшие габариты источника и присутствие поглотителей снижают интенсивность излучения. В этой главе обсуждаются оба примера практического применения мониторов контроля периметра, но основное внимание уделяется мониторам ядерных материалов.

Когда возникла потребность в мониторах для обнаружения ядерных материалов, уже имелись ручные мониторы загрязнения, поскольку задача обнаружения радиоактивного загрязнения предшествовала появлению задачи сохранности и безопасности ядерных материалов. Однако из-за того, что персонал охраны при их применении должен был следить за показаниями аналогового измерительного прибора, его внимание отвлекалось от непосредственного наблюдения за объектом. Для преодоления этой проблемы были разработаны автоматические портальные [1] и ручные мониторы [2]. Они обеспечивают звуковые и световые сигналы тревоги, которые позволяют оператору полностью посвящать свое основное внимание задачам наблюдения за объектом. В последнее время требование к работодателям обеспечить служащих первоклассным оборудованием по контролю загрязнения подтолкнуло разработку автоматических высокочувствительных мониторов радиоактивного загрязнения [3]. Эти приборы, также как и современные мониторы ядерных материалов, проектируются с учетом требований высокой чувствительности, надежности и простоты обслуживания.

Мониторы для обнаружения перемещения ядерных материалов должны удовлетворять требованиям Министерства энергетики США [4] и Комиссии США по ядерному регулированию [5] по осмотру каждого человека, упаковки или транспортного средства, покидающих зону доступа к ядерным материалам. Мониторы контроля радиационного загрязнения должны удовлетворять требо-

ваниям стандартов по радиационной безопасности для контроля лиц, покидающих зону с радиоактивным загрязнением. В обоих случаях визуальный или ручной осмотр могут оказаться неэффективными, в то время как радиационные мониторы реагируют на излучение, испускаемое ядерными и радиоактивными материалами, и могут обеспечивать ненавязчивый, чувствительный и эффективный контроль. Мониторы должны обеспечить своевременное предупреждение о радиоактивном загрязнении или перемещении ядерного материала до того, как контролируемый материал может покинуть зону доступа.

Примерами мониторов обнаружения перемещения ядерных материалов являются портальный монитор (показан на рис. 19.1 с детекторами, расположенными рядом с проходящим пешеходом) и ручной (показан на рис. 19.2 в момент персонального досмотра пешехода). Ручные мониторы имеют разнообразное применение, в том числе контроль загрязнения, но их эффективность зависит от оператора, проводящего досмотр. В то же время портальные мониторы должны быть полностью автоматизированы.

В новых конструкциях мониторов детекторы размещаются внутри арки (см. рис. 19.3), где досматриваемые лица должны находиться рядом с радиационными детекторами в течение длительного времени. Более длительный период контроля и близость детекторов к досматриваемому лицу повышают чувствительность регистрации; эти принципы применяются для контроля как пешеходов, так и автотранспорта.

Рис.19.1. *Автоматический портальный монитор ядерных материалов с пластмассовыми сцинтилляторами большой площади для контроля пешеходов*

Рис.19.2. *Мониторинг ручными приборами весьма эффективен, если оператор имеет хорошую подготовку и основание для досмотра*

19.2 ВЛИЯНИЕ РАДИАЦИОННОГО ФОНА

На радиационные мониторы оказывает влияние радиационный фон и изменение его интенсивности во времени. Кроме того, интенсивность радиационного фона влияет на эффективность контроля. Порог обнаружения должен устанавливаться выше значения интенсивности фона, чтобы избежать ложных срабатываний из-за статистического разброса отсчетов (одна из причин ложной тревоги). Необходимое значение порога повышается пропорционально увеличению интенсивности фона, приводя к уменьшению чувствительности контроля. В момент проведения измерения монитором контролируемого объекта быстрые изменения интенсивности фона, которые могут быть вызваны изменениями естественного радиационного фона, перемещениями радиоактивных материалов или оборудованием, генерирующим излучение, могут быть ошибочно приняты за сигналы от ядерных материалов или вызывать другой тип ложных сигналов. Примером изменения естественного радиационного фона, ведущего к быстрому изменению интенсивности, является распад ^{226}Ra в почве. Его газообразный дочерний изотоп ^{222}Rn может покидать почву, распадаясь в атмосфере. Эти дочерние продукты, которые сами являются радиоактивными, могут оседать на частицах пыли, которые образуют центры конденсации дождевых капель. Когда такие дождевые капли падают на землю, они временно увеличивают интенсивность фона (см. рис. 19.4).

Рис.19.3. *Этот чувствительный монитор загрязнения проводит измерения с каждой стороны тела объекта раздельно. Фото предоставлено фирмой Eberline Instrument Corp., Санта-Фе, штат Нью-Мексико*

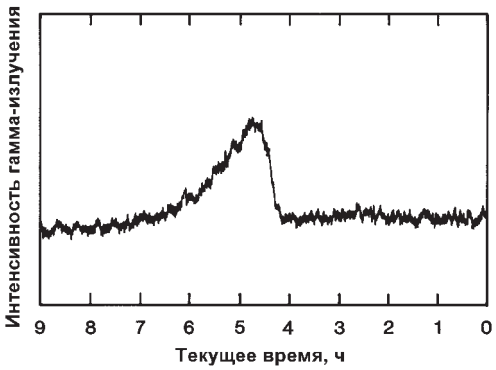

Рис.19.4. *Запись интенсивности фона, показывающая увеличение скорости счета монитора дорожного покрытия во время интенсивных осадков*

19.3 ХАРАКТЕРИСТИКИ СИГНАЛОВ СИСТЕМ КОНТРОЛЯ ЗА ПЕРЕМЕЩЕНИЕМ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ И РАДИОАКТИВНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ

19.3.1 Источники излучения

Как описано в главе 1, ядерные материалы могут быть обнаружены благодаря их спонтанному излучению. Каждое из этих излучений: альфа, бета, гамма, рентгеновское и нейтронное обладает различной проникающей способностью. Проникающая способность альфа-излучения мала и оно легко останавливается несколькими сантиметрами воздуха. Кроме случая, когда детекторы загрязнения почти касаются излучателя, альфа-излучение вносит небольшой вклад в сигнал радиационного монитора. Более проникающие виды излучения, которые легко проходят через воздух, могут быть зарегистрированы на некотором расстоянии. Однако корпус детектора и упаковка ядерного материала могут экранировать все виды излучения кроме гамма-квантов и нейтронов. Существует одно принципиальное различие между сигналами от радиоактивных загрязнений и ядерных материалов: загрязнение обычно «лежит» на поверхности, где его излучение легко обнаруживается, а мониторы ядерных материалов должны реагировать на проникающее излучение материала, заключенного в оболочку. Следовательно, мониторы загрязнения часто регистрируют несколько видов излучений, а мониторы ядерных материалов регистрируют в основном гамма-излучение и нейтроны. Мониторы ядерных материалов, рассмотренные далее в этой главе, главным образом регистрируют гамма-излучение, но также обладают и некоторой чувствительностью к нейтронам. На рис. 19.5 (а, б) проиллюстрировано поглощение трех видов излучения различными материалами.

Внутреннее самопоглощение в источнике излучения также может значительно изменять регистрируемые сигналы. Например, ядерные материалы экранируют свое собственное гамма-излучение; степень самопоглощения зависит от физической формы материала. Рис. 19.6 иллюстрирует самопоглощение для различных форм и габаритов высокообогащенного урана. Тонкие урансодержащие материалы, такие как порошки и фольга, излучают больше всего; в то же время, такие более плотные формы, как сферы и цилиндры, поглощают большую часть своего излучения. Излучение цилиндров (см. рис. 19.6) пропорционально площади поверхности, которая увеличивается пропорционально массе в степени 2/3, что показано прямой линией на графике (построенном в логарифмическом масштабе — прим. пер.).

19.3.2 Сигналы, изменяющиеся во времени

При контроле ядерных материалов или загрязнения сигналы монитора обычно присутствуют только в течение короткого интервала времени. Если объект подвижен, сигнал от ядерного материала будет изменяться в течение процесса контроля (мониторинга), так как объект перемещается по отношению к детектору. Рис. 19.7 иллюстрирует результирующий сигнал монитора, когда пешеход проходит через него, неся с собой ядерный материал. Интеграл переменного во времени сигнала составляет приблизительно 60 % от сигнала неподвижного объекта. Хорошая конструкция монитора гарантирует, что время измерения соответствует,

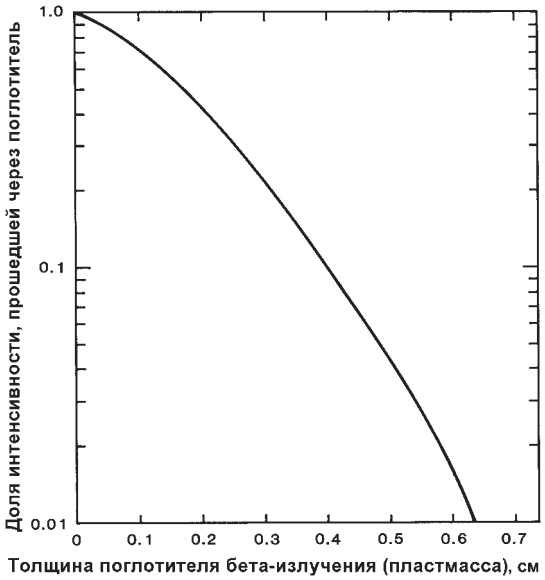

Рис.19.5 (а). *Непрерывный спектр бета-излучения (максимальная энергия 1,9 МэВ) легко поглощается несколькими сантиметрами пластмассы*

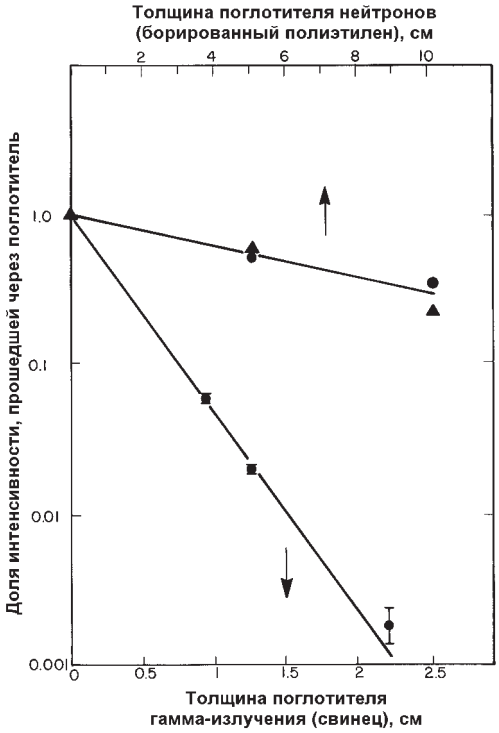

Рис.19.5 (б). *Гамма-излучение плутония поглощается малой толщиной свинца, но большая толщина борированного полиэтилена значительно меньше воздействует на его нейтроны*

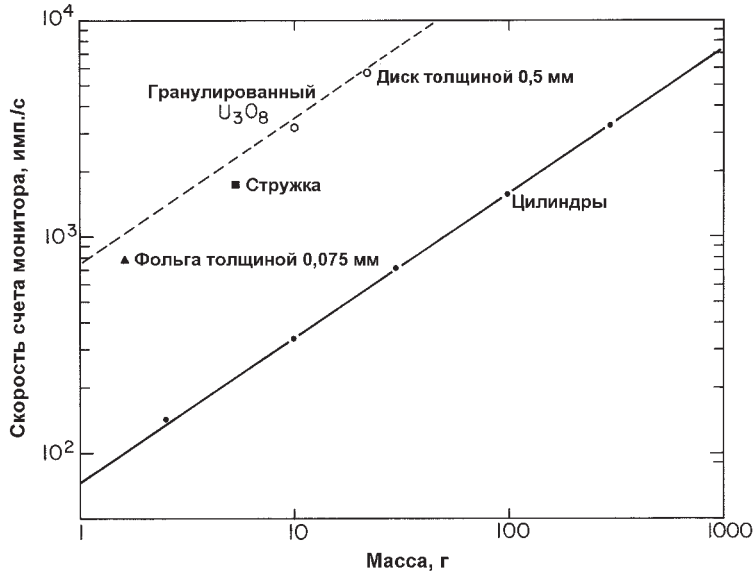

Рис. 19.6. *Форма высокообогащенного урана влияет на самопоглощение гамма-излучения. Интенсивность излучения изменяется от площади поверхности больше, чем от массы*

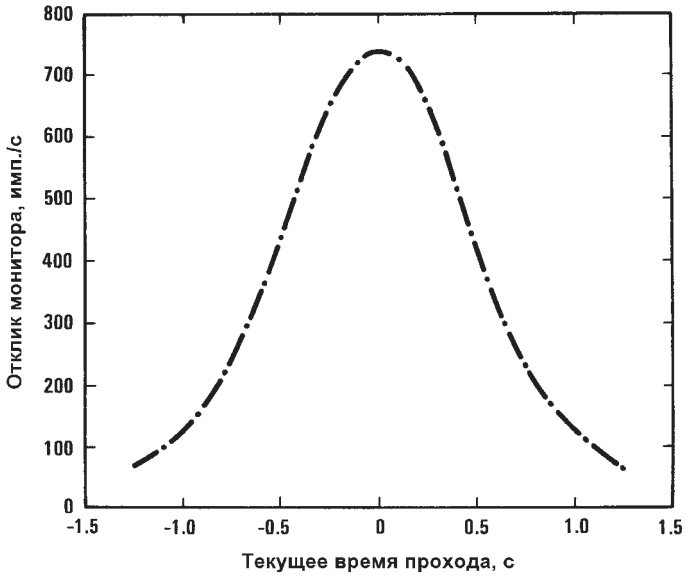

Рис.19.7. *При проходе через портальный монитор пешехода, несущего ядерный материал, генерируется сигнал колоколообразной формы*

насколько это возможно, максимальному уровню сигнала. Подходы к достижению этой оптимальной ситуации рассматриваются в разделе 19.4.

Дополнительным эффектом, снижающим сигнал монитора, является уменьшение интенсивности фона, вызываемое самим объектом. Радиационный фон окружающей монитор среды может частично поглощаться человеком или транспортным средством, находящимся в мониторе. Для пешеходов снижение интенсивности может быть всего 1,5 %, но для транспортных средств составит намного большую величину. Рис. 19.8 иллюстрирует снижение, вызываемое присутстви-

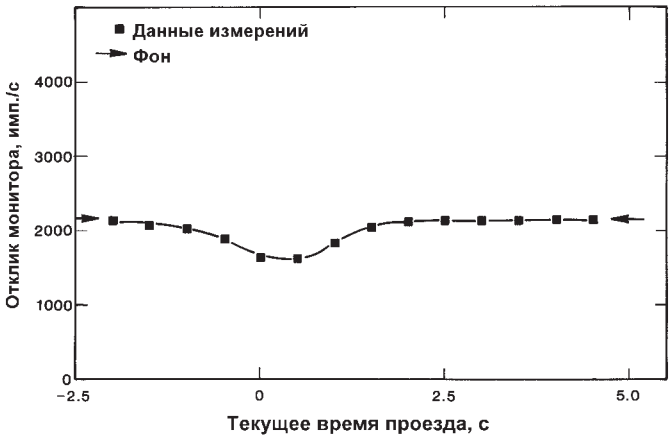

Рис.19.8. *Сигнал монитора в форме перевернутого колокола в результате поглощения радиационного фона при проезде транспорта*

ем грузовика в мониторе автотранспорта. Диапазон снижения интенсивности для различных габаритов транспортных средств находится в пределах 10-25 %. Так как порог обнаружения монитора является величиной постоянной, то для обнаружения излучения при находящемся в мониторе объекте требуется сигнал намного больший, чем для пустого монитора.

19.4 АНАЛИЗ СИГНАЛОВ

19.4.1 Регистрация излучения

Анализ сигналов в радиационных мониторах применяется для того, чтобы решить, является ли измеренный сигнал только фоновым или на фоновый сигнал накладывается дополнительный сигнал от радиоактивного излучения контролируемого ядерного или радиоактивного материала. К сожалению, простому сравнению мешают статистические изменения результатов измерений фона и непосредственно мониторинга. Хотя уровень ожидаемого фона может быть достаточно точно определен путем измерения в течение длительного времени, каждое измерение при мониторинге является вынужденно коротким по времени и недостаточно точным. Если уровень фона имеет ожидаемую величину B, то значения отдельных измерений будут находиться в диапазоне нескольких среднеквадратических отклонений выше и ниже B. Одно среднеквадратическое отклонение в этом примере составляет квадратный корень из величины B. Чтобы исключить ложное срабатывание, сравнение результатов измерений при мониторинге должно допускать статистические изменения, в несколько раз превышающие квадратный корень из B. Результат каждого измерения при мониторинге обычно сравнивается с порогом обнаружения, определенным по уравнению (19.1). Сигнал обнаружения вырабатывается, когда результат измерения равен или превышает порог обнаружения M, определяемый по формуле

$$M = B + N\sqrt{B}\,, \qquad (19.1)$$

где N — приращение сигнала обнаружения (число стандартных отклонений, обычно принимается равным 3 или 4). Сигнал обнаружения истинный, когда он является результатом регистрации излучения контролируемого ядерного и/или радиоактивного материала, и — ложным, когда он обусловлен статистическими отклонениями или изменениями фона.

19.4.2 Аналоговые методы регистрации

Простой и надежный метод выработки решения при мониторинге — это аналоговый метод [6], который сравнивает интенсивности излучения, измеренные при мониторинге, с интенсивностями фонового излучения с помощью двух RC-цепочек, имеющих разные постоянные времени (рис. 19.9). Цепь с большой постоянной времени запоминает интенсивность фонового излучения в течение периода времени около 20 с, в то время как цепь мониторинга имеет короткую постоянную времени 0,4 с. Компаратор градуируется подачей на его вход аналогового сигнала от измерителя скорости счета до тех пор, пока не будут достигнуты выбранная чувствительность и интенсивность сигналов ложного срабатывания. Отрегулированная один раз надлежащим образом схема функционирует длительное время и готова контролировать сигналы, когда бы они не появились. Недостатком аналоговых схем является процедура ручной регулировки: точная настройка может потребовать большого количества времени. С другой стороны, цифровые логические схемы не нуждаются во многих регулировках.

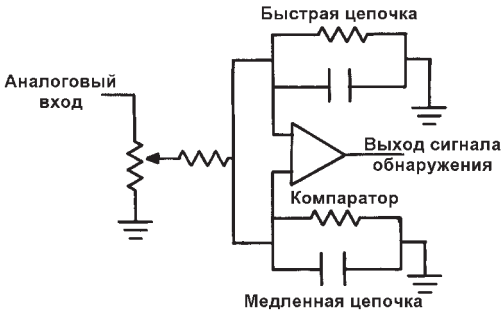

Рис. 19.9. *Аналоговая схема сравнения скорости счета при мониторинге со скоростью счета фона*

19.4.3 Цифровые методы регистрации

Сигнал обнаружения может быть получен как с помощью цифровых схем, так и с помощью микропроцессоров. Уравнение (19.1) может быть реализовано, например, сравнением результата измерения при мониторинге в течение 0,4 с, содержащегося в цифровом регистре, с находящимся в памяти порогом обнаружения, полученным из предшествующего измерения фона. Находящееся в памяти значение порога обнаружения может быть получено из результата ранее сделанного 20-секундного измерения фона, деленного на 50 для получения величины B (приведенной к длительности рабочего измерения 0,4 с — прим. ред.), плюс добавленное кратное число квадратных корней из B. В этом случае сравнение является безразмерным и не требует никакой градуировки. Этот одноинтервальный метод имеет один недостаток: он не является непрерывным, поэтому интервал измерения может не совпасть с наиболее интенсивной частью сигнала (см. рис. 19.7). Однако цифровые логические схемы легко доработать, чтобы преодо-

леть такие недостатки. Усовершенствования, описанные ниже, включают метод скользящего среднего, метод последовательных шагов и последовательную проверку гипотез.

Цифровой метод, который хорошо реализуется в мониторах в режиме прохода, использует при мониторинге скользящее среднее результатов измерений. Применяются короткие периоды измерений (например, 0,2 с), и результаты четырех или более периодов измерений суммируются и сравниваются с порогом обнаружения (порог обнаружения нормируется в соответствии с количеством периодов измерений — прим. ред.). После первой группы четырех или более периодов добавляется новый результат измерений, а самый старый вычитается из суммы. Каждая новая сумма сравнивается с порогом обнаружения. Затем измерения продолжаются до тех пор, пока не произойдет срабатывание или не освободится монитор. Так как мониторинг непрерывен и принимается много решений, порог обнаружения должен быть выше, чем для одноинтервального метода (описанного в предыдущем параграфе), чтобы достигнуть той же самой вероятности обнаружения. Однако метод скользящего среднего имеет более высокую чувствительность, потому что он измеряет самую интенсивную часть сигнала.

Простой метод последовательных шагов [7] сокращает период мониторинга. Во время измерения требуется, чтобы объект контроля подождал, пока не будет завершено измерение. При удлинении периода мониторинга достигается более высокая чувствительность регистрации без увеличения частоты ложных срабатываний. Время ожидания может быть сокращено путем разделения периода измерения на шаги, на каждом из которых вырабатывается промежуточное решение. Полный период требуется только тогда, когда все промежуточные решения

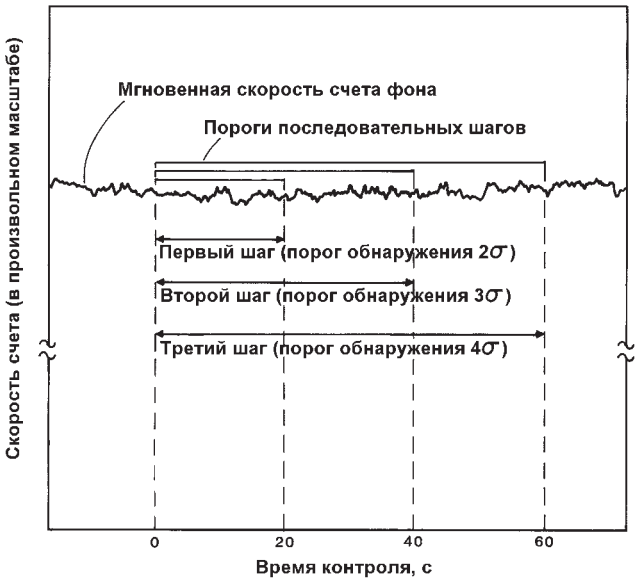

Рис. 19.10. *Метод последовательных шагов вырабатывает промежуточные решения для более низких порогов обнаружения, которые сохраняют чувствительность ценой более частых ложных срабатываний. Последствие случайного ложного срабатывания заключается в ожидании еще одного дополнительного шага. Для порогов, показанных на этом рисунке, среднее время ожидания снижается на две трети*

дают сигнал обнаружения. Другими словами, контроль завершается после первого шага, который не выдает сигнала обнаружения. Каждый промежуточный порог обнаружения имеет ту же самую чувствительность регистрации, что и при использовании полного периода измерения, но имеет более высокую вероятность частоты ложных срабатываний. Рис. 19.10 иллюстрирует методику; все транспортные средства без радиоактивных материалов, кроме около 2,3 %, будут проезжать после первого интервала измерений, который имеет порог обнаружения, равный двум стандартным отклонениям. Задержанные транспортные средства измеряются в течение дополнительных периодов измерений, результаты складываются с первым результатом и повторно анализируются на более высоких порогах обнаружения. Если сигналы обнаружения повторяются, проводится заключительное измерение и принимается окончательное решение, как в случае, если бы никаких промежуточных решений не принималось.

В работе, выполненной Уолдом [8] в 40-е годы, была разработана последовательная проверка гипотез для уменьшения времени проведения контроля качества на производстве. Последовательная проверка гипотез также сокращает время проведения измерений и при радиационном мониторинге [9]. Этот метод использует последовательность коротких измерений, за каждым из которых следует проверка гипотезы. Результатом каждой проверки является одно из трех решений: накопленные измерения представляют фон, измерения вырабатывают сигнал обнаружения или измерения должны продолжаться до тех пор, пока не будет выработано окончательное решение. Если одно из первых двух возможных решений не может быть достигнуто достаточно быстро, то заключительное решение принимается на основании какого-либо другого метода.

При обсуждении практического применения этого метода в работе [9] дается информация о том, что средний период измерения составляет 22 % от требуемого периода измерения при одноинтервальном методе без увеличения частоты ложных срабатываний. Мониторинг также проходит быстро при наличии сигнала о присутствии ядерного материала. Если интенсивность излучения достаточно близка к порогу обнаружения, в этом случае последовательная проверка гипотез потребует столько же времени, сколько при одноинтервальном методе.

19.4.4 Долговременный мониторинг

Долговременный мониторинг является новым подходом, который позволяет достигнуть высокой чувствительности благодаря повторяющимся измерениям и применяется совместно, но независимо, с другими стандартными методиками [10]. Этот метод может обнаруживать при повторном контроле случаи загрязнения или перемещения ядерного материала в количествах, слишком малых для обнаружения при обычном мониторинге. Одним из практических применений этого метода является суммирование результатов мониторинга пешеходов, входящих в зону, и сравнение этой суммы с суммой результатов контроля пешеходов, покинувших зону. Любое отличие между двумя суммами может означать загрязнение или несанкционированное перемещение ядерного материала.

Метод долговременного мониторинга рассчитывает результирующий сигнал во время измерения путем вычитания из каждого измерения среднего значения фона, определенного до и после измерения. Хотя отдельные измерения не являются точными, средний результирующий сигнал для сотен проходов вполне то-

чен. Фактически, этот метод обеспечивает самое точное измерение среднего ослабления радиационного фона объектом контроля.

Кроме того, что данный метод может усреднять результаты мониторинга для большого количества людей, этому методу может потребоваться идентификация каждого объекта контроля, так как данные о каждом лице могут быть зарегистрированы. Затем анализ долговременных средних значений измерений при входе и выходе отдельного лица может идентифицировать случаи повторных загрязнений или перемещений небольших количеств ядерного материала. Метод долговременного мониторинга в десять раз более чувствителен, чем другие методы, в случаях, когда каждый выход человека вызывает сигнал радиационного загрязнения или наличия ядерного материала, а при входе этого не происходит.

19.5 ДЕТЕКТОРЫ ИЗЛУЧЕНИЯ

Мониторы контроля периметра используют различные виды детекторов излучения в зависимости от того, спроектированы ли они для обнаружения загрязнений или контроля наличия ядерных материалов. Для обнаружения излучения при загрязнении наиболее подходящими являются пропорциональные газоразрядные счетчики, а для обнаружения проникающего излучения от ядерного материала наиболее подходят сцинтилляторы. Основные свойства пропорциональных газоразрядных счетчиков и неорганических сцинтилляторов рассматриваются в главе 3. Органические сцинтилляторы, которые широко применяются при мониторинге ядерных материалов, рассматриваются в этом разделе наряду с пропорциональными проточными газоразрядными счетчиками для контроля загрязнения периметра. Эти недорогие детекторы большой площади хорошо адаптируются к требованиям мониторинга периметра.

19.5.1 Пластмассовые сцинтилляторы

Пластмассовые сцинтилляционные детекторы — это твердотельные органические сцинтилляторы, которые содержат флюоресцирующие компоненты, растворенные в кристаллизованном полимерном растворе [11]. Эти материалы имеют малые плотность и атомный номер, поэтому у них отсутствует сильное фотоэлектрическое поглощение. Они регистрируют гамма-кванты с помощью комптоновских электронов, а нейтроны — с помощью протонов отдачи. Данные детекторы не выделяют пики полного поглощения, а регистрируют весь спектр гамма-излучения от комптоновского края до нулевой энергии. Хотя органические сцинтилляторы являются спектрометрами с ограниченной энергией и имеют низкую собственную эффективность регистрации, они представляют собой отличные дешевые радиационные счетчики с большими площадями. Их низкая стоимость обусловлена применением недорогих материалов и простого корпуса, тогда как выращивание кристаллов NaI(Tl) является дорогим процессом и они нуждаются в защите от влаги и перепада температур.

Большие размеры пластмассовых сцинтилляторов обеспечивают хорошую полную эффективность регистрации даже несмотря на то, что их собственная эффективность мала. Полная эффективность — это произведение собственной эффективности детектора и доли излученных протонов, которые регистрируются. Последний сомножитель зависит от размеров детектора. Один большой детектор

также обеспечивает более равномерный мониторинг, чем батарея из нескольких небольших детекторов.

Пластмассовые сцинтилляционные детекторы имеют и некоторые недостатки: они производят только около 10 % света по сравнению с NaI(Tl)-детекторами и их большой размер делает затруднительным равномерный сбор света. Равномерный сбор света является важным для того, чтобы свести к минимуму разброс амплитуд импульсов, появляющийся при детектировании излучения, проходящего в различных частях детектора. В работе [12] рассматриваются методы получения полного внутреннего отражения сцинтилляционного света и обеспечения однородности реакции большого детектора. Малое количество генерируемого света компенсируется применением многокатодных фотоумножителей на базе двух щелочных химических элементов, которые обеспечивают хорошее усиление сигнала при малых темновом токе и шумах фотокатода.

Низкий уровень шумов фотоумножителя важен для органических сцинтилляторов, так как комптоновский спектр простирается вниз до нулевой амплитуды. Шумы устанавливают практическое ограничение на амплитуду импульсов, которые могут быть зарегистрированы. Это смещение ограничивает собственную эффективность регистрации и влияет на эффективность регистрации в широком диапазоне энергии случайного гамма-излучения, как показано на рис. 19.11. Фотокатоды на базе двух щелочных элементов могут работать при комнатной температуре на уровне смещения 0,045 В.

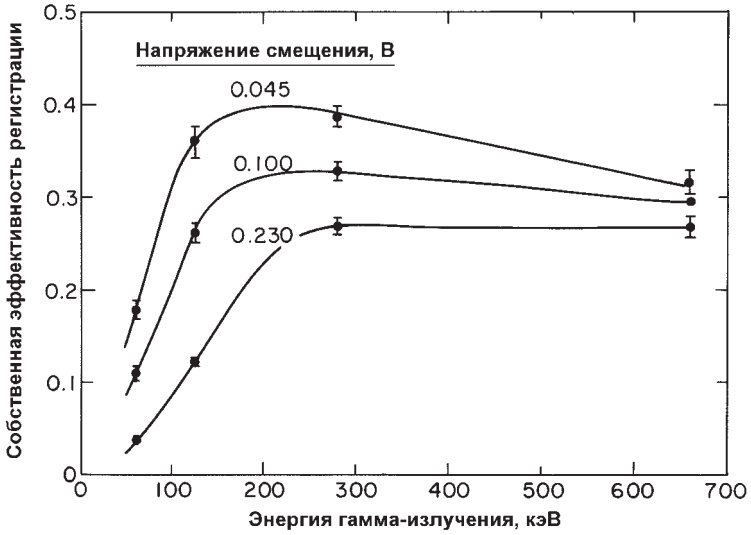

Рис. 19.11. *Хорошей собственной эффективности регистрации соответствует малое напряжение смещения. Приведены данные для детектора с органическим сцинтиллятором, имеющим амплитуду импульса 2 В для гамма-излучения с энергией 662 кэВ*

19.5.2 Проточные газоразрядные детекторы

Проточный пропорциональный газоразрядный счетчик с очень большой площадью является недорогим видом пропорционального счетчика. Очень тон-

кие окна детектора (100 мкг/см^2) пропускают низкоэнергетическое излучение от поверхностного загрязнения во внутренний объем детектора, который представляет собой тонкостенную полость с большой площадью поверхности. Аргоно-метановая смесь медленно протекает через полость и затем выгорает или рециркулирует с небольшим количеством нового газа. Аргон является газом, в котором происходит детектирование, а метан понижает рабочее напряжение и гасит разряды между электродами счетчика. Разряды, вызываемые примесями в аргоне или вторичным излучением из металлических деталей счетчика, вызывают электронные помехи. Плоскопараллельная геометрия конструкции имеет неравномерное электрическое поле и усиление, поэтому прибор является скорее счетчиком, нежели спектрометром энергии.

Хотя очень большой проточный газоразрядный пропорциональный счетчик является детектором с большим уровнем шумов, его хорошие энергетические характеристики и малая стоимость делают его привлекательным для мониторинга загрязнений, когда измерения могут быть легко повторены без особого ущерба.

19.6 СОСТАВНЫЕ ЧАСТИ МОНИТОРОВ КОНТРОЛЯ ПЕРИМЕТРА

Радиационный монитор периметра, изображенный на рис. 19.1, предназначен для контроля пешеходов, а показанный на рис. 19.12 — контролирует автотранспорт. Все эти мониторы имеют сходные составные части (рис. 19.13). Детекторы реагируют на излучение и передают информацию на блок управления монитора, который обеспечивает питание, обработку и анализ сигналов. Блок управления обычно имеет датчики занятости монитора для определения момента измерения фона и индикаторные лампочки и звуковые сигнализаторы для выдачи сигнала тревоги.

19.6.1 Составные части и их функции

Ниже перечислены составные части мониторов и их функции.

1. Детектор: регистрирует радиоактивное излучение из определенной области пространства, обычно расположенной между двумя и более детекторами.

2. Электроника для обработки сигналов: преобразует импульсы регистрируемого радиоактивного излучения в импульсы напряжения, которые могут передаваться в другое устройство для анализа.

3. Одноканальный анализатор (ОКА): сортирует импульсы в выбранном энергетическом диапазоне. Выходными сигналами являются стандартные логические импульсы.

4. Блок управления: регистрирует логические импульсы с ОКА. Использует результат для определения ложного срабатывания или для проведения измерений при мониторинге. Проводит измерения фона при высоком и низком порогах для обнаружения неправильного срабатывания. Показывает каждый новый результат измерения фона. Сравнивает результаты измерения при мониторинге с порогом обнаружения (раздел 19.4). Использует датчик занятости, чтобы определить, когда измерить фон и когда провести контроль. Помогает при проведении градуировки.

Рис. 19.12. *Составные части этого транспортного монитора осуществляют те же самые основные функции, что и составные части пешеходного монитора. Прибор изготовлен фирмой Jomar Systems, Inc., Лос-Аламос, штат Нью-Мексико*

5. Датчик занятости: реагирует на присутствие человека или транспортного средства и, если необходимо, на направление движения.

6. Выходное устройство: передает результаты мониторинга визуальными (вспышками света) и звуковыми сигналами.

7. Источник питания: преобразует сетевое напряжение в напряжения постоянного тока, необходимые для работы детекторов и электроники.

Некоторые из этих устройств и их функции обсуждаются ниже более подробно.

19.6.2 Электроника для обработки сигналов

Помехи присутствуют в любой системе регистрации и некоторые из них могут быть устранены сочетанием дискриминаторов двух уровней напряжения, чтобы сформировать ОКА. Окно приема, которое ограничивается определенной областью энергетического спектра, может оптимизировать характеристики радиационного монитора. Например, так как интенсивная часть спектра гамма-излучения высокообогащенного урана лежит в узкой энергетической области, окно приема, ограниченное этой областью энергии гамма-излучения, дает наилучшую чув-

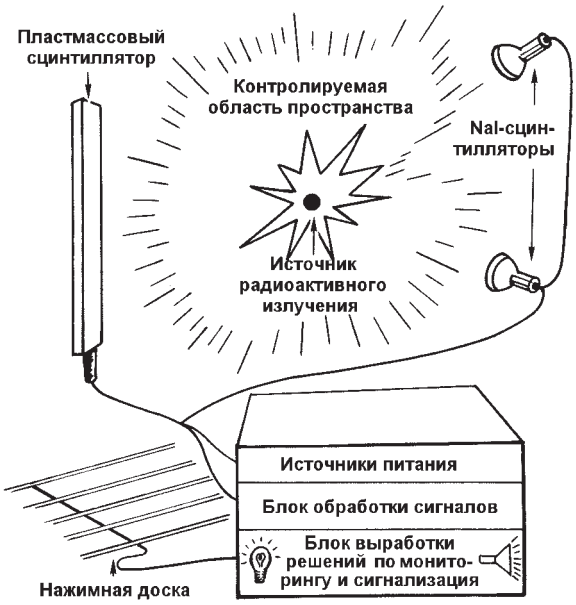

Рис. 19.13. *Основные составные части радиационного монитора контроля периметра. Монитор должен обнаруживать радиоактивное излучение, реагировать на присутствие объекта контроля (с помощью нажимной доски), вырабатывать решения и сообщать о результате*

ствительность обнаружения урана даже тогда, когда используются такие плохие спектрометры, как органические сцинтилляторы.

В табл. 19.1 приведен пример изменения чувствительности обнаружения урана с изменением размера приемного окна. Приведенная чувствительность, равная S, деленному на корень квадратный из B, связывает результирующий сигнал S в определенном окне со стандартным отклонением фона в том же самом окне. Чем больше приведенная чувствительность, тем легче обнаружить источник урана и тем меньше порог обнаружения. Для значений, указанных в таблице, вероятность обнаружения источника была повышена на 50 % при оптимизации окна ОКА.

Пересчетные устройства регистрируют логические импульсы ОКА в течение периода измерений. Большинство пересчетных устройств имеют интервалы счета, соответствующие среднему времени, в течение которого сигналы присутствуют в мониторе. В конце каждого интервала счета пересчетное устройство передает его сумму в блок выработки решения. Когда монитор не занят, множество таких сумм усредняется, чтобы получить точное значение фона. Во время мониторинга каждая сумма сравнивается с порогом обнаружения.

Таблица 19.1 – Приведенная чувствительность и порог обнаружения для трех окон одноканальных анализаторов (ОКА)

Окно ОКА, В	Энергетическое окно, кэВ	$S/\sqrt{B}$	Порог обнаружения ^{235}U, г*
0,3-0,85	70-215	7,87	10
0,21-1,5	46-385	6,93	12,2
0,3-7,0	70-1735	6,0	15,2

* Источники — сферические массы; фон — 21 мкР/ч

19.6.3 Источники питания

Высокое напряжение для детекторов обеспечивается регулируемой электронной схемой, которая поддерживает практически постоянное выходное напряжение. Для того чтобы можно было использовать один общий источник питания для различных сцинтилляционных детекторов, для каждого фотоумножителя в схему делителя напряжения введен последовательно соединенный потенциометр для регулировки напряжения.

Мониторы, использующие модули электроники в стандарте NIM для усилителя, ОКА и высоковольтного источника питания, используют низковольтное питание системы NIM. В случае использования микропроцессоров низковольтные источники питания могут работать от аккумуляторов. Эта особенность делает контроллер монитора нечувствительным к кратковременным сбоям питания. В отсутствие резервного питания монитор должен заново начинать работу после каждой потери питания с некоторой задержкой функционирования.

Для случаев долговременного нарушения питания следует предусмотреть резервную сеть питания монитора. Для этого часто используется сеть аварийного питания объекта; если ее нет, то монитор временно может питаться от резервных блоков питания. В ряде случаев на время потери питания в качестве резервного можно использовать ручной монитор.

19.6.4 Диагностика

Простая диагностика может определять дефекты в радиационных мониторах по мере их появления. Диагностические испытания могут выполняться как отдельными, так и объединенными с помощью программы модулями микропроцессорного блока управления. При проверке фона просто сравнивается измеренный фон с верхним и нижним порогами. Неисправный монитор может показывать высокий или низкий фон из-за неработающего или работающего с помехами детектора. Небрежное экранирование детектора или хранение радиоактивного материала вблизи монитора будет также обнаружено при проверке фона. Чтобы обнаружить такие аномалии в случае их появления, обычно проверяется каждое новое значение фона и, при необходимости, отмечается звуковым или визуальным сигналом.

Сложная методика диагностики исследует статистику счета монитора, чтобы определить, что является источником импульсов — регистрация излучения или шумы. В работе [13] описан метод долговременного анализа, который может диа-

гностировать помехи даже в присутствии источников или изменения интенсивности фона.

Для краткого или долговременного анализа подходит дисперсионный анализ, который также применяют при градуировке детектора [14]. Эта методика рассчитывает среднее значение и дисперсию для группы импульсов. Если эти величины приблизительно совпадают, то правильность функционирования детекторов можно быстро установить с помощью дисперсионного анализа. Помехи могут быть обнаружены при однократном измерении, а проблема слабых помех, которые могут повлиять на частоту ложных срабатываний, может быть решена путем усреднения результатов нескольких серий измерений.

19.7 ГРАДУИРОВКА МОНИТОРОВ

Общей причиной таких проблем, как ложные срабатывания и потеря чувствительности, часто является неправильная градуировка. Градуировка включает регулировку коэффициента усиления детекторов, так чтобы они обеспечивали одинаковый отклик на градуировочный источник, а затем регулировку ОКА таким образом, чтобы он реагировал на излучения в ожидаемом диапазоне энергетического спектра. Газоразрядные счетчики не требуют частой градуировки, но градуировку сцинтилляционных детекторов необходимо проводить периодически.

19.7.1 Градуировка сцинтилляционных детекторов

Градуировка сцинтилляционного детектора начинается с установки выбранного значения высокого напряжения питания фотоумножителя, обычно 1000 В, и продолжается регулировкой потенциометра, определяющего коэффициент усиления данного детектора, чтобы получить одинаковые амплитуды сигнала от контрольного источника (например, источника ^{137}Cs с активностью 5 мкКи). Источник размещается в одной геометрии рядом с каждым детектором, а амплитуда импульса контролируется осциллографом на выходе усилителя. Коэффициент усиления для каждого детектора регулируется так, чтобы получить обычно используемую для ^{137}Cs амплитуду импульса — между 2 и 4 В.

19.7.2 Градуировка одноканального анализатора

Дискриминаторы верхнего и нижнего уровня должны быть отрегулированы так, чтобы образовать окно ОКА. Дискриминатор верхнего уровня сначала может быть с использованием осциллографа установлен на требуемую величину из табл. 19.2. Для контроля плутония верхний уровень соответствует 450 кэВ, для высокообогащенного урана (ВОУ) – 220 кэВ.

Дискриминатор нижнего уровня для плутония и ВОУ может быть настроен одинаково на 60 кэВ; однако более низкая настройка, которая чуть выше уровня шума, может улучшить характеристики. Одним из путей установки нижнего значения является проведение измерения интенсивности на входе и выходе с регулировкой дискриминатора до тех пор, пока не будет достигнуто максимальное соотношение $S/\sqrt{B}$ (см. раздел 19.6.2). Эту длительную процедуру можно заменить методикой дисперсионного анализа. При этом выходной сигнал с дискриминато-

ра уменьшается до значения, когда анализ дисперсии регистрирует шум, затем незначительно повышается до точки, когда шум больше не чувствуется.

Таблица 19.2 – Амплитуда импульса гамма-излучения для детекторов с NaI(Tl) и пластмассовым сцинтилляторами*

Энергия гамма-излучения, кэВ	Амплитуда импульса в NaI(Tl)-детекторе, В	Максимальная амплитуда импульса для пластмассового детектора, В
662	2	2
450	1,36	1,20
220	0,66	0,42
60	0,18	0,05

* Детекторы отградуированы на амплитуду импульса 2 В для энергии 662 КэВ.

19.7.3 Периодический контроль градуировки

Чтобы определить, функционирует ли монитор надлежащим образом, необходим его ежедневный контроль. Если при этом применяется источник малой интенсивности (^{133}Ba, 1 мкКи), то проверяются как работа монитора, так и его градуировка. Более тщательная проверка с ядерными материалами выполняется ежеквартально. Дополнительная информация по градуировке мониторов приведена в работе [15].

19.8 МЕТОДЫ ОЦЕНКИ МОНИТОРОВ

Лабораторные испытания должны подтвердить способность монитора надежно обнаруживать радиоактивный материал и определить дефекты конструкции монитора. Обзор оценок пешеходных мониторов ядерных материалов опубликован в работе [16], транспортных мониторов ядерных материалов — в [7] и мониторов загрязнения — в [3]. Эти испытания проводились для определения частоты ложных срабатываний и чувствительности обнаружения на мониторах, которые работали в течение долгого времени без повторной градуировки.

Частота ложных срабатываний и чувствительность взаимозависимы, и определение одного параметра имеет мало смысла без определения другого. Для контроля частоты ложных срабатываний требуется регистрация сигналов срабатывания при постоянном окружающем фоне в течение достаточно длительного периода времени для контроля 10^5 или более циклов выработки решений. Для периодического включения монитора применяется таймер, а между периодами мониторинга уточняется фон. Вероятность ложного срабатывания определяется делением зарегистрированного количества срабатываний на общее количество выполненных тестов. Тогда вероятность ложных срабатываний при проходе через монитор контролируемого лица является результатом числа ложных срабатываний за одно испытание и среднего количества испытаний за проход. Этот вид испытаний не учитывает снижение фона контролируемым лицом, что может привести к

завышенной оценке частоты ложных срабатываний при нормальной эксплуатации.

Чувствительность монитора может определяться путем регистрации вероятности обнаружения монитором проноса через него ядерного материала или источников радиоактивного загрязнения. Интенсивность фона и способ проноса контрольного источника через монитор должны быть нормированы, так же как и другие влияющие на его работу факторы. Поскольку всегда существует некоторая пространственная анизотропия эффективности детектора, испытания должны быть проведены в наименее чувствительной части монитора, например, на уровне пола в пешеходном мониторе. Контрольный источник следует проносить через монитор разными людьми, проходящими своей обычной походкой. Более глубокое рассмотрение вопросов испытаний мониторов представлено в работе [17].

19.9 ПРИМЕРЫ МОНИТОРОВ КОНТРОЛЯ ПЕРИМЕТРА

19.9.1 Ручные мониторы контроля периметра

Ручными мониторами загрязнения обычно проводят измерения мощности дозы для определения вида излучения, хотя некоторые многоцелевые приборы используют фильтры или несколько типов детекторов, реагирующих на различные виды излучения. Мониторы контроля загрязнения являются простыми дешевыми аналоговыми устройствами, которые эксплуатируются нерегулярно и обычно питаются от аккумуляторов. На рис. 19.14 показаны три монитора контроля загрязнений. Два из них — мониторы гамма-излучения: в левом используется NaI(Tl)-детектор, а в правом — счетчик Гейгера-Мюллера большой площади. Монитор в центре — опытный образец многоцелевого прибора, имеющего детекторы для четырех видов излучения, включая нейтронное. Этот прибор [18] вос-

Рис. 19.14. *Три различных ручных монитора контроля загрязнения. Слева направо: прибор контроля гамма-излучения со сцинтиллятором NaI, многоцелевой монитор с четырьмя типами детекторов и монитор поверхностного радиоактивного загрязнения со счетчиками Гейгера-Мюллера. Левый и правый приборы изготовлены фирмой Technical Associates, Канога Парк, Калифорния*

полняет потребность в удобном мониторе со стандартными методиками эксплуатации и градуировки. Чувствительность ручных мониторов загрязнения варьируется в широких пределах. Большинство реагирует на излучение мощностью выше 0,1 мкР/ч, хотя мониторы на основе NaI(Tl) могут работать при естественном фоне в несколько мкР/ч.

Три ручных монитора ядерных материалов, показанные на рис. 19.15, имеют сцинтилляционные детекторы и электронику, работающую от аккумуляторов. В двух из них применяются NaI(Tl)-детекторы, а в том, что слева, используется пластмассовый сцинтиллятор. Приборы обычно имеют перезаряжаемые аккумуляторы и работают в непрерывном режиме контроля пешеходов и транспорта. Каждый монитор генерирует звуковой сигнал, когда он чувствует значительное увеличение интенсивности излучения. Кроме применения в качестве монитора контроля периметра эти весьма чувствительные приборы обнаружения гамма-излучения могут применяться в качестве мониторов поверхностного загрязнения или в качестве мониторов обследования утилизируемого оборудования. Они реагируют на излучение с мощностью дозы в несколько мкР/ч и могут обнаруживать активность 0,5 мкКи изотопа ^{137}Cs при быстром, но тщательном осмотре [19]. Они могут обнаружить несколько граммов высокообогащенного урана или доли грамма плутония низкого выгорания в самых неблагоприятных условиях (неблагоприятные условия характеризуются интенсивностью фона в 25 мкР/ч и максимальным самопоглощением в ядерном материале). В реальной жизни всегда будут реализовываться более хорошие характеристики. Допускаются частые ложные срабатывания этих приборов, одно или два за минуту, поскольку срабатывания в определенной зоне определяют местоположение радиоактивного материала. Случайные срабатывания, которые не повторяются в одной и той же зоне, не уменьшают эффективность мониторинга, потому что они подтверждают, что прибор работает.

Рис. 19.15. *Три ручных монитора ядерных материалов, которые автоматически обнаруживают значительные превышения интенсивности излучения над уровнем фона. Левый и центральный блоки изготовлены фирмой TSA Systems, Inc., Баулдер, Колорадо. Правый блок изготовлен фирмой CMS, Inc., Голета, Калифорния*

19.9.2 Автоматические пешеходные мониторы

Для контроля радиоактивного загрязнения пешеходов промышленностью изготавливаются автоматические мониторы на основе проточных газоразрядных пропорциональных счетчиков, которые в качестве порталов в режиме прохода обнаруживают менее 1 мкКи изотопа ^{137}Cs, а при использовании в качестве высокочувствительных мониторов в режиме ожидания обнаруживают активность продуктов деления или активации ниже 100 нКи. На рис. 19.3 показан портальный монитор, высокая чувствительность которого достигается тем, что поверхность тел досматриваемых пешеходов находится в непосредственной близости от пропорциональных счетчиков. Близость поверхности тела человека к детектору и увеличенное время мониторинга помогают достигнуть высокой чувствительности.

Мониторы ядерных материалов, работающие в режиме прохода (см. рис. 19.1), могут обнаружить менее 10 г высокообогащенного урана и менее 0,3 г плутония низкого выгорания в самых неблагоприятных условиях работы. Типичная частота ложных срабатываний составляет одно срабатывание на 4000 проходов через монитор.

19.9.3 Автоматические транспортные мониторы

Автоматические мониторы загрязнения транспортных средств применяются довольно редко, так как внутренние поверхности транспортного средства обычно должны контролироваться детекторами почти вплотную. Исключением является монитор автотранспорта, показанный на рис. 19.16, который имеет детектор, расположенный в дорожном покрытии. Монитор способен реагировать на материал,

Рис. 19.16. *Этот транспортный монитор проверяет активированные материалы, вывозимые с объекта, на котором имеется ускоритель. Расположенный в земле детектор вызывает сигнал тревоги и фотографирует транспортное средство в случае, если система воспринимает интенсивность излучения, вдвое превышающую уровень фона*

активированный излучением ускорителя, который может вывозиться с объекта. Этот Лос-Аламосский монитор обнаруживает сигнал с уровнем интенсивности, превышающим удвоенный уровень фона. Он предоставил в 1983 г. первое доказательство ввоза в Соединенные Штаты радиоактивной стали из Мексики.

Диапазон автоматических транспортных мониторов контроля ядерных материалов простирается от простых порталов, работающих в режиме проезда, показанных на рис. 19.17, до сложной станции, показанной на рис. 19.12. Кроме расположения детекторов транспортные портальные мониторы во многом похожи на пешеходные портальные мониторы. Порталы движущегося транспорта обнаруживают излучение с интенсивностью, превышающей радиационный фон на 15 %. В самых неблагоприятных условиях они могут обнаружить менее 10 г плутония низкого выгорания с менее, чем одним ложным срабатыванием за 4000 проездов.

Рис.19.17. *Портальный монитор ядерных материалов проверяет автотранспорт, медленно (скорость — 8 км/ч) проезжающий между колоннами с детекторами*

Автотранспорт находится на станции мониторинга, показанной на рис. 19.12, в течение одной минуты или менее. Детекторы расположены небольшими группами выше и ниже транспортного средства, и каждая группа детекторов служит как бы отдельным самостоятельным монитором с собственной электроникой для обработки сигналов и логической выработки решения. Продолжительное время мониторинга и близость группы детекторов к контролируемой поверхности обеспечивают высокую чувствительность: порог обнаружения составляет около 5 % превышения над уровнем фона, что позволяет обнаруживать количества ядерных материалов, подобные тем, которые обнаруживаются в пешеходных мониторах.

19.9.4 Обзор характеристик мониторов

В табл. 19.3 [15] и 19.4 [20] обобщены характеристики, полученные для различных мониторов ядерных материалов. В табл. 19.3 перечислены категории обнаружения ядерных материалов для пешеходных мониторов в режиме прохода при самых худших условиях (определенных в разделе 19.9.1 и в сноске * к таблице) и частоте ложных срабатываний — 1 за 4000 проходов. Масса материала, которая может быть обнаружена, приведена для четырех категорий характеристик, каждая из которых требует определенных сочетаний детекторов, расположения портала и сложности логических схем обработки сигналов.

Четыре категории характеристик в табл. 19.3 базируются на нормировании количества обнаруживаемого ядерного материала. Для категории I требуется обнаружение 1 г плутония низкого выгорания при интенсивности фона 25 мкР/ч. Эта задача может быть выполнена небольшими детекторами с расстоянием от объекта до портала более 80 см с помощью простых методик. Для категории II требуется обнаружение 10 г высокообогащенного урана, а для категорий III и IV необходимы лучшие характеристики мониторов, чем нынешние нормативные показатели. Для категорий II–IV требуются большие детекторы, расстояния до портала менее 80 см и самые современные алгоритмы обнаружения. Заметим, что обнаружение небольших масс ядерного материала связано с регистрацией сигналов малой амплитуды. Следовательно, категории мониторов с большим номером более чувствительны к процессам, связанным с колебаниями радиационного фона. Мониторы категории III и IV подходят только для случаев, когда фон относительно постоянен.

В табл. 19.4 обобщены чувствительности обнаружения материала для различных типов транспортных мониторов. Оценки этих характеристик также приведены для самых худших условий (определенных в разделе 19.9.1 и в сноске * к таблице).

Таблица 19.3 — Категории обнаружения ядерных материалов для мониторов в режиме прохода* [15]

Категория	Описание	Уран**, г	Плутоний***, г
I	Эталон плутония	64	1
II	Эталон урана	10	0,29
III	Повышенная чувствительность	3	0,08
IV	Высокая чувствительность	1	0,03

*Условия испытаний: интенсивность фона 25 мкР/ч; эталонный металлический контрольный источник закреплен ниже щиколотки человека, идущего с нормальной скоростью и с походкой, приводящей к колебаниям источника внутри монитора. Результаты испытаний должны дать 95 % уверенности в том, что вероятность обнаружения составляет 50 % или выше при частоте ложных срабатываний 1/4000 проходов или меньше.

**Высокообогащенный уран.

***Плутоний низкого выгорания, только что отделенный от дочерних продуктов или защищенный кадмиевым покрытием толщиной 0,4-0,8 мм.

Таблица 19.4 – Чувствительность обнаружения ядерного материала в транспортных мониторах в самых неблагоприятных условиях [20]

Тип транспортного монитора	Порог обнаружения *		Интенсивность ложных срабатываний **
	плутоний низкого выгорания, г	ВОУ, г	
Ручной монитор	3–9	100–300	1/100
Транспортный портал	10	1000	1/4000
Станция мониторинга	0,3	40	3/1000

*В самых неблагоприятных условиях в неподвижном 1-тонном автофургоне, кроме портала 5-метровой ширины, где он движется со скоростью 8 км/ч. Интенсивность фона 20 мкР/ч и достаточно высокий уровень экранирования конструктивными элементами автотранспорта. Обнаружение подразумевает вероятность обнаружения 50 % или выше. При нормальных условиях получаются лучшие характеристики.
**Интенсивность ложных срабатываний для пустого монитора.

ЛИТЕРАТУРА

1. EG&G Inc., Santa Barbara Division (R.W. Hardy, R.B. Knowlen, C.W. Sandifer, and W.C. Plake), US Patent No. 3,670,164, 1972.
2. W.E. Kunz, “Portable Monitor for Special Nuclear Materials,” Los Alamos Scientific Laboratory publication LASL-77-18 (1977).
3. M. Littleton, “High Sensitivity Portal Monitors—A Review,” Institute of Nuclear Power Operations report 82-001-EPN-01 (1982).
4. US Department of Energy Order 5632.2, “Physical Protection of Special Nuclear Material,” 1979.
5. US Atomic Energy Commission Regulatory Guide 5.7, “Control of Personnel Access to Protected Areas, Vital Areas, and Material Access Areas,” 1973.
6. P.E. Fehlau, J.C. Pratt, J.T. Markin, and T. Scurry, Jr., “Smarter Radiation Monitors for Safeguards and Security,” *Nuclear Materials Management* XII (Proceedings Issue), 294 (1983).
7. P.E. Fehlau, C. Garcia. Jr., R.A. Payne, and E.R. Shunk, “Vehicle Monitors for Domestic Perimeter Safeguards,” Los Alamos National Laboratory report LA-9633-MS (1983).
8. A. Wald, *Sequential Analysis* (Dover Publications, Inc., New York, 1973).
9. P.E. Fehlau, K.L. Coop, and J.T. Markin, “Application of Wald's Sequential Probability Ratio Test to Nuclear Materials Control,” in Proceedings of Joint Specialists Meeting, ESARDA/INMM, Ispra, Italy, 1984.
10. C.N. Henry and J.C. Pratt, “A New Containment and Surveillance Portal Monitor Data Analysis Method,” *ESARDA* 10, 126-131 (1979).
11. C.R. Hurlbut. “Plastic Scintillators — A Survey,” presented at American Nuclear Society winter meeting, Nov. 1985 (available from Bicron Corp., Newbury, Ohio).

12. P.E. Fehlau and G.S. Brunson, “Coping with Plastic Scintillators in Nuclear Safeguards,” *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-30, 158 (1983).

13. E. Appel, M. Giannini, and A. Serra, “A New Method of Self-Diagnosis for Pulse Measuring Systems,” *Nuclear Instruments and Methods* 192, 341 (1981).

14. K.V. Nixon and C. Garcia, “Hand-Held Pulse-Train-Analysis Instrument,” *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-30, 331 (1983).

15. P.E. Fehlau, “An Applications Guide to Pedestrian SNM Monitors,” Los Alamos National Laboratory report LA-10633-MS (1986).

16. P.E. Fehlau, T.E. Sampson, C.N. Henry, J.M. Bieri, and W.H. Chambers, “On-Site Inspection Procedures for SNM Doorway Monitors,” Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7646 (NUREG/CR-0598) (1979).

17. P.E. Fehlau, “Standard Evaluation Techniques for Containment and Surveillance Radiation Monitors,” *ESARDA* 15, 195 (1982).

18. C.J. Umbarger, G.O. Bjarke, B.H. Erkkila, F. Trujillo, D.A. Waechter, and M.A. Wolf, “New Generation of Radiacs: Small Computerized Multipurpose Radiation Monitors,” *IEEE Transactions on Nuclear Science* NS-30, 528 (1983).

19. P.E. Fehlau, “Hand-Held Search Monitor for Special Nuclear Materials. User's Manual,” Los Alamos National Laboratory publication LALP-84-15 (1984).

20. P.E. Fehlau, “An Applications Guide to Vehicle SNM Monitors,” Los Alamos National Laboratory report LA-10912-MS (1987).

Глава 20

Качественные и полуколичественные измерения

Н. Энсслин и Х. А. Смит, мл.
(Переводчик Н.В. Мошкина)

20.1 ВВЕДЕНИЕ

Измерения ядерных материалов осуществляются обычно с помощью количественного анализа, цель которого состоит в определении численного значения количества ядерного материала. Количественный анализ выполняется с наивысшей из возможных точностью и сходимостью результатов измерения, при этом предварительные сведения об измеряемых образцах могут быть достаточно обширными. Однако существует целый ряд задач контроля, которые могут быть решены в большей степени с помощью качественной информации об измеряемых образцах, предварительные сведения о которых могут быть различными. Вот несколько примеров:

- определение характеристик немаркированных или ошибочно маркированных образцов;
- определение содержания ядерного материала по принципу “да/нет” для задач его извлечения, захоронения, транспортировки или обеспечения ядерной безопасности;
- проведение быстрой инвентаризации с целью проверки соответствия заявленным значениям;
- подтверждение получателем данных поставщика;
- определение мест отложений ядерных материалов;
- технологический контроль;
- контроль за перемещением материалов.

Большинство этих задач могут быть выполнены с помощью качественных или полуколичественных измерений, которые являются достаточно быстрыми, чтобы сэкономить время, деньги и снизить облучение персонала.

Методы неразрушающего анализа хорошо подходят к этим типам измерений, потому что они, как правило, являются быстрыми, неинтрузивными и способны измерять упаковку целиком. Если неразрушающее измерение осуществляется тщательно и точно, его можно рассматривать как *количественный анализ материала*. Если измерение является полностью качественным и определяет только характерный признак, качество или характеристику материала, то его можно рассматривать как *качественное (атрибутивное) измерение*. Между этими крайними типами измерений находятся полуколичественные измерения, к числу которых относятся определение характеристик отходов, контроль за перемещением материалов, проведение быстрой инвентаризации и идентификация, измерение

отложений ядерных материалов. Такие полуколичественные измерения часто очень важны в повседневной эксплуатации установок ядерного топливного цикла.

В разделе 20.2 изложены атрибутивные признаки ядерных материалов и способы их измерений. В остальных частях главы рассматриваются полуколичественные измерения отходов (раздел 20.3), подтверждающие измерения при проведении инвентаризации и передаче материалов (раздел 20.4), измерения отложений (разделы 20.5 и 20.6). Полуколичественные измерения сложнее, чем качественные измерения, но проще, чем полные количественные измерения. Для рассмотрения двух других задач измерений, которые попадают в категорию полуколичественных измерений, см. главу 18 по анализу облученного топлива и главу 19 по портальному мониторингу.

20.2 ИЗМЕРЕНИЕ АТРИБУТИВНЫХ ПРИЗНАКОВ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ

Основная задача в измерении атрибутивных признаков ядерных материалов заключается просто в определении наличия или отсутствия ядерного материала в образце. В этом смысле термин “ядерный материал” относится ко всем формам и соединениям урана и плутония, к радиоактивным источникам, а также к америцию, торию и другим радиоактивным элементам. Основные атрибутивные признаки по излучению (относительно типа материала) перечислены ниже:

- альфа-излучение;
- бета-излучение;
- гамма-излучение;
- инфракрасное излучение (тепловое);
- полный поток нейтронов;
- нейтронные совпадения;
- высокое значение сечения деления для тепловых нейтронов (с испусканием мгновенных и запаздывающих гамма-квантов и нейтронов).

Информация о скоростях испускания излучений этих атрибутивных признаков содержится в главах 1, 11 и 21 и в работах [1] и [2].

Ядерный материал обычно является также очень плотным и сильно ослабляет гамма-излучение. Следующим атрибутивным признаком урана и плутония является наличие разрывов в их сечениях поглощения рентгеновского излучения на K- и L_{III}-краях поглощения (глава 9). Из всех атрибутивных признаков, перечисленных выше, только коэффициенты пропускания гамма-излучения на краях поглощения обеспечивают однозначную идентификацию материала. Однако на практике, характеристики процесса деления урана и плутония являются уникальными, поскольку на установках топливного цикла отсутствуют делящиеся изотопы других элементов. Гамма-спектрометрия также обеспечивает недвусмысленную идентификацию, особенно, если спектры измеряются с высоким разрешением. Хотя другие упомянутые атрибутивные признаки также являются необходимыми характеристиками ядерного материала, они не подходят для однозначной идентификации.

В полномасштабном анализе ядерных материалов почти все атрибутивные признаки, представленные выше, когда-нибудь измеряются. Простой путь рас-

смотрения качественных измерений — это отношение к ним как к неполному анализу. Данные получаются точно так же, как и в полном анализе, но измерения проводятся быстрее, с меньшей точностью и часто без использования абсолютной градуировки измерительного устройства. Даже полуколичественные подверждающие или проверочные измерения могут заключаться только в определении изменения относительной величины атрибутивного признака от образца к образцу. В табл. 20.1 представлены измерительные приборы, которые всегда имеются на ядерных установках, и атрибутивные признаки, которые они могут обнаруживать. Для полноты изложения в таблицу включены некоторые приборы активного анализа.

Качественные измерения могут быть очень эффективным средством для определения характеристик, проверки или контроля ядерного материала. Измеренные в отдельности, атрибутивные признаки ядерного материала обеспечивают простые ответы на вопросы, возникающие при инвентаризации. Измерением нескольких атрибутивных признаков можно получить очень надежную или даже однозначную информацию с минимальными усилиями.

Таблица 20.1 — Измерительные приборы и определяемые ими атрибутивные признаки

Прибор	Атрибутивный признак
Визуальная проверка	Упаковка, предыстория, цвет
Весы	Вес, плотность
Альфа-счетчик	Наличие альфа-частиц, загрязнение
Счетчик Гейгера	Грубая оценка интенсивности бета/гамма-излучения; наличие U, Pu или Am
Гамма-спектрометр	Спектр гамма-излучения; характерные признаки U, Pu; обогащение; выгорание
Радиограф	Плотность, распределение, форма
Плотномер	Плотность; края поглощения рентгеновского излучения; характерные признаки U, Pu
Калориметр	Тепловыделение; наличие высокой альфа-активности; теплота подразумевает наличие Pu, Am
Пассивный счетчик полного потока нейтронов	Испускание нейтронов; наличие спонтанных делений или (α,n)-реакций
Пассивный счетчик нейтронных совпадений	Спонтанные или вынужденные деления; вероятное наличие Pu или Cf
Активный счетчик нейтронных совпадений	Вынужденные деления; вероятное наличие U или Pu
Калифорниевый шаффлер	Запаздывающие нейтроны вынужденных делений; вероятное наличие U или Pu
Сканер топливных стержней	Запаздывающие нейтроны или гамма-кванты; вероятное наличие U или Pu

20.3 КОЛИЧЕСТВЕННАЯ СОРТИРОВКА ОТХОДОВ

20.3.1 Цель

На установках ядерного топливного цикла часто образуются большие количества отходов, которые загрязнены лишь в незначительной степени или предположительно загрязнены вследствие их близости к другим материалам. Отходы этого типа обычно упаковываются в 55-галонные (200-литровые) бочки или в контейнеры большого объема и отправляются на площадки с поверхностным захоронением для последующей возможной переработки. Для минимизации объема отходов, подлежащих в конечном счете переработке, важно определить уровень радиоактивности в отходах в месте их образования. Современные нормативные документы допускают захоронение отходов в хранилищах, не предусматривающие дальнейшей переработки, если уровень радиоактивности ниже 100 нКи/г отходов. (Средний уровень радиоактивности грунта в США составляет около 10 нКи/г. До недавнего времени уровень радиоактивности для постоянного захоронения определялся этим пределом). Цель сортировки низкоактивных отходов неразрушающими методами заключается в том, чтобы дополнить или заменить административный контроль за сортировкой отходов при уровне радиоактивности 100 нКи/г. Имеющийся опыт показывает, что объем неперерабатываемых отходов может быть уменьшен в 10 и более раз.

Неразрушающее измерение низкоактивных отходов затруднено тем, что используются большие контейнеры (начиная от ящиков объемом 57 л и заканчивая бочками объемом 208 л и упаковками размером 122×122×213 см (3300 л)), а количество содержащегося в них ядерного материала небольшое. Радиационный уровень 100 нКи/г эквивалентен приблизительно 160 мг ^{239}Pu, 1 г ^{233}U или 4,4 кг ^{235}U, содержащимся в 100 кг отходов. Вследствие больших размеров контейнеров и низкого уровня радиоактивности, в неразрушающих измерениях большее значение придается чувствительности, а не точности. Обычными требованиями к измерениям часто являются чувствительность в диапазоне от 1 до 10 нКи/г и погрешность ±20 %. Этот уровень погрешности считается достаточным для сортировки отходов при условии, что должна быть устранена большая систематическая недооценка, чтобы избежать потери значительного количества перерабатываемого ядерного материала, и чтобы реальное количество захораниваемого ядерного материала не превысило норм ядерной безопасности.

20.3.2 Чувствительность к гамма-квантам и нейтронам

В табл. 20.2 представлены приблизительные пределы обнаружения методик неразрушающего анализа для ^{235}U и плутония (10 % ^{240}Pu, 90 % ^{239}Pu) [3-5]. Пределы обнаружения даны для измерений в течение 1000 с для сигнала, превышающего фон на три стандартных отклонения (доверительная вероятность 99 %). Предел обнаружения является функцией отклика детектора на грамм ядерного материала и окружающего фона (как задано уравнениями (15.7) и (15.8) в главе 15). Пределы, приведенные в табл. 20.2, основаны на разумном оценивании вклада фона. Предел обнаружения также является функцией размеров и эффективности детектора. Пределы в табл. 20.2 представляют измеренные или экстраполированные значения для детекторов, способных измерять 55-галлонные бочки в случаях, когда не нужна свинцовая защита для снижения фона от гамма-излучения продуктов деления, содержащихся в отходах.

Вообще, пассивный счет гамма-излучения с помощью сегментного сканирования не является достаточно чувствительным для сортировки отходов с уровнем радиоактивности 100 нКи/г. Для уровней загрязнения свыше 1 г сегментное гамма-сканирование является наиболее надежной методикой для количественных измерений ^{235}U и ^{239}Pu вплоть до предела проникающей способности гамма-квантов с энергиями 186 и 414 кэВ. Для 57-литровых картонных ящиков, содержащих отходы со средней плотностью 0,1 г/см^3, чувствительность метода пассивной регистрации рентгеновских квантов L-линии составляет менее 1 нКи/г [6].

Хотя результаты пассивных гамма-измерений ядерных отходов обычно занижены вследствие самоослабления гамма-излучения, результаты пассивных нейтронных измерений обычно завышены из-за дополнительных нейтронов, возникающих в результате (α,n)-реакций. Примеры влияния (α,n)-реакций представлены в разделе 15.5.1. Активные нейтронные методы не подвержены влиянию фона, если источник подсветки достаточно мощный. Однако результаты измерений активными методами могут быть сильно смещены либо в сторону завышения, либо в сторону занижения в зависимости от эффектов замедления и поглощения входящих и выходящих нейтронов в матрице образца. Для конкретного способа сортировки отходов выбор методики измерений должен проводиться с учетом таких факторов, как стоимость, простота, чувствительность и проникающая способность излучения.

Таблица 20.2 – Пределы обнаружения для ядерных отходов* [3-5]

Методика неразрушающего анализа	Эффективность, %	^{235}U	Pu (10 % ^{240}Pu)
Пассивная регистрация гамма-квантов	1	100 мг	100 мг
Пассивная регистрация тепловых нейтронов	15	Н/О**	18 мг
Пассивная регистрация совпадений тепловых нейтронов	15	Н/О	6 мг
Пассивная регистрация совпадений быстрых нейтронов	25	Н/О	300 мг
Активная регистрация совпадений тепловых нейтронов	15	10 г	35 г
Активная регистрация совпадений быстрых нейтронов	25	70 мг	130 мг
Фотонейтронная подсветка (источник 3×10^8 н/с)	0,25	8 мг	6 мг
Регистрация запаздывающих нейтронов (источник 2×10^9 н/с)	15	6 мг	14 мг
Дифференциальное затухание нейтронного сигнала	14	1 мг	1 мг

* Время счета 1000 с; превышение сигнала над фоном — 3σ; без защиты от гамма-излучения продуктов деления; ядерный материал в форме оксида.
**Н/О — не обнаруживается

20.4 ПОДТВЕРЖДАЮЩИЕ ИЗМЕРЕНИЯ

20.4.1 Цель

На многих установках, находящихся под контролем Комиссии по ядерному регулированию и Министерства энергетики США, часто и в больших масштабах осуществляются процессы передачи и хранения необлученных ядерных материалов. Множество вопросов обеспечения гарантий возникает во время процесса отправки, получения и проверки инвентарных количеств ЯМ. Проведение измерений может помочь подтвердить, что:

а) не было переключений материалов при транспортировке;

б) идентификация учетной единицы проведена правильно;

в) отсутствует радиационная опасность для рабочих;

г) данные об инвентарных количествах достоверны.

Такие подтверждающие измерения могут оказаться более простыми, чем измерения, проводимые для целей учета. Например, на их проведение требуется меньше времени и меньшее количество процедур по распаковке или переупаковке материала. Также они могут быть более разнообразными. Однако в общем случае они менее точны. Подтверждающие измерения определяют такие атрибутивные признаки как вес, спектр гамма-излучения, полный поток нейтронного излучения и обогащение, которые, взятые в целом, очень трудно имитировать.

Когда ядерный материал передается с одной установки на другую, существующие нормативные документы предписывают, чтобы получатель производил проверку количества мест, идентификацию и измерение веса-брутто учетных единиц в поставке. Обычно получатель должен выполнить учетные измерения в течение 10 календарных дней. На практике, однако, этого часто трудно достичь из-за: а) отсутствия необходимого технического персонала и аппаратуры неразрушающего анализа; б) длительности времени, необходимого для проведения химического анализа и передачи образцов со склада и на склад хранения; в) радиационного облучения персонала во время упаковки и распаковки. К тому же трудности при измерении относительно небольшого количества материалов скрапа могут задержать подведение баланса материала по поставке. Один из надежных подходов, облегчающий эти проблемы, заключается в проведении подтверждающих измерений как на установке отправителя, так и на установке получателя. Причем измерения на обеих установках проводятся одинаковыми или однотипными измерительными приборами [7]. Такие измерения могут подтвердить, что в поставке нет отсутствующих, неправильных или поддельных учетных единиц.

Когда ядерный материал хранится на установке, существующие нормативные документы предписывают проведение периодических инвентаризаций на всей установке и в хранилище ядерных материалов. Подтверждающие измерения, проводимые в это время на случайно выбранном образце, могут помочь идентифицировать неправильно маркированные учетные единицы и повысить достоверность процесса инвентаризации [8].

20.4.2 Варианты неразрушающего анализа

Методики неразрушающего анализа хорошо подходят для подтверждающих измерений благодаря их быстроте и возможности измерять учетную единицу в целом. В некоторых случаях возможно также измерять весь транспортный кон-

тейнер, хотя и с некоторой потерей точности. В этом разделе изложены варианты подтверждающих измерений, основанные на неразрушающем анализе радиационных характеристик плутония или урана.

Для большинства образцов плутония сочетание калориметрии и гамма-спектрометрии обеспечивает наименьшую достигаемую погрешность: от 0,5 до 2 % для однородных материалов. Однако такое измерительное оборудование обычно предназначается только для учетных измерений из-за его относительно высокой стоимости, сложности и низкой производительности. Более простым вариантом для материалов с низкой плотностью является пассивная регистрация гамма-квантов в пике с энергией 414 кэВ от ^{239}Pu либо в дальней геометрии, либо посредством сегментного сканирования. Однако большинство материалов, содержащих плутоний, которые привлекательны для возможных переключений, являются слишком плотными для регистрации гамма-излучения и наилучшим образом измеряются с помощью пассивной регистрации нейтронов. Эта методика относительно проста и может иногда применяться для 30- или 55-галлонных (114- или 208-литровых) транспортных бочек без распаковки. Колодезный счетчик нейтронов должен иметь равномерную эффективность по всему объему образца. К тому же мертвое время электроники должно быть небольшим и хорошо известным, чтобы можно было точно определять скорости счета.

Подтверждающие нейтронные измерения плутония могут быть основаны на регистрации полного потока нейтронов или нейтронных совпадений, при этом число совпадений является более конкретным атрибутивным признаком. Времена измерений находятся в диапазоне от 100 до 1000 с. Типичные значения погрешности быстрых подтверждающих измерений составляют от 1 до10 % для хорошо охарактеризованных материалов, 25 % для скрапа с примесями и 50 % для гетерогенных материалов с высокой интенсивностью потока нейтронов (α,n)-реакции [8]. Однако повторяемость результатов грубых измерений составляет приблизительно 1 %. В техническом плане было бы чрезвычайно трудно создать поддельную учетную единицу с тем же весом, скоростью счета полного потока нейтронов и скоростью счета нейтронных совпадений, что и у реальной учетной единицы. Это также справедливо для гетерогенных материалов с высокими интенсивностями альфа-распада, для которых точность анализа является низкой, однако измерения нейтронных атрибутивных признаков достаточно точны.

Для пассивных нейтронных измерений плутония нижеследующие рекомендации показывают, как наблюдаемые скорости счета соотносятся с конкретными атрибутивными признаками материала:

1. Полная скорость счета нейтронов пропорциональна содержанию воспроизводящего изотопа, но зависит также от скорости (α,n)-реакции. Если содержание воспроизводящего изотопа может быть определено из скорости счета совпадений, тогда любой “избыток” полной скорости счета может быть объяснен химическим составом или примесями.

2. Скорость нейтронных совпадений пропорциональна содержанию воспроизводящего изотопа, но может повышаться за счет вынужденных делений.

3. Отношение числа нейтронных совпадений к полному числу нейтронов является функцией саморазмножения образца и косвенным образом — содержания делящегося изотопа. Для гетерогенного плутониевого скрапа с очень сильной интенсивностью (α,n)-реакций отношение числа нейтронных совпадений к полно-

му счету нейтронов может являться наилучшей из возможных мерой содержания ^{239}Pu, возможно с точностью в пределах 10 %, если сделана поправка на содержание ^{240}Pu [9].

4. Разность между числом нейтронных совпадений с кадмиевой облицовкой в колодезном счетчике и без нее, деленная на полное число нейтронов, является мерой содержания делящегося изотопа (раздел 17.3.3 и [10]).

Подтверждающие измерения урана более трудны, чем аналогичные измерения плутония. Скорости испускания альфа-частиц недостаточно высоки, чтобы провести измерение тепловыделения. Возможны измерения обогащения с регистрацией гамма-излучения с энергией 186 кэВ, но информативной является только поверхность материала, и требуется хорошо коллимированная геометрия снаружи транспортной бочки. Для материалов с низкой плотностью могут использоваться гамма-измерения в дальней геометрии. Они также используются для проведения подтверждающих измерений материалов высокой плотности с точностью в пределах коэффициента 2 [8].

Измерение образцов урана в балк-форме требует использования активных нейтронных систем, простейшей из которых является активный колодезный счетчик совпадений AWCC (Active Well Coincidence Counter) (раздел 17.3.1). В режиме измерения тепловых нейтронов AWCC подходит для образцов, содержащих от 5 до 100 г ^{235}U. В режиме измерения быстрых нейтронов использование прибора ограничивается образцами, содержащими 50 г и более ^{235}U, даже для времени счета 1000 с вследствие высокого фона случайных совпадений нейтронов источников подсветки. Между источниками и ураном должна поддерживаться хорошая привязка, для чего обычно необходимо использование небольших контейнеров. Таким образом, активный счет совпадений урана не является таким же разнообразным или простым, как пассивный счет совпадений плутония.

Ниже приведены два конкретных примера применения активного счета нейтронов урана:

1. Смешанные уран-плутониевые образцы: сигнал от пассивных совпадений пропорционален содержанию ^{240}Pu, но может быть увеличенным за счет вынужденного деления в ^{235}U. Поправка на саморазмножение может компенсировать вынужденное деление, но не обеспечит непосредственно определяемого содержания ^{235}U. Определение содержания делящихся изотопов ^{235}U или ^{239}Pu практически не осуществимо активным счетом совпадений и требует более сложных активных нейтронных измерительных систем.

2. Высокообогащенный уран в баллонах с UF_6: отношение числа нейтронных совпадений к полному числу нейтронов пропорционально содержанию ^{235}U с точностью в пределах от 2 до 10 % (раздел 17.3.4).

20.4.3. Современная практика

Несколько последующих примеров отражают современную практику проведения подтверждающих измерений на установках в Хэнфорде, Рокки Флэтс, Лос-Аламосе и Саванна-Ривер. Примеры иллюстрируют различные подходы и уровни точности; они располагаются в тексте примерно по мере увеличения степени достоверности.

Была проведена проверка разнообразных хранимых ядерных материалов с помощью подтверждающих измерений на случайной выборке образцов из налич-

ного инвентарного количества [8]. Предпочтительными методиками были пассивная регистрация нейтронных совпадений плутония и пассивная регистрация гамма-квантов урана в дальней геометрии. Приблизительно 5 % этих измерений оказались недействительными из-за плохой счетной статистики, неподходящих матриц, геометрий материалов или отсутствия соответствующих стандартных образцов. Другие 5 % были оценены как недостоверные, поскольку результаты расходились с данными, полученными ранее на аналогичных учетных единицах. Для последних 5 % учетные измерения были выполнены с привлечением измерительной аппаратуры или методики высшего качества. Примерно в половине этих случаев более точные учетные измерения показали, что первоначальная маркировка образцов действительно была неправильной.

Подтверждающие измерения поступающего металлического скрапа плутония в транспортных контейнерах типа “птичья клетка” осуществлялись пассивной регистрацией нейтронных совпадений [11]. Измерение самого транспортного контейнера, а не каждой содержащейся внутри учетной единицы, привело к восьмикратному сокращению рабочего времени и тридцатикратному снижению радиационного облучения. Погрешность измерения для всего транспортного контейнера составила приблизительно 5 % по сравнению с 2,5 % (1σ) для отдельных учетных единиц. Получатель смог проверить поступающий груз в течение трех рабочих дней.

Подтверждающие измерения оксида плутония выполнялись как отправителем, так и получателем с использованием счетчиков нейтронных совпадений разной конструкции [8]. Счетчики измеряли отдельные банки вне транспортных контейнеров. Попыток нормировки отклика одного счетчика относительно отклика другого счетчика сделано не было. Вместо этого подтверждение основывалось на отношении откликов. Отношения полного числа нейтронов до и после отправки согласовывались с погрешностью 0,5 % (1σ), а отношения числа нейтронных совпадений согласовывались с погрешностью 1,5 % (1σ). Получатель также сравнивал результаты своих измерений реальной массы плутония, полученные путем регистрации нейтронных совпадений, с результатами, полученными методом калориметрического анализа для восьми партий банок. Это сравнение не было точным, т.к. разброс значений составил 4,1 % (1σ). Повышенная погрешность определения массы объясняется различиями в осадке, плотности оксида, влажности или изотопном составе между партиями. Например, счет нейтронных совпадений от 1 кг оксида плутония может измениться приблизительно на 1 % при изменении плотности на 5 % (см. рис. 16.14 в главе 16).

Подтверждающие измерения содержания плутония в золе, песке, шлаках, тиглях и оксидах проводились получателем и отправителем с помощью сегментных гамма-сканеров различных конструкций [8]. Стандартные образцы были изготовлены отправителем, откалиброваны на калориметре отправителя и отправлены получателю. Результаты измерений получателем содержания ^{239}Pu согласовались с результатами измерений отправителем в пределах от 1 до 4 % (1σ).

Подтверждающие измерения металлического плутония и оксида плутония, содержащих примеси, проводились двумя одинаковыми счетчиками нейтронных совпадений, которые измеряли транспортные контейнеры с 30-галлонными бочками. На рис. 20.1 показан разрез одного из счетчиков. Эти счетчики являются первыми измерительными приборами, разработанными специально для подтверждающих измерений [12]. Конструкция счетчика включает две дверцы, ролики

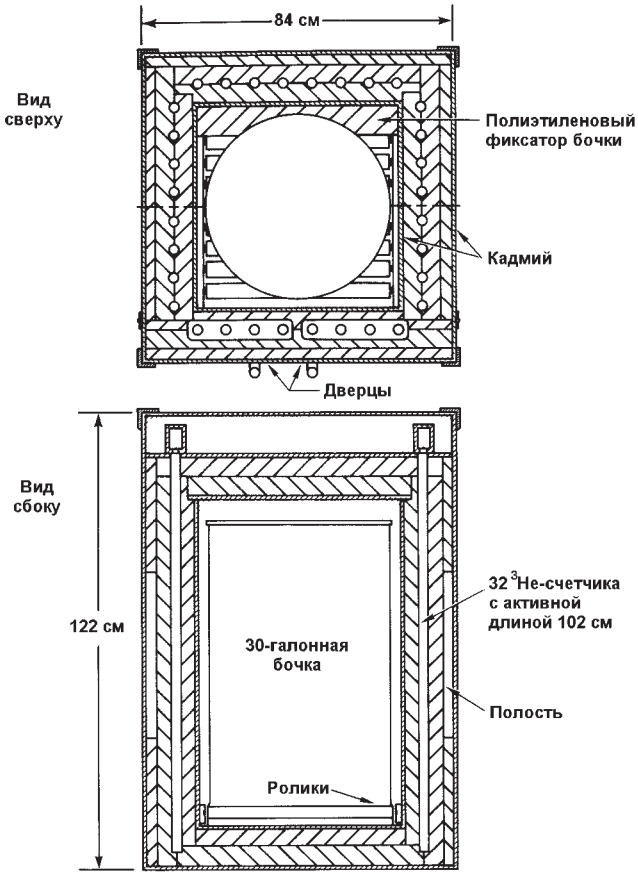

Рис. 20.1. *Разрез одного из счетчиков, построенного специально для подтверждающих измерений отправителем и получателем плутония в 30-галлонных транспортных бочках [11 и 12]*

для бочек, манипулятор бочки и полости в полиэтиленовой стенке для выравнивания вертикального профиля эффективности. Нормировка откликов приборов отправителя и получателя осуществлялась путем обмена источниками ^{252}Cf, данными по измерениям источника и данными по измерению фона. Подтверждающие измерения состояли из трех 100-секундных циклов регистрации полного потока нейтронов. Первоначальные результаты обеспечили точность проверки отправителем/получателем в пределах от 2 до 3 % для оксида и в пределах 1 % для металла [11]. Имеет место небольшое смещение, которое может быть обусловлено осаждением содержимого контейнера во время перевозки.

20.5 ОТЛОЖЕНИЯ ЯДЕРНОГО МАТЕРИАЛА

Термин “отложение” относится к накоплению ядерного материала внутри технологического оборудования ядерных установок. Другими общепринятыми терминами для такого материала являются “скрытое инвентарное количество”, “технологические потери” и “незавершенная продукция”. Выбор терминологии частично зависит от применения или точки зрения. Например, ядерный материал, который остается в установке после переработки всего продукта в балк-форме

может быть назван “незавершенной продукцией”. Материал, который остается после тщательной уборки, протирки, кислотного выщелачивания и промывки, может быть назван “фиксированным отложением”.

Из-за высокой экономической ценности ядерного материала, необходимости обеспечения радиационной и ядерной безопасности, а также с целью обеспечения гарантий против краж или переключений ядерных материалов, важно минимизировать отложения, измерить или смоделировать их величины и удалить их. Причины и механизмы возникновения отложений, а также методики моделирования и измерения отложений рассматриваются в оставшихся разделах этой главы.

20.5.1 Причины и механизмы

Ядерный материал имеет тенденцию к накапливанию в трещинах, порах и областях с плохой циркуляцией внутри технологического оборудования. Кроме того, на внутренних поверхностях труб, резервуаров, трубопроводов, печей, перчаточных боксов и другого оборудования могут накапливаться значительные отложения. Когда площадь внутренней поверхности большая, суммарное количество отложений может оказаться достаточным для влияния на заводскую инвентаризационную разность [13]. Количество отложений зависит от характера технологического процесса и физической формы промежуточных растворов, осадков и порошков. Кроме того, нарушения технологии могут привести к большим, скоротечным и непрогнозируемым отложениям материалов.

Ниже представлены некоторые механизмы накопления материалов [14]:

- постепенное осаждение мелких частиц в зонах с плохой циркуляцией или низкой скоростью потока;
- химическая реакция ядерных материалов с внутренними стенками или миграция материалов внутрь стен;
- твердые или жидкие образования продукта или выпадение осадка в результате непредусмотренных химических реакций;
- электростатическое осаждение или накопление заряженных частичек;
- разбрызгивание, кипение или спекание материалов в результате неуправляемых химических реакций.

20.5.2 Величина отложения

Исходя из механизмов образования отложений, представленных в предыдущем разделе, можно определить зоны, в которых отложения могут быть значительными. К таким зонам относятся: угловые изгибы, стыки и швы в трубах и трубопроводах; застойные зоны или зоны с турбулентным потоком; оборудование с большими внутренними поверхностями, такое, как резервуары с кольцами Рашига, фильтры, перчаточные боксы и печи; а также технологические процессы с растворами агрессивных кислот или высокими концентрациями ядерных материалов. Величину отложений в этих зонах трудно оценить из-за ее зависимости от таких факторов, как компоновка оборудования, частота технологических отказов, ремонтных и очистных процедур и производительность установки.

Некоторые типовые величины отложений, наблюдаемых в оборудовании на некоторых установках по переработке урана и плутония, даны в табл. 20.3. Приве-

денные числовые значения являются типичными только для зон со значительными отложениями, но по ним можно предположить, что экстраполяция по всем основным зонам технологического процесса на установках даст десятки или сотни килограммов суммарных отложений. Величина отложений может составлять от 0,1 до 0,2 % полной производительности установки даже после тщательной разрушающей зачистки оборудования. Если ядерный материал вводится в новую установку, то первоначальное отложение может составлять от 1 до 10 % от производительности установки на первом этапе ее эксплуатации. Поскольку конструкция установки может оказывать влияние на количество отложений, Комиссия по ядерному регулированию предложила проектные соображения по минимизации отложений [15-17].

Таблица 20.3 – Типичные величины отложений в оборудовании установок

Перчаточные боксы, г	0 — 50
Перчаточные боксы (после разрушающей зачистки), г/м^2	2
Дробилки, г	1 — 100
V-образные смесители, г	1 — 50
Фильтры перед перчаточными боксами, г	2 — 100
Фильтры после перчаточных боксов, г	10 — 100
Внутренние поверхности оборудования (после обычной зачистки), г/м^2	10 — 50
Трубы (после разрушающей зачистки), г/м	0,3
Трубопроводы (без зачистки), г/м	1 — 100
Стеклянные колонны, г	1
Кольцевые резервуары, г	1 — 10
Резервуары, заполненные кольцами Рашига (после промывки), г	1 — 500
Поддоны для растворителей, г	10 — 500
Небольшие печи для прокаливания, г	5 — 50
Печи, г	50 — 500
Поддоны для печей, г	1 — 10
Печи для сжигания, г	Неск. тысяч
Бетонные сливные бассейны, г	Неск. тысяч

20.5.3 Статистическое моделирование

Определение мест локализации материала, отложенного в технологическом оборудовании, и его переработка чрезвычайно сложны. Даже измерение количества отложений является трудной задачей и подвержено множеству неопределенностей (раздел 20.6). Возможным альтернативным методом для получения некоторых данных по отложениям, необходимых для периодической инвентаризации, является оценка отложений с помощью статистического моделирования [14]. Такой подход начинается с тщательных, контролируемых измерений отложений

(либо неразрушающими методами, либо зачисткой) в технологическом процессе при известных значениях температуры, скорости потока, производительности и т.п. Измеренные отложения моделируются в виде функции некоторых важных переменных. Затем последующие отложения в этом технологическом процессе можно оценить и предсказать на основе данной модели.

Чтобы проверить правильность этого подхода, была проведена серия экспериментов по управляемому накоплению отложений и их измерению [14]. На рис. 20.2 показана компоновка оборудования, используемого во время одного такого эксперимента, который был проведен для определения отложений порошкообразной пыли урана в зависимости от характеристик материала, скорости воздушного потока и распыляющегося материала. Механическое устройство по производству порошкообразной пыли оксида урана было размещено внутри перчаточного бокса и обеспечивало источник пыли в воздухе. В оксид урана были введены радиоактивные индикаторы с концентрацией приблизительно 1 млрд.$^{-1}$, для того, чтобы повысить точность определения отложений измерением гамма-излучения. Сравнение с результатами зачистки показало, что погрешность измерений отложений составила около 20 %.

На рис. 20.3 проиллюстрированы некоторые данные, полученные в эксперименте [14]. На этом рисунке показана зависимость увеличения отложения в фи-

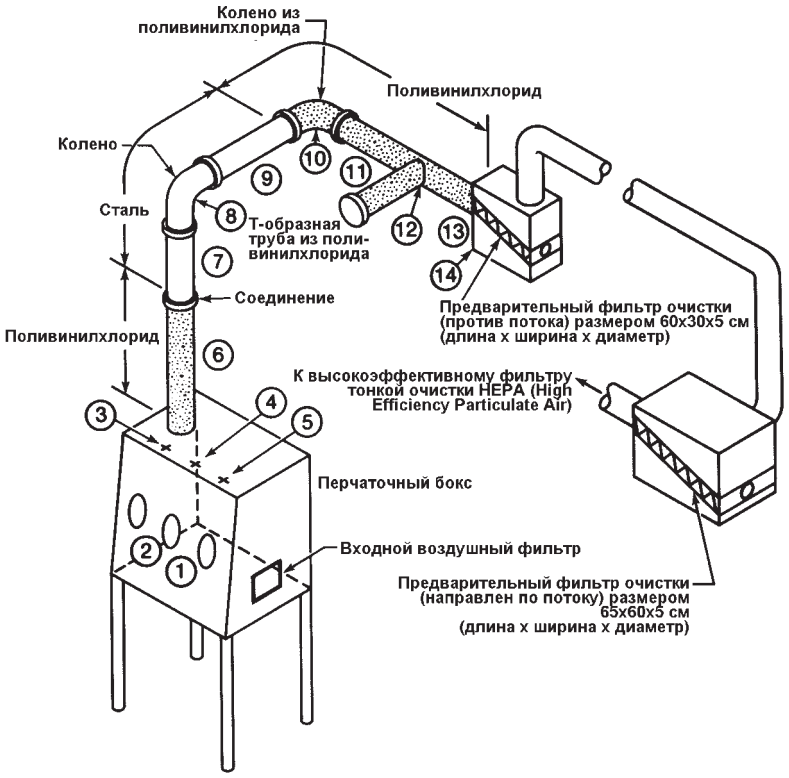

Рис. 20.2. *Компоновка оборудования, используемого во время эксперимента по управляемому накоплению и измерению отложений. Показан перчаточный бокс, в котором образуется порошкообразная пыль, трубопровод, фильтры и расположение 14 точек измерений [14]*

льтрах от величины воздушного потока и производительности. Величина отложения может быть представлена в виде квадратичной функции производительности, как показано гладкими кривыми на рисунке. Эти данные являются хорошим примером равномерного увеличения отложений с ростом производительности установки. Другая типичная картина, наблюдаемая в управляемых экспериментах, представлена на рис. 20.4 [14]. Отложения внутри печи прокаливания (кальцинатора) сначала резко увеличивались по линейной зависимости от возрастания производительности до тех пор, пока не образовался слой материала. Затем количество отложений флуктуировало около установившегося значения до тех пор, пока не изменились рабочие условия. В данном случае повышение рабочей температуры в кальцинаторе с 700 °С до 900 °С привело к увеличению отложений. В период работы в стабильных условиях данные были обработаны с помощью фильтра Кальмана, что представлено сглаженной кривой в средней части рисунка.

Поведение отложений, проиллюстрированное на рис. 20.4, является в некоторой степени показательным для всего технологического процесса установки. Когда ядерный материал впервые вводится в новую установку, отложения могут быстро нарастать по мере того, как оборудование покрывается слоем материала, а щели им заполняются. В течение последующих лет стабильной эксплуатации и регламентных зачисток количество отложений медленно увеличивается и может приблизиться к некоторому асимптотическому значению.

Эксперименты по управляемому накоплению и измерению отложений, описанные выше, предполагают, что модели оценивания отложений могут быть полезными, если они базируются на хороших первоначальных измерениях, технологический процесс стабилен, а база данных периодически обновляется. В этих условиях можно снизить частоту и количество измерений. Эксперименты по управляемо-

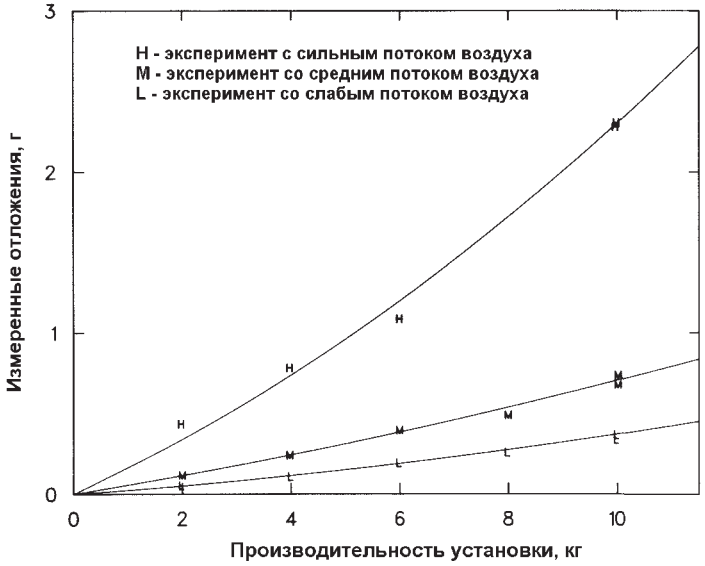

Рис. 20.3. *Зависимость количества отложений мелкоизмельченного порошка U_3O_8 от скорости воздушного потока и суммарной производительности установки, измеренного в выходном воздушном фильтре (точка 14 на рис. 20.2) во время эксперимента по управляемому образованию пыли*

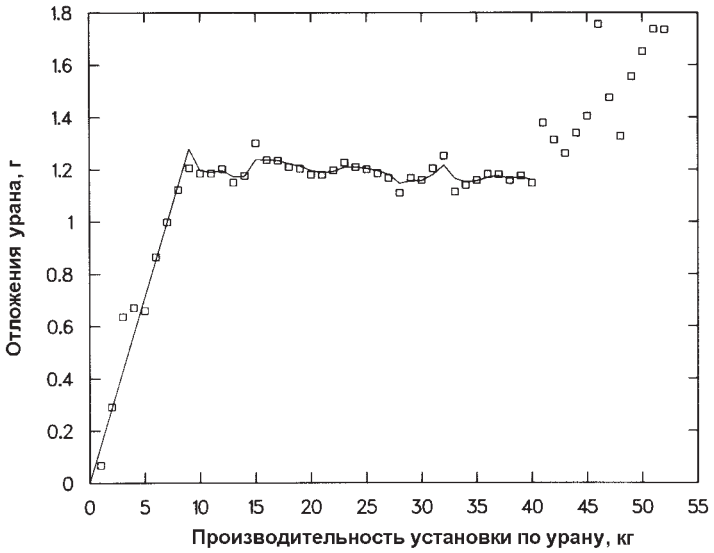

Рис. 20.4. *Зависимость количества отложений оксида урана в печи прокаливания (кальцинаторе) от производительности установки, определенного во время эксперимента по управляемому накоплению отложений. Этот рисунок представляет пример выравнивания количества отложений на установившемся значении после первоначального образования. При производительности 40 кг урана увеличение температуры печи привело к последующему образованию отложений [14]*

му накоплению отложений также обеспечивают наилучшую точность, получаемую в измерениях отложений, сделанных в идеальных условиях. Погрешности, полученные в этих экспериментах [14], включены в сводку опубликованных данных измерений отложений, которые приведенны в таблице раздела 20.6.7.

20.6 ИСКУССТВО И НАУКА ИЗМЕРЕНИЯ ОТЛОЖЕНИЙ

Измерение ядерных материалов, отложенных в установках по переработке, является как искусством, так и наукой. Измерение является отражением влияния политических, экономических, медицинских требований и требований по безопасности, а также законов физики. Для практика процесс измерения часто длителен, утомителен и происходит в достаточно трудных условиях, что показано на рис. 20.5. Работа сочетает в себе черты детективного расследования и поиска клада, как это захватывающе описано Цакером и Деженом в работе [18]. В действительности, стоимость кампании по тщательному измерению отложений составляет около 10 долларов на 1 г обнаруживаемого материала, т.е. сравнима с ценой золота.

Ядерный материал, накопленный в трубах, трубопроводах, перчаточных боксах, оборудовании, полах, стенах и т.п. обычно распределяется рассеянным и неравномерным образом. Аналитику трудно определить геометрию измерения, идентифицировать форму материала и измерить его без помех от соседних источников излучений. По этим причинам измерение отложений равнозначно искусству, для которого требуются опыт, воображение, чувство соразмерности и удача.

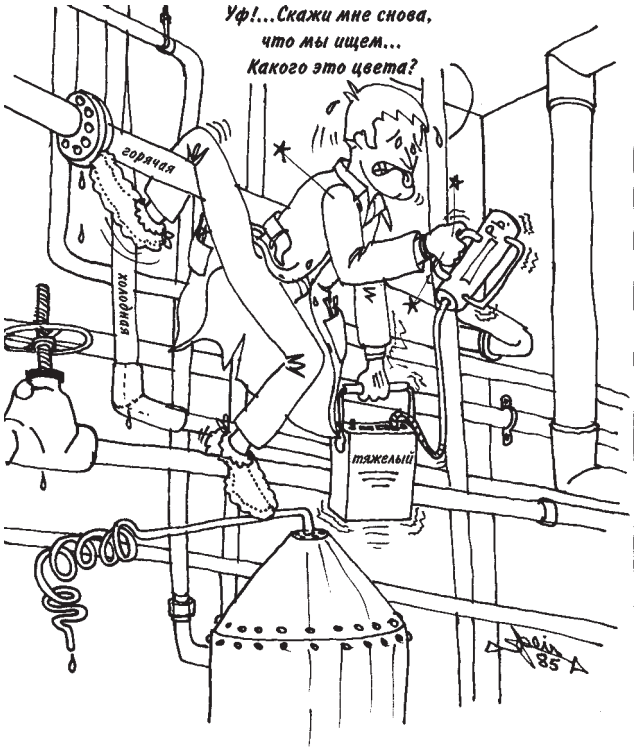

Рис. 20.5. *Измерения отложений являются как наукой, так и искусством и, как показано на этой карикатуре, обычно проводятся в сложных условиях*

Для измерения отложений также необходимы научно-технические знания по источникам и детекторам излучений, процедурам градуировки, геометрии и анализу погрешностей. Все эти вопросы рассматриваются в оставшейся части этой главы.

20.6.1 Полезные характеристики излучений

В табл. 20.4 перечислены источники гамма- и нейтронного излучений, которы обладают достаточной проникающей способностью, чтобы проводить измерения отложений урана и плутония. Указанные в таблице значения энергий нейтронов представляют собой приблизительные средние энергии для реальных спектров нейтронов спонтанного деления, вынужденного деления или (α,n)-реакций. Интенсивности нейтронного излучения представляют приблизительные значения интенсивностей (рассчитанные по табл. 11.1 и 11.3 главы 11), которые указывают на относительную легкость или сложность проведения анализа различных изотопов или химических соединений.

Большинство измерений отложений урана и плутония основано на пассивной регистрации пика гамма-излучения ^{235}U с энергией 186 кэВ и совокупности пиков гамма-излучения ^{239}Pu с энергиями 375 и 414 кэВ. Обычно для регистрации этих гамма-квантов применяются как портативные детекторы NaI, так и термолюминесцентные дозиметры (ТЛД), поскольку указанные гамма-кванты обладают наивысшими энергиями (и, следовательно, большей проникающей способностью) при необходимых интенсивностях. Такие интенсивности достаточны для

измерения отложений с чувствительностью 1 г материала. Когда уран смешан с торием, измерение пика ^{235}U с энергией 186 кэВ может быть затруднено из-за помех от излучения дочерних продуктов тория с энергиями от 200 до 300 кэВ [19]. Когда измеряется плутоний с детекторами NaI, традиционно устанавливается энергетическое окно в области от 375 до 450 кэВ. В него будет собираться большинство гамма-квантов с энергией 414 кэВ и множество гамма-квантов с энергией 375 кэВ, но не попадут гамма-кванты от ^{241}Pu или ^{241}Am с энергией 332 кэВ [13].

Большие количества ^{238}U могут быть проанализированы с помощью измерения низкоинтенсивных, но обладающих высокой проникающей способностью гамма-квантов с энергией 1001 кэВ от ^{234m}Pa, являющегося дочерним продуктом ^{238}U. После химического разделения урана требуется выдержка около 100 дней, чтобы активность пришла в равновесие с интенсивностью, указанной в табл. 20.4.

Таблица 20.4 – Полезные радиационные характеристики для измерения отложений

Изотоп	Методика	Характеристика	Интенсивность
^{235}U	Пассивные гамма-измерения	Гамма-кванты с энергией 186 кэВ	43 000 квантов/г·с
	Активные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 1 МэВ	
UO_2	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 2 МэВ	0,03 нейтрон/г·с*
UO_2F_2	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 1 МэВ	2,0 нейтрон/г·с*
UF_6	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 1 МэВ	5,8 нейтрон/г·с*
^{238}U	Пассивные гамма-измерения	Гамма-кванты с энергией 1001 кэВ	100 квантов/г·с
Pu	Пассивные измерения теплоты	Инфракрасное излучение	
^{239}Pu	Пассивные гамма-измерения	Гамма-кванты с энергией 414 кэВ	34 000 квантов/г·с
		Гамма-кванты с энергией 375 кэВ	36 000 квантов/г·с
		Гамма-кванты с энергией 129 кэВ	140 000 квантов/г·с
^{240}Pu	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 2 МэВ	1000 нейтрон/г·с
PuO_2	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 2 МэВ	120 нейтрон/г·с**
PuF_6	Пассивные нейтронные измерения	Нейтроны с энергией 1 МэВ	7300 нейтрон/г·с**

* Высокообогащенный уран, содержащий 1 % ^{234}U.
** Плутоний низкого выгорания, содержащий 0,03 % ^{238}Pu, 6,5 % ^{240}Pu, 92,5 % ^{239}Pu.

Метод пассивной регистрации нейтронов может оказаться полезным при необходимости измерения отложений в насосах, вентилях или другом крупном оборудовании, которое является слишком плотным, чтобы дать возможность выйти гамма-квантам. Нейтроны лучше проникают сквозь металл и большие залежи отложений, чем гамма-кванты, но для создания сильного сигнала необходимо большее количество ядерного материала. Нейтронные измерения более сложны в интерпретации, поскольку нейтроны не обладают уникальным значением энергии, их трудно коллимировать, они подвержены эффектам размножения и замедления, и их число может возрасти на порядок в результате реакций (α,n) в химических соединениях. Эти эффекты приводят к тому, что нейтронные измерения переоценивают количество отложений, в то время как эффекты самоослабления при гамма-измерениях приводят к недооценке количества отложений.

Как показано в табл. 20.4, пассивный счет нейтронов применим для контроля умеренно больших количеств урана в форме оксида и фторида. Нейтронный сигнал обусловлен реакциями (α,n) в оксидных или фторидных соединениях. Также возможен активный анализ ^{235}U, но он очень чувствителен к находящимся вблизи отражателям, замедлителям и поглотителям, и отклик приблизительно обратно пропорционален четвертой степени расстояния между измеряемым ураном и прибором [20]. Достаточно практичными являются пассивные нейтронные измерения плутония по спонтанному делению ^{240}Pu, являющемуся основным источником нейтронов, если нет больших количеств фторидных соединений.

В настоящее время на нескольких установках изучается возможное применение приборов сканирования инфракрасного излучения для обнаружения отложений плутония. Основным источником инфракрасного излучения является тепло, образуемое при альфа-распаде ^{238}Pu. Инфракрасное сканирование оборудования с целью обнаружения “горячих точек” технически возможно, однако неизвестно, можно ли провести количественные измерения.

20.6.2 Детекторы и приборы считывания

Из-за трудных условий, в которых должны проводиться измерения отложений, измерительная аппаратура должна быть портативной, прочной и простой в эксплуатации. Также желательно, чтобы в случае необходимости работы от батарей или внутри пластмассового корпуса, аппаратура имела простое кнопочное управление и низкую потребляемую мощность. Большинство приборов, используемых в настоящее время, — это, в основном, приборы радиационного контроля, портативные многоканальные анализаторы и коллимированные детекторы NaI. Они удовлетворяют этим требованиям.

Приборы радиационного контроля представляют собой счетчики Гейгера или небольшие коллимированные или неколлимированные детекторы NaI, которые реагируют на гамма- или бета-излучение. Они используются для быстрого обследования больших площадей с целью обнаружения мест скопления отложений и обычно оснащены измерителями скоростей счета со звуковым индикатором мощности излучения. Затем проводятся количественные измерения отложений с использованием детекторов NaI (рис. 20.6). Разрешение и эффективность этих детекторов, составляющие примерно от 7 до 10 %, обычно достаточны для измерений отложений. Типичные размеры кристалла для измерений плутония составляют 5 см в диаметре и 5 см толщины, а для измерений урана — 5 см в диа-

метре и 1 см толщины. Детекторы коллимируются с целью ограничения поля обзора и снижения фона. Коллиматоры должны состоять из ~ 1,5 см свинца для измерений плутония и ~ 0,5 см свинца — для измерений урана, чтобы поглощалось по крайней мере 98 % падающего излучения [13 и 21]. Эквивалентная толщина свинца должна также покрывать обратную сторону детектора, чтобы уменьшить фон. Кроме того, передняя сторона детектора должна быть покрыта слоем свинца 1,5 мм (для измерений плутония) и слоем кадмия 0,8 мм (для измерений урана и плутония, размещенным с внутренней стороны свинца), чтобы уменьшить скорость счета от образующегося рентгеновского излучения.

Коммерчески доступные блоки электроники для детекторов NaI включают "Эберлайнский стабилизированный анализатор" (глава 4), "Брукхейвенский стабилизированный анализатор" [18] и "Рокки Флэтский анализатор" [22], в которых используется электроника типа Ludlum. Все эти блоки представляют собой портативные стабилизированные двухканальные анализаторы. Портативные многоканальные анализаторы полезны для идентификации отложений неизвест-

Рис. 20.6. *Пример использования коллимированного детектора NaI и портативного блока электроники для измерения отложений в резервуарах, заполненных кольцами Рашига*

ного состава и в настоящее время становятся доступными в малогабаритном варианте для замены вышеперечисленных стабилизированных анализаторов. Коммерческие приборы включают ND-6 фирмы Nuclear Data, приборы серии 10 фирмы "Канберра" (Canberra) и прибор модели 2056-4K фирмы Davidson.

Для нейтронных измерений отложений может использоваться направленный нейтронный зонд, описанный в главе 15 [23]. Низкое отношение сигнала с передней стороны детектора к сигналу с обратной стороны детектора, которое лежит в диапазоне от 2 до 4, требует тщательного ослабления фона и использования защитного экрана для заглушки коллиматора [13]. Обычно слой полиэтилена толщиной от 10 до 15 см снижает интенсивность нейтронов деления в 10 раз. Также для измерений отложений могут использоваться большие плоские детекторы, когда портативность не так важна. Плоские детекторы используются для оценки суммарного количества отложений в помещении [24] и отложений в больших печах прокаливания (кальцинаторах) [25].

Термолюминесцентные дозиметры (ТЛД) размещаются вокруг внешней части перчаточных боксов [26] и в других труднодоступных местах внутри кальцинаторов [27]. Типичными кристаллами для ТЛД являются фториды лития и кальция. Преимуществом фторида лития является его большая доступность, в то время как фторид кальция обладает более высокой чувствительностью и не требует сложного цикла отжига. Для обоих материалов требуется комбинированная защита от низкоэнергетического рентгеновского излучения.

20.6.3 Процедуры измерения отложений

Планирование измерений отложений начинается с рассмотрения технических и организационных вопросов. Важным условием является то, будут ли эти измерения периодическими, регламентными и можно ли их начать до начала активной эксплуатации установки. Подобные измерения до активной эксплуатации очень полезны для определения зон накопления отложений, измерения фонов, измерения ослабления в стенках оборудования и градуировки сложных геометрий. При этом могут изготавливаться и устанавливаться для дальнейшего применения держатели, зажимы и специальные защитные экраны. Другое важное условие заключается в том, будут ли измерения отложений абсолютными или относительными. Абсолютные измерения более предпочтительны, поскольку они дают значения суммарного количества материала (в граммах), накопленного в установке. Однако изменение в отложениях легче измерить, чем реальное количество отложений из-за влияния систематических погрешностей. Периодические относительные измерения могут оказаться достаточными для контроля плановых операций по зачистке оборудования или для гарантии того, что отложения не влияют на ежемесячный баланс инвентарного количества материала.

Цикл работ по измерению отложений состоит из следующих этапов:

1. Группа по измерениям изучает технологический процесс установки и консультируется с операторами установки с целью определения зон с потенциально высоким содержанием отложений.

2. Быстрое обследование радиационной обстановки с использованием коллимированных и неколлимированных приборов радиационного контроля выделяет зоны, в которых отложено наибольшее количество материала.

3. Большая часть оставшегося времени отводится на проведение измерений в тех зонах, где сосредоточена основная масса материала. Другие зоны измеряются более поверхностно или оцениваются экстраполированием. Отметим, однако, что зоны с низким содержанием отложений на единицу площади могут содержать большие количества материалов. И наоборот, локализованные "горячие" зоны могут содержать относительно небольшие абсолютные количества материалов.

4. Детекторы отложений коллимируются и градуируются с использованием известных стандартных образцов. Для контроля стабильности измерительной аппаратуры используются небольшие контрольные источники. Каждый детектор градуируется для зоны отложений в виде точки, линии и некоторой плоскости.

5. Количественные измерения отложений в установке начинаются именно с этого этапа. Каждый узел оборудования, который нужно измерить, характеризуется как точка, линия или плоскость зоны накопления отложений. Поле обзора детектора ограничивается таким образом, чтобы каждую зону накопления отложений можно было бы отличить от соседних и от фона. Группа по измерениям регистрирует дату, время, интервал счета, идентифицированную зону накопления отложений, предполагаемую геометрию накопления материала, расстояние между источником и детектором, тип и толщину исследуемого материала и скорость счета. Длительность каждого измерения отложений должна быть достаточной для получения нескольких сотен или нескольких тысяч отсчетов. Затем измеряется фон с использованием заглушки коллиматора, сменной защиты или посредством передвижения боковых сторон детектора таким образом, чтобы в поле обзора детектора попала не исследуемая зона, а какая-то часть фона.

6. Для получения оценки неопределенности необходимо измерять зону накопления отложений с различных направлений, разного расстояния, предполагая разные геометрии (например, точка или плоскость), или путем использования разных методик измерений. В этом отношении первостепенную роль играют опыт и мастерство исследователей. Они должны догадаться о распределении материала, выбрать расстояние для измерений и геометрию градуировки, соответственно, чтобы определить среднее количество отложений с учетом флуктуаций и использовать свое время наилучшим образом.

7. Хотя поправки на ослабление, величины отложений (в граммах) и оценка погрешности могут быть рассчитаны и позже, члены группы по измерениям должны провести некоторые приблизительные расчеты на месте. Это очень важно сделать, чтобы быть уверенным в том, что измерения проведены в том месте, где это наиболее необходимо, и не получить больших погрешностей измерений.

20.6.4 Градуировка для точечной, линейной зоны и зоны в виде плоскости

Во время измерительной кампании каждая зона накопления отложений характеризуется как точка, линия или плоскость таким образом, чтобы наблюдаемая скорость счета могла быть легко переведена в граммы ядерного материала. Например, насос, фильтр или вентиль могут рассматриваться как точечный источник, если размеры зоны отложений малы по сравнению с расстоянием между источником и детектором, и если отложения полностью находятся в поле обзора детектора. Длинная труба или трубопровод могут рассматриваться как линейный

источник, а стена, пол или широкий прямоугольный трубопровод, который простирается далеко за пределы поля обзора детектора, могут рассматриваться как источники в виде плоскости. Иногда выбор типа градуировки в виде точки, линии или плоскости не очевиден и является в действительности результатом рассуждений или опыта. Иногда группа по измерениям может попробовать два или даже все три варианта и сравнить окончательные результаты, полученные для отложений. Или же группа по измерениям может измерить скорость счета в виде функции расстояния до зоны накопления отложений, чтобы с ее помощью выбрать подходящий вариант градуировки. Для точечного источника измеренный отклик уменьшается обратно пропорционально квадрату расстояния ($1/r^2$). Для линейного источника отклик уменьшается обратно пропорционально расстоянию ($1/r$). Для однородного источника в виде плоскости отклик не зависит от расстояния. Этот последний случай не так очевиден, как кажется. Он следует из бесконечного угла обзора коллимированного детектора, который осматривает площадь, увеличивающуюся пропорционально r^2, таким образом компенсируя снижение отклика с расстоянием, пропорциональное $1/r^2$.

Можно, конечно, выполнить градуировку для точки, линии и плоскости с помощью стандартных точечных источников, линейных источников и плоских источников, как это описано в разделе 20.6.5. Однако также возможно и обычно даже проще получить все три градуировки от одного точечного источника. Процедура такой градуировки гамма-детектора описана ниже.

1. Выполните коллимирование детектора, заглубив его в свинцовую защиту на один или два диаметра кристалла так, чтобы получить половинный угол обзора $\theta/2$, равный от 15 до 30 градусов (см. рис. 20.7). Эта коллимация должна теперь оставаться зафиксированной, поскольку постоянные градуировки для линии и плоскости сильно зависят от угла обзора.

2. Поместите точечный градуировочный источник на фиксированное расстояние r_0 (обычно от 1 до 2 м). Измерьте скорость счета C_0. Затем сдвигайте источник вбок с фиксированным шагом шириной s (обычно от 10 до 20 см), как показано на рис. 20.8. Определите скорость счета C_i для каждого шага i и откорректируйте каждую скорость счета на фон. Результат представляет собой кривую отклика, аналогичную примеру, представленному на рис. 20.8.

3. Кривая отклика детектора в виде функции бокового смещения спадает вследствие конечного угла обзора коллимированного детектора. Если коллимирование было оптимальным, с половинным углом обзора $\theta/2$, то детектор может осматривать длину линейного источника, равную $L \approx r_0\theta$, или площадь плоского источника, равную $A \approx \pi r_0^2\theta^2/4$. Действительно, эквивалентная длина L однородного линейного источника, которая дает ту же скорость счета, что и интегрированная кривая отклика, равна

$$L = 2s\sum C_i / C_0 - s . \qquad (20.1)$$

4. Эквивалентная площадь A однородного плоского источника, которая дает ту же скорость счета, что и интегрированная кривая отклика, равна

$$A = \sum a_i C_i / C_o . \qquad (20.2)$$

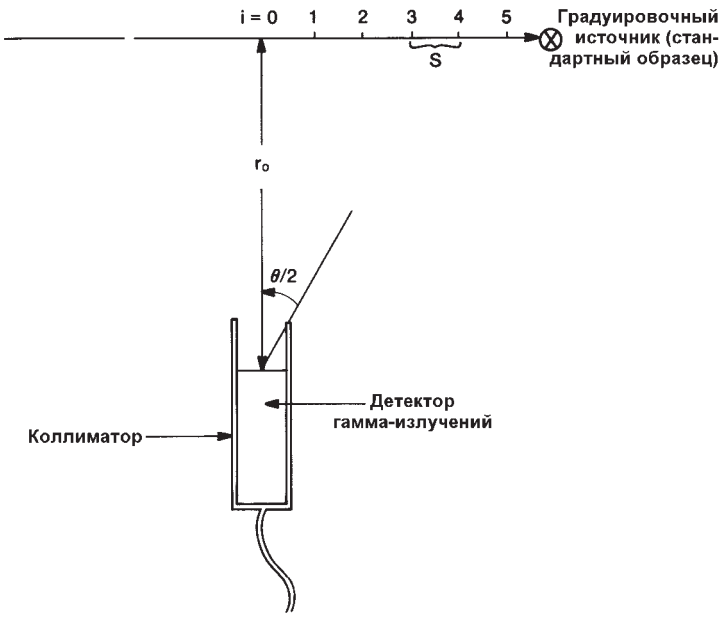

Рис. 20.7. *Геометрия, необходимая для расчета постоянных градуировки для линейной и плоской геометрий. Точечный градуировочный источник, расположенный на фиксированном расстоянии r_0, перемещается в боковом направлении с фиксированным шагом s*

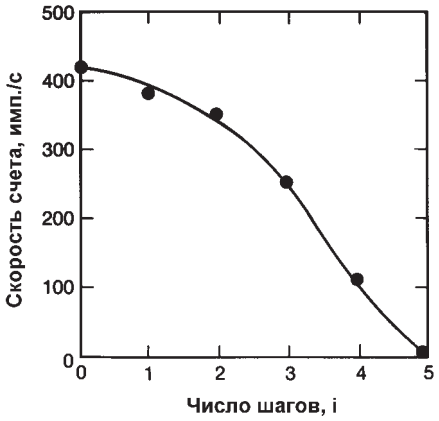

Рис. 20.8. *Зависимость отклика коллимированного детектора гамма-излучений от бокового смещения, выражаемого в числе шагов. Отклик спадает вследствие конечного угла обзора коллимированного детектора. По этой кривой могут быть вычислены эквивалентная длина L и эквивалентная площадь A, просматриваемые детектором*

Чтобы получить это уравнение, мы представили, что при каждом i-м боковом смещении точечного источника, измеренный отклик является отображением сигнала, который был бы получен для кольца с внутренним радиусом, равным (i-1/2)s, и внешним радиусом, равным (i+1/2)s. Площадь a_i каждого кольца равна $2i\pi s^2$ за исключением того, что $a_0 = \pi s^2/4$.

5. Если стандартный точечный источник содержит m_0 граммов ядерного материала, то градуировка для отложений в виде точки выглядит следующим образом:

$$m(\text{отложений}) = m_0 \frac{C}{C_0} \frac{r^2}{r_0^2}, \text{ г}, \tag{20.3}$$

где C — наблюдаемая скорость счета, откорректированная на фон;
r — расстояние между детектором и отложениями;
m — масса отложений в граммах.

6. Линейная градуировка соответствует массе материала на единицу длины зоны отложений. Выражение для массы имеет вид:

$$m(\text{отложений} / \text{м}) = \frac{m_0}{L} \frac{C}{C_0} \frac{r}{r_0}, \text{г} / \text{м}. \tag{20.4}$$

C_0 должна измеряться на расстоянии r_0, используемом для определения L.

7. Градуировка для плоскости соответствует массе материала на единицу площади зоны отложения и имеет следующий вид:

$$m(\text{отложений} / \text{м}^2) = \frac{m_0}{A} \frac{C}{C_0}, \text{г} / \text{м}^2. \tag{20.5}$$

C_0 должна измеряться на расстоянии r_0, используемом для определения A.

8. Отметим, что представленные уравнения предполагают, что для определения L, A и C_0 используется один и тот же стандартный образец. На практике это удобно, но не существенно. Для измерений, требующихся для расчета величин L и A по уравнениям (20.1) и (20.2), может использоваться один стандартный образец, а чтобы определить m_0 и C_0 для уравнений с (20.3) по (20.5) может использоваться другой стандартный образец.

20.6.5 Стандартные образцы для градуировки и контрольные источники

В принципе, геометрия стандартного образца, применяемого для градуировки, должна быть такой же, как и геометрия неизвестного образца, подлежащего измерениям. Для измерений отложений это часто невыполнимо. Поэтому, на практике для аппроксимации реальных геометрий оборудования используются точечные, линейные и плоские стандартные образцы. Также, как описывалось в предыдущем разделе, для получения градуировок разных геометрий (точка, линия или плоскость) может использоваться один небольшой точечный стандартный образец. Для гамма-измерений достаточно от 1 до 5 г ^{235}U или ^{239}Pu. Даже для этих небольших стандартных образцов самопоглощение гамма-излучения значительно и должно быть учтено поправочным коэффициентом (см., например, табл. 20.5). Для нейтронных измерений плутоний в количестве от 10 до 20 г (от 6 до 20 % ^{240}Pu) дает достаточную скорость счета. В таком нейтронном стандартном образце эффекты самопоглощения и саморазмножения незначительны, но важно установить расчетами или измерениями, что скорость образования нейтронов в стандартном образце представительна для реального материала установки.

Для обеспечения стабильности и надежности работы портативных детекторов излучений в заводских условиях, необходимо использовать их вместе с небольшими контрольными источниками. Работоспособность детекторов должна проверяться с использованием этих источников каждые 1-4 часа. Для этой цели подходят точечные стандартные образцы, описанные в предыдущем абзаце (или даже еще меньшие источники).

Некоторые группы по измерению отложений в дополнение к точечным стандартным образцам для градуировки изготавливают стандартные образцы в виде плоских пластин или слоев. Одна из типичных методик приготовления стандартного образца включает в себя распыление порошков оксидов на прозрачные листы из пластмассы, покрытые клейким материалом [18]. Оксид урана также смешивают с силиконовой резиной и осаждают на пластинах [19]. Стандартные образцы в виде листов могут использоваться для градуировок плоской геометрии или свернуты в трубки или трубопроводы для градуировки линейной геометрии. Однако такие стандартные образцы могут оказаться сложными для изготовления и применения из-за того, что оксид может осаждаться неравномерно и стать жестким, вызывая растрескивание или расслоение материала.

На любой установке могут оказаться специфические геометрии отложений, которые не могут быть аппроксимированы точечными, линейными источниками или источниками в виде плоскости. Иногда возможно имитировать эти геометрии, сочетая точечные стандартные образцы со стандартными образцами в виде листов. Другой альтернативой является введение известных стандартных образцов внутрь реального технологического оборудования, хотя это обычно можно сделать только до введения этого оборудования в эксплуатацию.

20.6.6 Поправки на ослабление и самопоглощение

Обычной проблемой в пассивных гамма-измерениях отложений является тенденция к недооценке количества отложений вследствие самопоглощения в самом материале или ослабления в близлежащих материалах. Самопоглощение гамма-квантов в уране или плутонии может быть очень большим, что показано двумя примерами в табл. 20.5. Хотя аналитик не может точно определить поправку на самопоглощение из-за того, что плотность и распределение материала неизвестны, однако он может сделать приблизительную поправку на самопоглощение при оценке погрешностей.

Ослабление гамма-квантов близлежащими стенками труб, перчаточными боксами или другими материалами можно определить с помощью вычислений или измерений коэффициента пропускания. Измерение коэффициента пропускания показано на рис. 20.9, где источник (обычно ^{137}Cs) размещен позади трубопровода. Процедура измерений, расчет коэффициента пропускания и преобразование его в коэффициент поправки на самоослабление такие же, как в главе 6. Эта процедура редко используется во время кампании по измерению отложений, поскольку она занимает много времени, физически неудобна и требует разнообразной электронной аппаратуры для измерения гамма-пика цезия с энергией 662 кэВ. Вместо этого обычно бывает достаточно провести расчет ослабления, оценив толщину и состав близлежащих материалов.

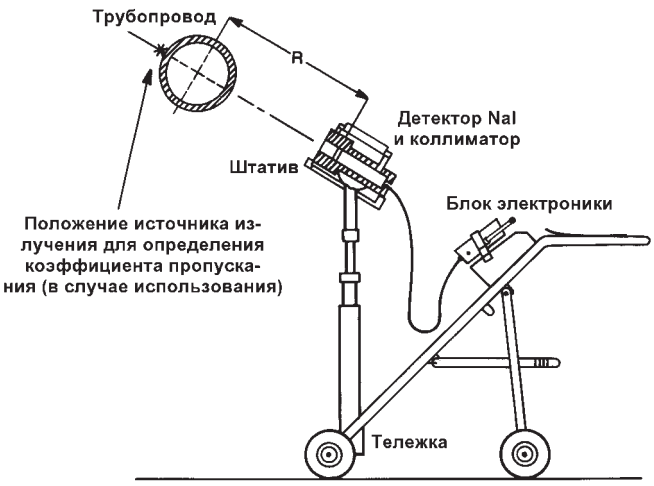

Рис. 20.9. *Измерение отложений в трубопроводе. Показано расположение источника излучения пропускания, используемого для измерения поправки на ослабление*

Таблица 20.5 – Оцененные поправки на самопоглощение и ослабление для типичных материалов, встречающихся при измерениях отложений

Окружающие материалы	Поправка для гамма-квантов с энергией 186 кэВ	Поправка для гамма-квантов с энергией 414 кэВ
1 г UO_2 в виде куба	2,95	
10 г UO_2 в виде куба	5,97	
1 г PuO_2 в виде куба		1,28
10 г PuO_2 в виде куба		1,66
Резиновые перчатки	1,05	1,04
0,64 см плексигласа	1,11	1,08
2,54 см воды	1,42	1,30
0,64 см алюминия	1,24	1,18
Фильтр HEPA размером 20 × 20 см	1,43	1,31
0,16 см стали	1,20	1,12
0,32 см стали	1,44	1,25
0,64 см стали	2,08	1,55
0,16 см свинца	6,83	1,44

В табл. 20.5 представлены примеры коэффициента пропускания гамма-излучения через типичные материалы и связанную с ним поправку на ослабление. Хотя на практике поправка на ослабление является лишь оценкой, очень важно

проводить ее для *каждого* измерения отложений, пока экспериментально не выяснится, где этой поправкой можно пренебречь. В противном случае, результат измерения отложений будет представлять просто нижний предел наличного количества материала.

20.6.7 Оценка погрешности

При оценке погрешностей измерений проявляются как искусство, так и наука измерений отложений. Эти погрешности большие и многочисленные, причины их возникновения изложены ниже в некотором субъективном порядке уменьшения их значимости:

1. Неизвестное распределение материала, которое влияет на выбор расстояния между источником и детектором и на обоснованность выбранной градуировки для точечной, линейной или плоской геометрии.

2. Самопоглощение в материале или матрице материала.

3. Ослабление гамма-излучения в близлежащих материалах.

4. Фон от объектов, удаленных на расстояние прямой видимости, или интерференция от соседнего, неустраненного материала.

5. Нестабильность детектора или неправильная градуировка.

6. Непредставительные стандартные образцы.

7. Статистическая погрешность.

8. Неопределенность в изотопном составе материала.

Статистическая погрешность является единственным источником погрешности, который может быть получен до некоторой степени точно; обычно она незначительна по сравнению с другими погрешностями.

Самой важной методикой для оценки погрешности, доступной группе по измерениям, является методика проведения измерений каждой зоны накопления отложений несколькими различными способами. После того как каждое измерение должным образом откорректировано на расстояние, фон, ослабление и т.п., получают значение количества отложений в граммах, затем следует усреднить различные значения. Стандартное отклонение результатов измерения можно оценить или вычислить, исходя из диапазона значений.

Чтобы оценить точность серии измерений отложений, нужно измерить отложения как до, так и после кампании по зачистке. Если реальное количество удаленного при зачистке материала можно определить отбором проб и последующим химическим анализом или с использованием других методик неразрушающего анализа, то можно вычислить погрешность измерения. Данные предшествующих градуировок можно обновить, а оценки погрешностей пересмотреть.

В табл. 20.6 представлено краткое изложение опубликованных сравнительных данных по измерениям отложений и кампаниям по зачистке на существующих установках. Из этих данных можно оценить общую погрешность измерений отложений. В основном, погрешность измерений отложений составляет ±50 %, хотя для более удобных геометрий или тщательно контролируемых кампаний по измерениям можно получить более точные результаты.

Таблица 20.6 – Типичная точность измерений отложений

Литература	Материал	Место расположения	Методика измерений	Погрешность (±), %
19	Оксид ВОУ	Трубопроводы	Пассивные гамма-измерения	10-20
		Фильтры	Пассивные гамма-измерения	50-100
23	PuO_2	Перчаточные боксы	Пассивные гамма-измерения	10
			Пассивные нейтронные измерения	15
24	PuO_2	Перчаточные боксы	Пассивные гамма-измерения	50
		Все помещение	Пассивные нейтронные измерения	50
26	PuO_2	Перчаточные боксы	ТЛД	20
14	Оксид ВОУ	Трубопроводы	Пассивные гамма-измерения	20
		Установки по осаждению	Пассивные гамма-измерения	15
		Печи для прокаливания	Пассивные гамма-измерения	20
		Трубы	Пассивные гамма-измерения	10
		Насосы	Пассивные гамма-измерения	25
28	UF_6	Обогатительный каскад	Пассивные гамма-измерения	50

ЛИТЕРАТУРА

1. D. Rogers, Ed., *Handbook of Nuclear Safeguards Measurement Methods*, NUREG/CR-2078 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1983).
2. M. Anderson and J. Lemming, “Selected Measurement Data for Plutonium and Uranium,” Mound Laboratory report MLM-3009 (1982).
3. T. Crane, “Measurement of Uranium and Plutonium in Solid Waste by Passive Photon or Neutron Counting and Isotopic Neutron Source Interrogation,” Los Alamos Scientific Laboratory report LA-8294-MS (1980).

4. T. Crane, "Versatile System for Measuring Nuclear Waste in 55-Gal. Drums," in "Safeguards and Security Status Report, February — July 1983," J. Shipley and D. Smith, Eds., Los Alamos National Laboratory report LA-9595-PR (1983), pp. 24-29.

5. J. Caldwell, D. Close, T. Kuckertz, W. Kunz, J. Pratt, K. Haff, and F. Schultz, "Test and Evaluation of a High-Sensitivity Assay System for Bulk Transuranic Waste," *Nuclear Materials Management* XII, 75 (1984).

6. D. Close, T. Crane, J. Caldwell, W. Kunz, E. Shunk, J. Pratt, L. Franks, and S. Kocimski, "Advances in Measurement of Alpha-Contaminated Wastes," *Proc. American Nuclear Society Topical Meeting on the Treatment and Handling of Radioactive Waste,* Richland, Washington, April 19-22, 1982, p. 292.

7. C.A. Coulter, "Safeguards Uses of Confirmatory Measurements," Proceedings of the Inst. of Nuclear Mat. Manage., Albuquerque, New Mexico (July 1985).

8. R.S. Marshall, R.P. Wagner, and F. Hsue, "Experience with Confirmation Measurement at Los Alamos," LA-UR-85-2667, Proceedings of the Inst. of Nuclear Mat. Manage., Albuquerque, New Mexico (July 1985).

9. H. Menlove, "Passive/Active Assay of PuF_4 and (α,n) Salts," Los Alamos National Laboratory memorandum Q-1-84-161 to N. Ensslin (February 1984).

10. H. Menlove and A. Keddar, "Field Test and Evaluation of the Passive Neutron Coincidence Collar for Prototype Fast Reactor Fuel Subassemblies," Los Alamos National Laboratory report LA-9449-MS (1982).

11. J. Cadieux, C. Denard, and P. Deason, "Confirmatory Measurement Experiences at the Savannah River Plant," Proceedings of the Inst. of Nuclear Mat. Manage., Albuquerque, New Mexico (July 1985).

12. J. Gilmer, "Confirmatory Measurements Counter for Shipper-Receiver Verification," Proceedings of the Inst. of Nuclear Mat. Manage., Albuquerque, New Mexico (July 1985).

13. NRC Regulatory Guide 5.23, "In-Situ Assay of Plutonium Residual Holdup," Rev. 1 (February 1984).

14. K.K.S. Pillay, R. Picard, and R. Marshall, "Estimation Methods for Process Holdup of Special Nuclear Materials," NUREG/CR-3678, LA-10038 (June 1984).

15. NRC Regulatory Guide 5.8, "Design Considerations for Minimizing Residual Holdup of Special Nuclear Material in Drying and Fluidized Bed Operations" (May 1974).

16. NRC Regulatory Guide 5.25, "Design Considerations for Minimizing Residual Holdup of Special Nuclear Material in Equipment for Wet Process Operations" (June 1974).

17. NRC Regulatory Guide 5.42, "Design Considerations for Minimizing Residual Holdup of Special Nuclear Material in Equipment for Dry Process Operations" (January 1975).

18. M. Zucker and M. Degen, "Holdup Measurement for Nuclear Fuel Manufacturing Plants," *Nuclear Materials Management* X, 239 (1981).

19. B. Disselhorst, J. Glancy, and D. Brush, "Survey Techniques for Measuring ^{235}U," General Atomic Company report GA-A14426 (1977).

20. N. Ensslin and E. Sanford, "An Active Neutron Holdup Measurement Technique," in "Program Status Report, Safeguards and Security Research and Development, February — July 1981," Los Alamos National Laboratory report LA-9110-PR (1982), pp. 13-15.

21. NRC Regulatory Guide 5.37, "In-Situ Assay of Enriched Uranium Residual Holdup," Rev. 1 (October 1983).

22. J. Lawless, "The Rocky Flats Assay Meter," Rockwell International, Rocky Flats Plant report SSS-81-1(1981).

23. C. Kindle, "In-Situ Measurement of Residual Plutonium," *Nuclear Materials Management* V (3), 540 (1976).

24. J. Tape, D. Close, and R. Walton, "Total Room Holdup of Plutonium Measured with a Large-Area Neutron Detector," *Nuclear Materials Management,* V (3), 533 (1976).

25. T. Crane, "Richland/Hanford PUREX: Screw Calciner Holdup Monitor," in "Safeguards and Security Progress Report, January — December 1983," Los Alamos National Laboratory report LA-10170 (1984), p. 16.

26. H. Preston and W. Symons, "The Determination of Residual Plutonium Masses in Gloveboxes by Remote Measurements Using Solid Thermoluminescent Dosimeters," United Kingdom AEA report AEEW-R1359, Winfrith, England (1980).

27. R. Marshall, N. Ensslin, R. Picard, and R. Siebelist, "Summary Report on Uranium Holdup Estimation," Los Alamos National Laboratory document Q-4/82-489, p. 66, April 1982.

28. R Walton, "The Feasibility of NDA Measurements in Uranium Enrichment Plants," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7212-MS (1978).

Глава 21

Принципы калориметрического анализа

Р. Лайкс
(Переводчик П.И. Самарин)

21.1 ВВЕДЕНИЕ

Калориметрия — это количественное измерение теплоты. Она измеряет передачу энергии от одной системы к другой, вызываемую разностью температур. Применения калориметрии включают измерения удельных теплоемкостей твердых тел и жидкостей, теплоты парообразования и горения, тепловой мощности радионуклидов. В последнем из упомянутых измерений используются радиометрические калориметры. Они специально сконструированы для измерения энергии, связанной с альфа-, бета- и гамма-распадом радиоактивных материалов. Данный метод был предложен впервые в 1903 г. для определения теплоты, создаваемой радием.

Методы калориметрии в настоящее время применяются для высокоточного пассивного неразрушающего анализа ядерных материалов, особенно плутония и трития. В данной главе рассматривается калориметрический анализ плутония. Важные отличительные особенности и преимущества калориметрического анализа приведены ниже [1, 2]:

а) может быть проведено измерение для всего образца;

б) анализ не зависит от геометрии образца (она оказывает влияние только на время достижения равновесного состояния);

в) анализ не зависит от состава материала матрицы и распределения материала, включая номинальное содержание влаги;

г) анализ не зависит от распределения ядерного материала в образце, включая эффекты самоослабления в образце;

д) измерения электрического тока и разности потенциалов осуществляются непосредственно с использованием эталонных материалов Национального бюро стандартов США;

е) калориметрический анализ позволяет в большинстве случаев различать между собой изотопы урана и плутония (только плутоний может быть проанализирован);

ж) калориметрический анализ может применяться для разнообразных форм материалов (включая металлы, сплавы, оксиды, фториды, смешанные оксиды, отходы и скрап), причем нет необходимости в представительных стандартных образцах плутония;

з) калориметрический анализ по точности сравним с химическим анализом, если хорошо известен изотопный состав измеряемого материала;

и) калориметрический анализ представляет собой комплексную процедуру неразрушающего анализа при сочетании со спектрометрическим изотопным анализом гамма-излучения с высокой разрешающей способностью.

Калориметрический анализ основан на точных измерениях температуры и требует хорошей температурной стабильности и управления. В общем этот метод более точен, но менее оперативен или в меньшей степени компактен, чем другие методы неразрушающего анализа, описанные в этой книге. Он часто обеспечивает точные эталонные измерения для улучшения градуировки других методов анализа, таких, например, как метод регистрации нейтронных совпадений [3].

Калориметрический анализ наиболее точен для материалов с высокими концентрациями плутония, таких как порошки, топливные таблетки и металлы. Калориметры широко используются для учета ядерных материалов и для подтверждающих измерений при передаче ядерных материалов от отправителя к получателю. При применении калориметрии для концентрированных, однородных содержащих плутоний материалов результаты измерений имеют погрешность, сопоставимую с погрешностью результатов взвешивания с химическим анализом, приближающейся к 0,1 %. Для скрапа высокой плотности калориметрия со спектрометрией гамма-излучения может обеспечить погрешность до 1 %, если скрап имеет однородный изотопный состав.

В этой главе рассматриваются принципы тепловыделения, определения удельной теплоты, типы калориметров, методы работы и основные источники погрешности анализа. В следующей 22-й главе описываются существующие калориметры различных типов, включая небольшие калориметры для применения в лабораториях и калориметры для анализа материалов в балк-форме на заводах-изготовителях.

21.2 ВЫРАБОТКА ТЕПЛОТЫ РАДИОИЗОТОПАМИ

Энергия, связанная с самопроизвольным распадом радиоактивных изотопов, состоит из кинетической энергии испускаемых альфа- и бета-частиц, электромагнитной энергии гамма-излучения и энергии отдачи дочернего продукта, которые в совокупности называются энергией распада изотопа. Если дочерний продукт не находится в основном состоянии после распада, то при переходе дочернего продукта в основное состояние будет выделяться дополнительная энергия гамма-излучения и электронов внутренней конверсии. Каждый радиоактивный изотоп имеет определенную энергию распада, связанную с конкретной схемой распада, например, ^{239}Pu распадается по схеме $^{239}\text{Pu} \rightarrow {}^{235}\text{U}$ + альфа-частица + 5,15 МэВ.

Радиометрические калориметры работают на том принципе, что почти вся энергия, связанная с распадом радиоактивных материалов, находящихся в измерительной камере, поглощается в форме теплоты внутри калориметра. При радиоактивном распаде всех изотопов урана и плутония вырабатывается теплота, но только изотопы плутония из-за их более коротких периодов полураспада и, тем самым, более высокой удельной активности генерируют теплоту с достаточно высокой мощностью, чтобы выполнить точное измерение. Большая часть энергии распада плутония высвобождается в виде альфа- и бета-частиц и преобразуется в тепловую энергию посредством поглощения. Небольшая часть энергии уходит с нейтронами и гамма-квантами, однако эта часть в общей сложности составляет менее 0,01 % полной энергии распада [1].

Калориметрический анализ плутония представляет собой процесс измерения калориметром скорости нагрева материала при радиоактивном распаде плутония и определения аналитического коэффициента связи тепловой мощности и массы плутония. В этом разделе подробно описывается образование теплоты в плутонии. Раздел 21.3 описывает расчеты, необходимые для определения удельной мощности – коэффициента, который связывает измерение тепловой мощности с массой плутония.

21.2.1 Альфа-частицы

При радиоактивном распаде изотопов плутония преобладающим является альфа-распад. Механизмом, с помощью которого такие тяжелые частицы, как альфа-частицы, передают свою кинетическую энергию окружающему материалу, обычно является ионизация. Проникая в материал, альфа-частица претерпевает большое количество столкновений до потери всей своей первоначальной энергии, так что на каждое последующее столкновение приходится все меньшее количество энергии. Эти небольшие потери энергии находятся в диапазоне инфракрасного излучения, т.е. представляют собой тепловую энергию.

Пробег альфа-частиц в различных материалах относительно их пробега в воздухе можно определить по правилу Брэгга-Климана (уравнение (11.2) в главе 11). Пробег альфа-частиц с энергией 5-6 МэВ в наиболее распространенных материалах составляет около 5 мкм. Таким образом, фактически почти вся энергия, высвобождаемая при альфа-распаде, будет поглощаться в образце в виде тепла.

21.2.2 Бета-частицы

В случае бета-распада или захвата электронов определение потерь энергии в материале является намного более сложным, чем при альфа-распаде. Кроме бета-распада происходит ряд конкурирующих процессов: ионизация, тормозное излучение, образование нейтрино и эмиссия электронов конверсии. Энергия, потерянная непосредственно в поглотителе в виде тепла, составляет в среднем одну треть максимальной энергии бета-распада определенного радиоизотопа. Остальная часть энергии не участвует в измерениях теплоты.

Основным механизмом потерь энергии бета-частицами низких и средних энергий в веществе является ионизация. Тормозное излучение является преобладающим для бета-частиц высоких энергий, если их кинетическая энергия превышает массу покоя (511 кэВ). Потеря энергии при ионизации пропорциональна атомному номеру Z поглощающего материала и возрастает с энергией по логарифмической зависимости. Энергетические потери, обусловленные тормозным излучением, пропорциональны Z^2 и линейно возрастают с энергией. Из этого следует, что при высоких энергиях частиц преобладают потери энергии за счет тормозного излучения. Длина пробега излучения определяется как путь в поглотителе, после которого энергия электрона составляет 1/e от первоначальной энергии. Для электрона с энергией 2 МэВ типичная длина пробега излучения в оксиде плутония составляет несколько миллиметров.

Каждая бета-частица сопровождается возникновением нейтрино, которое несет часть энергии распада. Нейтрино обладает исключительно высокой проникающей способностью по отношению к веществу, поэтому часть энергии распада при бета-излучении не поглощается в объеме образца.

Испускание электронов конверсии является механизмом, альтернативным снятию возбуждения ядер путем испускания гамма-квантов. Энергия электронов конверсии может быть передана окружающему материалу за счет ионизации или тормозного излучения.

21.2.3 Гамма-кванты

Распад радиоизотопа с испусканием таких частиц, как альфа- или бета-частицы, обычно сопровождается возбужденным состоянием дочернего ядра. Избыточная энергия дочернего ядра выделяется посредством испускания гамма-квантов, электронов внутренней конверсии или образованием электронно-позитронных пар. Из этих процессов преобладающим является испускание гамма-квантов. Гамма-кванты, испускаемые ядерными материалами, обычно имеют энергию от долей МэВ до нескольких МэВ. В этом диапазоне гамма-кванты обычно взаимодействуют с веществом посредством фотоэффекта, комптоновского рассеяния или образования пар. Если эти взаимодействия не происходят внутри образца, то энергия, связанная с испусканием гамма-квантов высоких энергий, не остается в калориметре. Как указывалось ранее, эта потерянная энергия составляет небольшой процент от полной энергии распада изотопов плутония.

21.2.4 Другие виды излучений

Помимо первичных альфа-, бета-, гамма-излучений радиоизотопы излучают также нейтроны в процессе спонтанного деления. Потеря энергии за счет нейтронного излучения на много порядков меньше полной энергии распада.

Другими возможными источниками тепла являются химические реакции, как, например, окисление, и радиохимические процессы, связанные с продуктами деления при процессах переработки. Возможные погрешности от таких источников могут быть оценены с использованием гамма-спектрометрии для обнаружения продуктов деления, наблюдением за любой временной зависимостью мощности излучения или сравнением калориметрии с другими методиками [7].

21.3 ОПРЕДЕЛЕНИЕ УДЕЛЬНОЙ МОЩНОСТИ

21.3.1 Определение удельной мощности

Каждый радиоизотоп распадается с постоянной средней скоростью λ (распад/с) и освобождением энергии Q (МэВ). Скорость освобождения энергии для конкретного изотопа определяется соотношением

$$W = QN\lambda, \text{ МэВ}, \tag{21.1}$$

где N — число радиоактивных атомов, $N = N_0 \cdot m/A$;

N_0 — число Авогадро;

m — масса радиоизотопа, г;

A — атомная масса изотопа, г.

С учетом того, что $\lambda = 0{,}6931/T_{1/2}$, где $T_{1/2}$ — период полураспада изотопа в годах, мощность в ваттах, измеряемая калориметром, определяется выражением [2]

$$W = 2119{,}3Qm / T_{1/2}A, \text{ Вт}. \quad (21.2)$$

Если полная энергия, выделяемая за единицу времени, может быть собрана в калориметре и точно измерена, а также известны энергия распада, период полураспада и атомная масса, то может быть определена масса образца. Уравнение (21.1) также показывает, что тепловая мощность, выделяемая в калориметре при радиоактивном распаде прямо пропорциональна массе изотопа:

$$W = Pm. \quad (21.3)$$

Постоянная пропорциональности P – это удельная тепловая мощность данного изотопа, измеренная в ваттах на грамм изотопа. Удельная мощность одного изотопа может быть рассчитана из уравнения (21.2), если известны соответствующие параметры (расчетный метод), или она может быть определена экспериментально с помощью уравнения (21.3) (экспериментальный метод). Процедуры для расчетного и экспериментального методов подробно рассмотрены в работе [4].

Значения удельной тепловой мощности и другие ядерные константы изотопов плутония сведены в табл. 21.1 [4]. Следует отметить, что удельная мощность ^{238}Pu значительно превышает (почти в 250 раз) мощность ^{239}Pu из-за более короткого периода полураспада. Удельная мощность ^{241}Am также значительно больше мощности ^{239}Pu, поэтому содержание ^{241}Am во время калориметрического анализа имеет весьма важное значение. Содержание ^{241}Am со временем возрастает, так как ^{241}Am образуется при бета-распаде ^{241}Pu и поэтому тепловая мощность плутониевого образца также возрастает со временем. В процессе распада ^{241}Pu до ^{241}Am как материнские, так и дочерние ядра вносят свой вклад в полную мощность. Вклад ^{241}Am в полную мощность описывается уравнением (21.11), помещенным в конце раздела 21.3.2.

Таблица 21.1 – Значения удельной мощности для изотопов плутония [4]

Радиоизотоп	Освобождаемая при распаде энергия Q, МэВ	Основной тип распада	Период полураспада $T_{1/2}$, лет	Удельная мощность, мВт/г	Стандартное отклонение удельной мощности, мВт/г
^{238}Pu	5,592	Альфа	87,74	567,57	0,26
^{239}Pu	5,243	Альфа	24 119	1,9288	0,0003
^{240}Pu	5,255	Альфа	6 564	7,0824	0,002
^{241}Pu	0,0055	Бета	14 348	3,412	0,002
^{242}Pu	4,985	Альфа	376 300	0,1159	0,0003
^{241}Am	5,640	Альфа	433,6	114,2	0,42

21.3.2 Эффективная удельная мощность

Так как реальные образцы плутония содержат разные количества различных изотопов, приведенных в табл. 21.1, то полная мощность является суммой мощностей каждого изотопа:

$$W = \sum_{i=1}^{n} m_i P_i , \qquad (21.4)$$

где m_i — масса i-го изотопа;
P_i — удельная мощность i-го изотопа;
n — число всех изотопов плутония и ^{241}Am.

Если R_i определить как массовую долю m_i/M для i-го изотопа, где M есть суммарная масса изотопов плутония, то

$$W = M\sum_{i=1}^{n} P_i R_i . \qquad (21.5)$$

Для калориметрического анализа важным фактором является эффективная удельная мощность $P_{эфф}$, выражаемая в ваттах на грамм плутония и определяемая соотношением

$$P_{эфф} = \sum_{i=1}^{n} P_i R_i . \qquad (21.6)$$

В единицах эффективной мощности суммарная масса всех изотопов плутония задается выражением

$$M = W / P_{эфф} . \qquad (21.7)$$

Масса каждого конкретного изотопа равна

$$m_i = R_i W / P_{эфф} . \qquad (21.8)$$

Для проведения точных калориметрических анализов должны быть очень хорошо известны значения эффективной удельной мощности образца. Эффективная удельная мощность может быть определена либо экспериментальным, либо расчетным методом [4]:

а) *Экспериментальный метод.* Экспериментальный метод определения эффективной удельной мощности хорошо подходит для дискретных партий исследуемых материалов, когда применение расчетного метода затруднительно из-за недостаточно хорошо известной распространенности изотопов ^{238}Pu и ^{241}Am. Этот метод требует проведения как химического, так и калориметрического анализа образца. Калориметрический анализ определяет полную мощность, создаваемую образцом, а химический анализ — суммарное количество ядерного материала в образце. Затем для расчета эффективной удельной мощности может быть использовано уравнение (21.7).

б) *Расчетный метод.* Расчетный метод определения эффективной удельной мощности пригоден в случае, когда может быть произведено очень точное определение содержания изотопов. Если может быть измерено содержание изотопа R_i и

для каждого изотопа известны величины удельной мощности P_i, то по уравнению (21.6) может быть рассчитана эффективная удельная мощность для данной смеси изотопов.

Относительное содержание изотопов может быть определено неразрушающими методами гамма-спектрометрии (см. главу 8) или разрушающими методами масс-спектрометрии [5, 6]. Разрушающие методы должны включать методику определения содержания изотопа ^{241}Am. Содержание изотопа ^{238}Pu предпочтительнее измерять с использованием альфа-спектрометрии [4].

Массовые доли изотопов должны быть точно известны и откорректированы по их периодам полураспада на дату измерения мощности калориметром, так как эффективная удельная мощность зависит от времени. Поправка на распад изотопа может быть произведена либо посредством определения кривой нарастания мощности образца за период по крайней мере в 30 дней, либо расчетом поправки по ранее определенному изотопному составу. Согласно публикации [4], если используется метод кривой нарастания мощности, то должны быть известны "минимум три точки для построения прямой линии, показывающей зависимость мощности от времени. Эта зависимость должна быть дополнительно проконтролирована еще через 30 дней".

Поправка на распад изотопа, основывающаяся на расчете по ранее измеренному содержанию изотопа, обычно является самым легким подходом, как показано в уравнении (21.9):

$$W = M\sum_{i=1}^{n} P_i R_i(t). \qquad (21.9)$$

Уравнение (21.9) аналогично уравнению (21.5) за исключением того, что $R_i(t)$ выражает зависимость массовых долей от времени. Для изотопов плутония

$$R_i(t) = R_i(t_I)\exp[-\lambda_i(t-t_I)]/F(t), \qquad (21.10)$$

где $R_i(t)$ — массовая доля i-го изотопа плутония в момент времени t;

t_I — время проведения изотопного анализа плутония;

λ_i — постоянная распада i-го изотопа плутония;

$F(t) = \sum_{i=1}^{n-1} R_i(t_I)\exp[-\lambda_i(t-t_I)]$ суммируется только по изотопам плутония.

Для дочерних ядер ^{241}Am массовая доля обусловлена как распадом изотопа ^{241}Am, так и накоплением за счет бета-распада изотопа ^{241}Pu:

$$R_A = \frac{F(t_A)}{F(t)} R_A(t_A)\exp\{-\lambda_A(t-t_A)]+$$
$$+K_1K_2\frac{R_1(t_1)}{F(t)}\frac{\lambda_1\exp[-\lambda_1(t_A-t_I)]}{\lambda_i-\lambda_A}\{\exp[-\lambda_A(t-t_A)]-\exp[-\lambda_1(t-t_A)]\} \qquad (21.11)$$

где $R_1(t_I)$ — массовая доля изотопа ^{241}Pu, определенная в момент времени t_I;

$R_A(t)$ — массовая доля изотопа ^{241}Am относительно всего плутония в момент времени t;

t_A — время проведения анализа америция;

λ_A — постоянная распада изотопа ^{241}Am;

λ_1 — постоянная распада изотопа ^{241}Pu;
K_1 – 0,9999754 вероятность распада ^{241}Pu с образованием ^{241}Am;
K_2 — 0,999999905 отношение массовых чисел ^{241}Am к ^{241}Pu.

И, наконец, если полная масса плутония известна на какой-то момент времени t_m, то его масса на любой момент времени в будущем составляет

$$m(t) = m(t_m)F(t) / F(t_m). \quad (21.12)$$

21.4 ИЗМЕРЕНИЕ ТЕПЛОТЫ С ПОМОЩЬЮ КАЛОРИМЕТРА

Калориметр содержит контейнер, в котором исследуется тепловой эффект, и датчик температуры. В общем случае контейнер связан с окружающей средой стенками, которые имеют некоторое тепловое сопротивление. Основные элементы калориметра показаны на рис 21.1 [7]. Теплота, выделяемая во внутренней полости контейнера, повышает его температуру и создает тепловой поток через тепловое сопротивление в окружающую среду в соответствии с уравнением (21.13):

$$\frac{dQ}{dt} = k(T_{кал} - T_{окр}), \quad (21.13)$$

где Q — тепловая энергия;
k — теплопроводность;
$T_{кал}$ — внутренняя температура калориметра;
$T_{окр}$ — температура внешней окружающей среды.

В зависимости от величины этого теплообмена калориметр может быть классифицирован как адиабатический или изотермический.

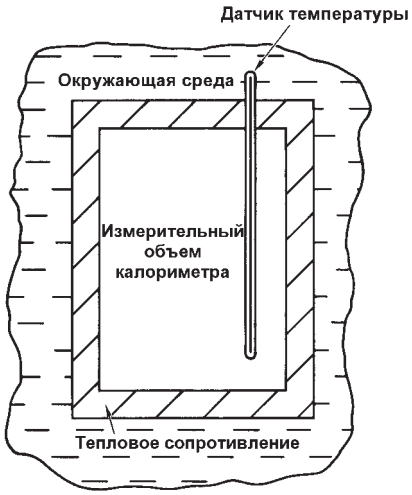

Рис. 21.1. *Основными элементами калориметра являются его измерительный объем или внутренняя полость, датчик температуры, теплоизолирующий зазор и окружающая среда*

21.4.1 Адиабатические калориметры

В общем случае калориметры проектируются с большим тепловым сопротивлением между полостью контейнера и окружающей его внешней средой. В результате этого почти все тепло, производимое в калориметре, сохраняется, вызывая повышение его температуры. Измеряя повышение температуры ΔT, можно определить количество выделяемой тепловой мощности по формуле $Q = C \cdot \Delta T$, где C — теплоемкость. Если источник теплоты имеет постоянную скорость тепловыделения, то внутренняя температура будет также повышаться с постоянной скоростью. Если источник теплоты конечен, то внутренняя температура калориметра достигнет некоторого определенного уровня.

Эффективный тип адиабатического калориметра — это калориметр, спроектированный таким образом, чтобы $T_{окр}$ постоянным регулированием соответствовала $T_{кал}$, так чтобы скорость теплопередачи равнялась нулю $dQ/dt = 0$. Это осуществляется с помощью регулятора, который реагирует на любую разность двух температур. Адиабатические калориметры наиболее пригодны для изучения таких процессов, как, например, химические реакции, для которых важно измерять выделение полного суммарного количества теплоты. Адиабатические калориметры не используются для анализа радионуклидов, так как их внутренняя температура может продолжать повышаться бесконечно долго.

21.4.2 Изотермические калориметры

Если тепловое сопротивление между полостью для образца и окружающей средой мало, то теплота, создаваемая в калориметре, передается окружающей среде. Для образца, вырабатывающего теплоту с постоянной скоростью, система в целом достигнет равновесия, при котором скорость теплопередачи в окружающую среду равна скорости образования теплоты в образце. Скорость теплопередачи прямо пропорциональна разности температур между полостью для образца и окружающей средой, как описано в уравнении (21.13), в котором теплопроводность k зависит от длины пробега теплового излучения, материала и формы поверхности. Важно, чтобы величина k оставалась постоянной, так как измерение скорости теплопередачи по-существу представляет собой точное измерение температуры. Величина k определяется для данного калориметра градуировкой.

Калориметр классифицируется как изотермический, если в полости для образца поддерживается постоянная температура. Если же калориметр спроектирован таким образом, что устанавливается постоянный перепад температур между полостью для образца и окружающей средой, то он классифицируется как калориметр теплового потока.

Радиометрические калориметры, которые спроектированы для калориметрического анализа радиоактивных изотопов, являются обычно калориметрами теплового потока, так как образцы плутония излучают теплоту при почти постоянном уровне тепловой мощности вследствие спонтанного распада радиоактивных изотопов. Различные типы калориметров, используемые для анализа плутония и описанные в следующем разделе, являются калориметрами теплового потока.

21.5 ТИПЫ КАЛОРИМЕТРОВ ТЕПЛОВОГО ПОТОКА

Хотя калориметрический анализ плутония обычно выполняется калориметром теплового потока, нет универсальной конструкции калориметра, пригодной для всех задач. Каждая система обычно создается по требованиям заказчика с учетом множества технических характеристик, описанных в разделе 22.1.2 главы 22. В зависимости от конкретных требований окончательная конструкция прибора может совмещать отличительные особенности одного или нескольких типов калориметров, описанных в этом разделе: двухэлементного мостового, мостового с верхней/нижней камерами и градиентного мостового.

21.5.1 Общие электрические характеристики

Одной отличительной особенностью современных калориметров является точное измерение температуры электрическим средствами. Определение общей тепловой мощности образца основано на электрическом измерении разницы температур между камерой для образца и внешним теплоотводом или эталонной камерой.

В двухэлементных калориметрах камера для образца и эталонная камера содержат две обмотки из никелевой проволоки, сопротивление которых является функцией температуры. Четыре обмотки образуют мост Уитстона с перекрещенными плечами и подключены к источнику постоянного тока, как показано на рис 21.2 [7]. При такой схеме разность температур между камерой для образца и эталонной камерой прямо пропорциональна потенциалу моста ВР.

При отсутствии образца в калориметре можно наблюдать небольшой потенциал моста BP_0 (микровольты) из-за различий сопротивлений никелевых обмоток. Когда образцовый электрический источник теплоты или радиоизотопный источник теплоты, выделяющий мощность на уровне W_R ватт помещается в камеру для образца, то мост уравновешивается при потенциале BP_R (мкВ). Чувствительность S калориметра, выраженная в микровольтах на ватт, составляет:

$$S = (BP_R - BP_0)W_R \text{, мкВ/Вт.} \qquad (21.14)$$

21.5.2 Полные мостовые двухэлементные калориметры

Для повышения точности почти все калориметры могут быть построены как двухэлементные калориметры. Наиболее типичным примером является изотермический двухэлементный мостовой калориметр, разработанный Маундской лабораторией и широко используемый для анализа в заводских условиях [8]. На рис 21.3 показано поперечное сечение калориметра этого типа, а на рис 21.4 представлен снимок полного двухэлементного мостового калориметра без окружающей его водяной ванны.

Конструкция полного двухэлементного мостового калориметра состоит из двух одинаковых тепловых элементов — камеры для образца и эталонной камеры, каждая из которых отделена от внешней стенки воздушным зазором или зазором из твердого вещества, служащим в качестве теплового сопротивления. Каждый тепловой элемент имеет провода нагревателя, обмотанные вокруг камеры для выполнения градуировки. Потери тепла вдоль оси камеры сводятся к минимуму за счет использования пластмассовых концевых колпачков с отражателями из сти-

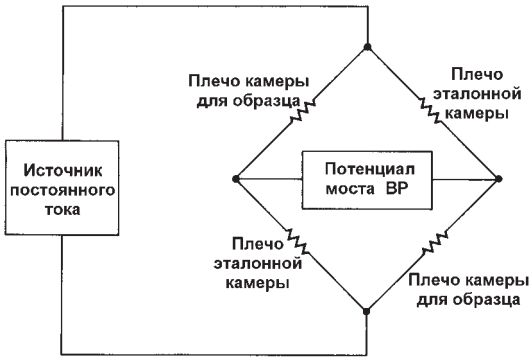

Рис. 21.2. *Мост Уитстона, используемый для точного измерения разности температур между камерой для образца и эталонной камерой калориметра*

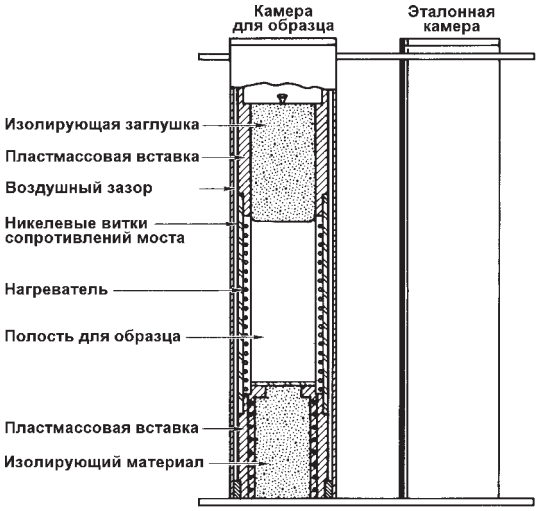

Рис. 21.3. *Поперечное сечение типичного изотермического калориметра с двумя идентичными тепловыми камерами: для образца и эталона*

роформа (теплоизолирующего пенопласта) и металлическими пластинами для обеспечения теплопередачи от образца к стенкам калориметра. Два резистивных термометра из тонкой никелевой проволоки намотаны по всей длине каждого теплового элемента для обеспечения точного измерения температуры независимо от изменений теплового потока [8].

Во время работы двухэлементный калориметр погружен в водяную ванну, температура которой поддерживается постоянной с точностью до миллиградуса. Кроме того, использование двух одинаковых тепловых элементов создает дифференциальный сигнал, который в 10-100 раз более стабилен, чем сигнал для внешней ванны. Когда образец помещается в камеру, температура повышается до тех пор, пока потери тепла через никелевые обмотки, тепловой зазор и внешний кожух к водяной ванне не станут равными теплоте, генерируемой образцом. При достижении этого равновесия разность температур, измеряемая с помощью потенциала моста, пропорциональна количеству генерируемой теплоты. Точные калориметры теплового потока этого типа проектируются и создаются таким образом, чтобы тепловые пути между камерой для образца и окружающей средой оставались постоянными. Дополнительного внимания заслуживает поддержание по-

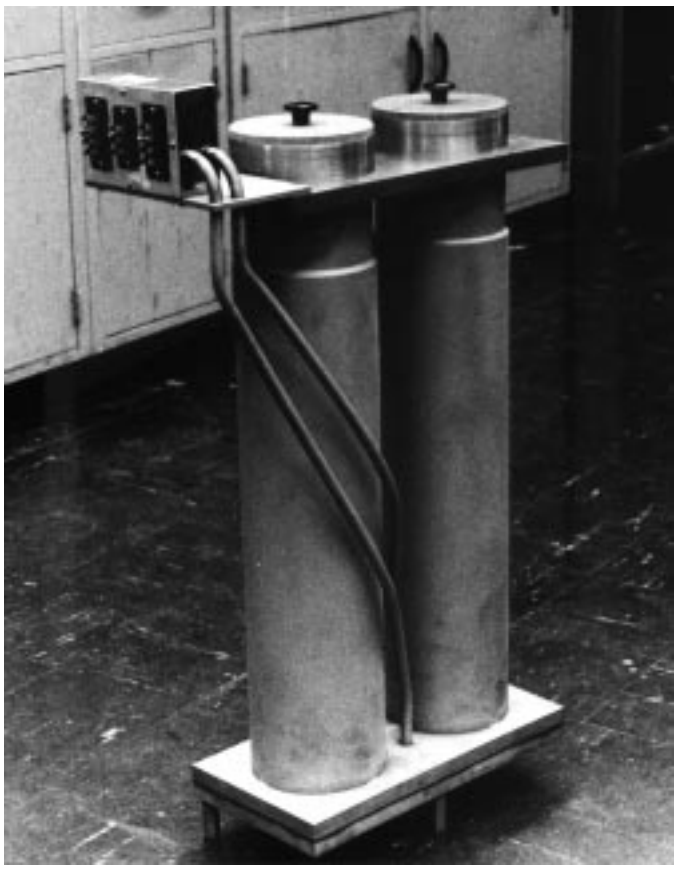

Рис. 21.4. *Общий вид двухэлементного мостового калориметра без окружающей водяной ванны*

стоянной температуры окружающей среды и минимизация погрешности в тепловом распределении, связанной с расположением образца в камере.

Двухэлементный мостовой калориметр обеспечивает наибольшую точность, надежность, чувствительность и долговременную стабильность при измерениях тепловой мощности вследствие внутренней компенсации многих тепловых эффектов. Однако наличие двух тепловых элементов и внешней водяной ванны приводит к тому, что этот измерительный прибор больше по размерам и требует большего пространства для размещения, чем калориметры других конструкций. Двухэлементные мостовые калориметры предназначены для образцов с диаметром от 1 до 30,5 см. Верхний предел определяется только нормами ядерной безопасности, а нижний предел — от 0,1 до 0, 2 г ^{239}Pu на литр [8]. Применение двухэлементного мостового калориметра описано в разделе 22.4.1 главы 22.

21.5.3 Мостовые калориметры с верхней/нижней камерами

В конструкции калориметра с верхней/нижней камерами камера для образца устанавливается над несколько укороченной эталонной камерой [7], как показано на рис 21.5. Обе камеры размещаются в одном изотермическом водяном кожухе, который меньше, чем внешняя ванна, используемая в двухэлементном калориметре. Конструкция с верхней/нижней камерами требует меньшего пространства для установки, но она несколько выше. Конструкция с верхней/нижней ка-

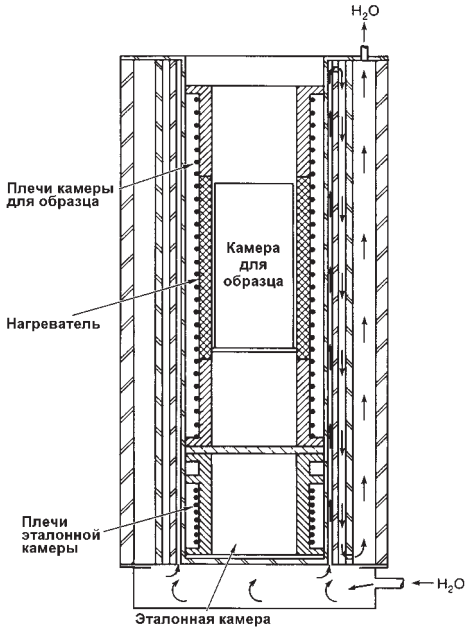

Рис. 21.5. *Передвижной мостовой калориметр с верхней/нижней камерами с тонкой водяной рубашкой, в котором камера для образца расположена над эталонной камерой*

мерами может также использоваться для создания передвижного калориметра. Калориметр, показанный на рис 21.5, может быть установлен на подвижной тележке вместе с циркуляционной ванной.

Конструкция мостового калориметра с верхней/нижней камерами имеет преимущество по габаритам и стоимости перед двухэлементной конструкцией и обеспечивает устранение некоторых тепловых эффектов. Однако точность такого калориметра не настолько высока, как у полного двухэлементного мостового калориметра. Примеры мостовых калориметров с верхней/нижней камерами приведены в разделах 22.3.1 и 22.4.2 главы 22.

21.5.4 Градиентный мостовой калориметр

Градиентный мостовой калориметр (рис 21.6) состоит из ряда концентрических цилиндров, при этом цилиндр камеры для образца находится внутри цилиндра эталонной камеры [7]. Зазор между цилиндрами камеры для образца и эталонной камеры определяет чувствительность калориметра. Внешний эталонный цилиндр является кожухом, который обеспечивает однородный теплоотвод. Кожух соприкасается с тонкостенной ванной с циркулирующей водой. Такая конструкция приводит к небольшим габаритам, требует малых расходов материала и затрат на изготовление. Градиентная конструкция хорошо подходит для передвижных вариантов установки, для установки в перчаточном боксе или для больших образцов, когда общие габариты должны быть минимизированы. Градиентный калориметр обычно работает в режиме постоянной температуры, описанном далее в разделе 21.6.3. Конструкция градиентного мостового калориметра Маундской лаборатории описана в разделе 22.4.4 главы 22.

Разработанный Аргоннской национальной лабораторией калориметр с изотермической воздушной камерой является разновидностью градиентной конст-

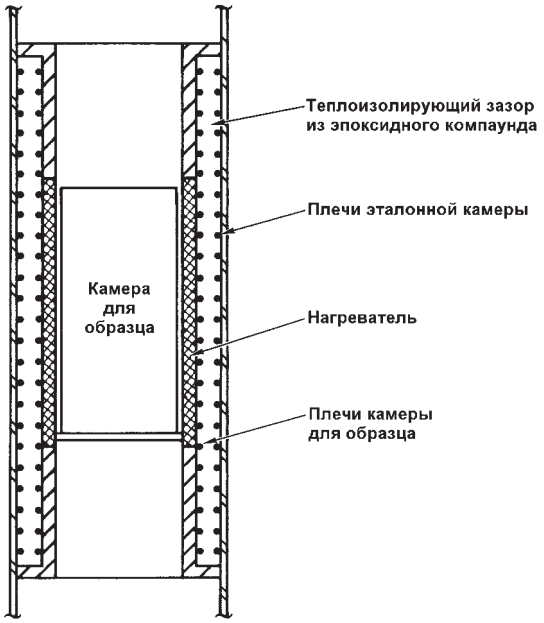

Рис. 21.6. *Поперечное сечение градиентного мостового калориметра. Внешний теплоотвод, который мог бы представлять собой небольшую или просто воздушную камеру, не показан*

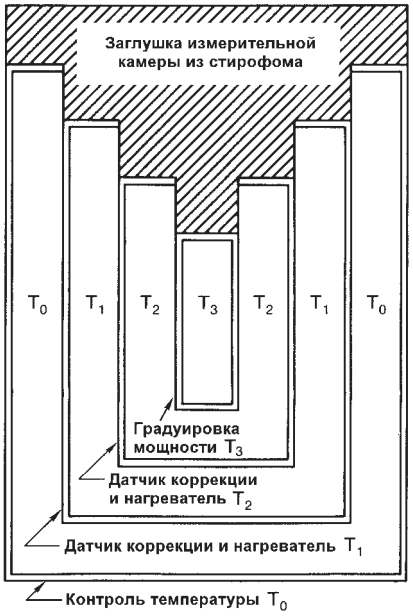

Рис. 21.7. *Поперечное сечение калориметра с воздушной камерой, представляющего собой вариант градиентного мостового калориметра*

рукции, которая не требует водяной ванны [9 и 10]. Этот калориметр (рис 21.7) описан в работе [10] как "термостат с постоянной температурой, состоящий из ряда концентрических камер. Каждая из этих камер сделана из алюминиевого цилиндра, на котором закреплены резистивные нагревательные спирали и тепловые датчики. Цилиндры отделены один от другого высокотемпературным теплоизолирующим материалом. Концы цилиндров одинаково защищены пробками, не

проводящими тепло, и плоскопараллельными нагревательными спиралями. В этом случае чередующиеся зоны высокой и низкой теплопроводности обеспечивают минимизацию эффектов локальных внешних температурных изменений. В калориметре устанавливается температурный профиль для исключения осевого теплового потока и обеспечения отрицательного радиального температурного градиента. На схеме (см. рис. 21.7) цепь управления с электронной обратной связью поддерживает соотношение температур: $T_3 > T_2 > T_1 > T_0 > T_{внешн}$. Внутренние два цилиндра (T_3, T_2) работают как измерительные камеры. Источник электропитания калориметра настраивается таким образом, чтобы поддерживать разность температур между этими цилиндрами до ±20 микроградусов". Калориметры этого типа использовались для измерения герметизированных контейнеров с материалами в балк-форме, содержащими до 3 кг плутония, топливных таблеток из смешанных оксидов и топливных стержней длиной до 4 м. Примеры использования приведены в разделах 22.2.2, 22.3.2 и 22.5.1 главы 22.

21.6 МЕТОДЫ РАБОТЫ С КАЛОРИМЕТРАМИ ТЕПЛОВОГО ПОТОКА

21.6.1 Метод замещения

При этом методе работы измеряемые образцы помещаются в калориметр до достижения теплового равновесия. Разность температур между калориметром и теплоотводом определяется с помощью потенциала моста. Затем образец удаляется и калориметр нагревается электрическими средствами до тех пор, пока не будет достигнута та же температура теплового равновесия. Тепловая мощность образца может быть определена из известной мощности, обеспечиваемой нагревателем, замещающим образец. Для измерения образца и нагревателя используется одна и та же измерительная камера.

Метод замещения включает в себя следующие шаги [7, 8]:

1. Потенциал моста BP_0 измеряется при пустой камере для образца, нулевой мощности нагревателя и контроле температуры окружающей среды. Обычно потенциал BP_0 измеряется не для каждого образца, а с некоторой периодичностью.

2. Анализируемый образец помещается в калориметр и определяется равновесный потенциал моста BP_S.

3. Затем образец удаляется и рассчитывается ток нагревателя, необходимый для замещения тепловой мощности образца. Требуемая мощность нагревателя составляет приблизительно

$$W_H(\text{приблиз.}) = (BP_S - BP_0)/S, \qquad (21.15)$$

где S — чувствительность калориметра, определенная ранее с помощью уравнения (21.14).

Затем рассчитывается необходимый ток нагревателя. Проблема рассеивания мощности в проводах, идущих к нагревателю, может быть минимизирована в двухэлементном мостовом калориметре пропусканием проводов и через камеру для образца, и через эталонную камеру, в результате чего эффекты компенсируются.

4. Ток нагревателя подается в камеру образца до тех пор, пока не будет определен равновесный потенциал моста BP_H. Кроме того, фактическая точная мощ-

ность нагревателя W_H рассчитывается на основе измеренного тока и напряжения нагревателя.

5. Тогда тепловая мощность неизвестного образца равна

$$W_S = W_H + (BP_S - BP_H) / S, \text{ Вт}. \quad (21.16)$$

Приведенная выше процедура представлена на рис 21.8, где также показана дополнительная сложность, вызываемая медленными дрейфами в измерительном приборе.

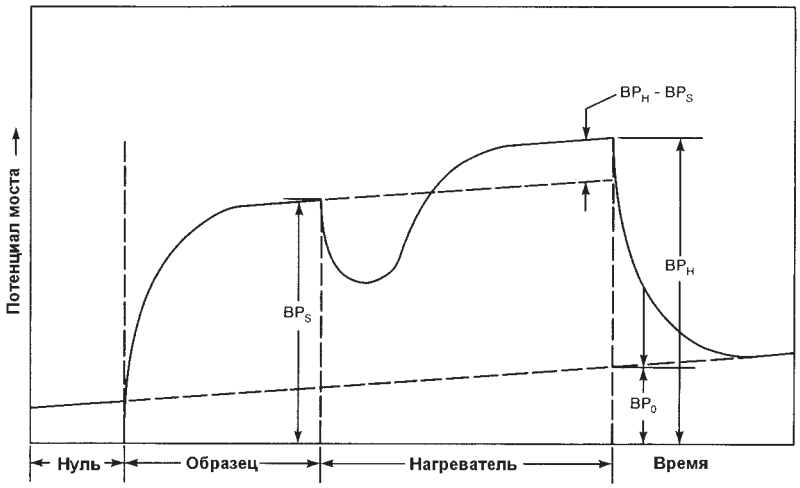

Рис. 21.8. *Зависимость потенциала моста калориметра от времени, наблюдаемая по методу замещения. Верхние наклоны иллюстрируют дополнительную сложность, вызванную дрейфами градиентного измерительного устройства*

21.6.2 Дифференциальный метод

Мостовой двухэлементный калориметр или калориметр с верхней/нижней камерами могут работать в дифференциальном режиме, в котором электрическая теплота эталонной камеры может непосредственно сравниваться с теплотой образца в измерительной камере. Поскольку измерения для образца и нагревателя проводятся одновременно, то анализы могут быть выполнены за половину того времени, которое требуется для метода замещения. Практически эта экономия времени реализуется только тогда, когда мощность образца известна заранее с погрешностью около 1 %. Таким образом, дифференциальный метод наиболее удобен, когда производятся анализы нескольких образцов приблизительно одного размера. Для образцов неизвестного размера этот метод позволяет выполнить анализ лишь несколько быстрее, чем метод замещения [8].

При использовании дифференциального метода тепловая мощность образца в равновесном состоянии описывается уравнением

$$W_S = W_H + (BP_S - BP_M) / S, \text{ Вт}. \quad (21.17)$$

BP_M представляет собой потенциал моста, рассчитанный на основе mW_H, где m — постоянная наклона. Величина (BP_S — BP_M) равна нулю, если мощность нагревателя точно соответствует мощности образца. Если же это не так, то данная величина компенсирует небольшие различия между ними. Постоянная m опреде-

ляется во время градуировки пропусканием тока через последовательно включенные нагреватели образца и эталонной камеры [8].

21.6.3 Метод сервоконтроля постоянной температуры

В этом режиме работы температуры камеры для образца и внешней ванны поддерживаются на постоянном уровне с помощью механизма сервоконтроля. Мощность нагревателя используется для поддержания температуры камеры для образца на более высоком уровне, чем температура ванны. Когда образец помещается в калориметр, сервоконтроллер уменьшает мощность нагревателя на величину мощности образца, чтобы поддерживать температуру в камере на постоянном уровне. Этот метод, называемый также изотермическим методом, может применяться для любой конструкции моста калориметра. Использование метода постоянной температуры обычно сокращает время анализа на одну треть или наполовину, так как время, требующееся для достижения равновесия, зависит в основном от теплового сопротивления и теплоемкости образца и в меньшей степени — от калориметра.

Перед проведением анализа образцов методом постоянной температуры базовый уровень мощности устанавливается на уровне на 10-20 % выше оцениваемого уровня мощности любых градуировочных эталонов или реальных образцов. Измерение базового уровня мощности осуществляется для установления равновесного уровня мощности W_0 пустой камеры. Это измерение требует меньше времени, чем анализ образца, так как в камере отсутствует вещество.

Когда радиоактивный образец помещается в калориметр, мощность нагревателя падает, тогда как сервоконтроллер пытается поддержать постоянную температуру. Новый равновесный уровень мощности — W_C, а мощность образца составляет

$$W_S = W_0 - W_C, \text{ Вт}. \qquad (21.18)$$

Контроль постоянной температуры калориметра может осуществляться с помощью аналоговых или цифровых схем. Цифровая схема обладает преимуществом, так как не требует регулировки по уравнению (21.18) для компенсации систематической погрешности, которая имеет место в аналоговых системах.

Метод сервоконтроля постоянной температуры является одним из наиболее быстрых методов работы калориметра, особенно при использовании "достижения предварительного равновесия" образца во внешней среде с контролируемой температурой.

21.7 ВРЕМЯ АНАЛИЗА

Время, необходимое для выполнения калориметрического анализа радиоактивного образца, зависит от ряда факторов, которые оказывают влияние на время, необходимое для достижения системой устойчивого состояния. Эти факторы включают в себя следующее:

а) тип калориметра теплового потока — двухэлементный мостовой, мостовой с верхней/нижней камерами или градиентный мостовой;

б) тепловое сопротивление и теплоемкость материала, используемого в конструкции калориметра, и материал образца;

в) качество конструкции калориметра — плотность подгонки деталей конструкции, однородность воздушных зазоров и т.д.;

г) физический размер камеры для образца калориметра и диаметр образца;

д) упаковка образца — расположение источников теплоты внутри упаковки, наличие полостей и т.д.;

е) метод работы калориметра — замещение, дифференциальный или сервоконтроль постоянной температуры;

ж) использование предварительной подготовки образца;

з) использование методик прогнозирования конечной точки достижения равновесного состояния;

и) требуемая точность анализа.

Калориметрический анализ небольших образцов с хорошо известными характеристиками может быть проведен менее, чем за один час. С другой стороны, образцы продукции или скрапа в балк-форме для достижения теплового равновесия требуют от 4 до 16 ч. В табл. 21.2 [8] приведены несколько примеров длительностей анализа для калориметра с водяной ванной и двумя камерами. Плохая упаковка образца содержит пластмассовые мешки и свинцовую дробь, а хорошая упаковка — медную дробь. Более полные сводные данные приведены в работе [1]. Ниже рассматриваются некоторые факторы и методики, влияющие на длительность анализа.

Таблица 21.2 — Некоторые временные характеристики анализа для двухэлементного мостового калориметра [8]

Условия проведения анализа	Время достижения равновесия, ч		
	1,0 %*	0,1 %*	0,01 %*
Только нагреватель, нет образца, нет сервоконтроля температуры	2,8	3,6	4,8
Плохо упакованный образец, нет сервоконтроля температуры	8,1	10,2	13,1
Хорошо упакованный образец, нет сервоконтроля температуры	5,2	6,3	8,0
Плохо упакованный образец, сервоконтроль постоянной температуры	4,7	6,1	8,0
Плохо упакованный образец, сервоконтроль постоянной температуры, предварительная подготовка образца	0,8	1,6	3,0

* Погрешность анализа

21.7.1 Конструкция калориметра и метод работы

Физические размеры и тепловые свойства конкретного калориметра влияют как на время достижения равновесия, так и на чувствительность. Уменьшение

теплового сопротивления калориметра сокращает время достижения равновесия, но уменьшает также наблюдаемый потенциал моста и, согласно уравнению (21.14), чувствительность. Так как уменьшение чувствительности приводит к понижению точности, выбор конструкции калориметра должен отражать соотношение между временем и точностью анализа для определенного диапазона образцов. Важными факторами являются состав и размеры зазора между образцом и стенками калориметра.

Метод замещения для калориметра является наиболее медленным режимом работы, поскольку для выполнения анализа требуется провести три различных измерения с использованием калориметра: измерение образца, измерение нагревателя и периодическое измерение базового уровня BP_0. Дифференциальный метод, который может использоваться с двухэлементными мостовыми калориметрами, требует проведения только двух измерений, так как электрический нагрев в эталонной камере постоянно сравнивается с теплотой, создаваемой образцом. Этот режим снижает время, необходимое для проведения анализа.

Режим работы с сервоконтролем постоянной температуры, или изотермический режим, хорошо подходит для сокращения времени анализа. Когда корпус калориметра поддерживается в равновесном состоянии, влияние его постоянной времени сводится к минимуму, а время анализа в основном зависит от тепловой постоянной времени образца. Время анализа может быть еще больше сокращено, если температура образца предварительно приведена в состояние равновесия с температурой калориметра, как описано в следующем разделе.

21.7.2 Предварительная подготовка образца

Предварительный нагрев образца приблизительно до внутренней температуры калориметра может использоваться вместе с методом сервоконтроля постоянной температуры для сокращения времени анализа, как показано в табл. 21.2. Предварительная подготовка может использоваться самостоятельно или в совокупности с методом прогнозирования конечной точки, описанным в следующем разделе. Когда образец сначала помещается в отдельную водяную ванну предварительной подготовки, а затем устанавливается в калориметр, то время, необходимое для достижения равновесия сокращается, поскольку только сам образец должен достичь равновесия с установившимся тепловым потоком. Градиентный зазор уже находится в установившемся тепловом потоке по отношению к теплоотводу, и мощность нагревателя быстро достигнет уровня равновесной мощности.

Предварительная подготовка имеет некоторые преимущества и недостатки [7]. Главным преимуществом является повышенная производительность. Ванна предварительной подготовки может быть спроектирована для размещения нескольких образцов и ее можно использовать ночью для подготовки образцов для анализа на следующий день. Недостатками при этом являются необходимость дополнительного пространства для размещения, использование электроники и действий оператора. Кроме того, температура ванны предварительной подготовки должна поддерживаться близкой к внутренней температуре калориметра. Любое изменение базового уровня мощности калориметра потребует регулировки температуры ванны предварительной подготовки.

21.7.3 Прогнозирование конечной точки

Прогнозирование равновесия представляет собой математический метод для сокращения времени анализа с использованием калориметра без оказания влияния на чувствительность калориметра или упаковку образца. Этот метод применим к различным типам калориметров. Равновесные величины могут быть надежно предсказаны с экономией времени анализа до 50 % [11, 12].

Прогнозирование конечной точки основано на том принципе, что функция отклика калориметра в основном описывается одной экспонентой в виде

$$Y = A + Be^{-\lambda t}, \qquad (21.19)$$

где Y — зависящая от времен величина выходного сигнала калориметра;

A — величина выходного сигнала равновесия;

B — коэффициент пропорциональности;

λ — постоянная конечного теплового распада для калориметра и образца [11].

В действительности калориметр содержит различные тепловые области, каждая из которых, как показано на рис 21.9, имеет различные значения теплового сопротивления R_i и теплоемкости C_i. Различные тепловые свойства каждой области определяют время, необходимое для достижения равновесия с окружающей средой. Время, требуемое для достижения равновесия всего калориметра, является суммой нескольких экспоненциальных функций отклика. Поскольку метод прогнозирования конечной точки основывается на использовании уравнения (21.19) с одной экспоненциальной функцией, то экономия времени зависит от обоснованности этого приближения. Плохо упакованные образцы с высоким тепловым сопротивлением или теплоемкостью будут проанализированы с меньшей экономией времени.

Процедура расчета выходного сигнала равновесия A требует периодического определения выходного сигнала Y в течение анализа [7]. После сглаживания величины Y и подгонки к уравнению (21.19) рассчитывается величина A. Эта процедура периодически повторяется по мере проведения анализа и определения все большего числа значений Y. На рис. 21.10 проиллюстрирован этот процесс. Когда предсказанные величины A обнаруживают нулевой наклон в пределах ожидаемого стандартного отклонения, измерение заканчивается. Анализ прекращается прежде, чем калориметр действительно достигает равновесия.

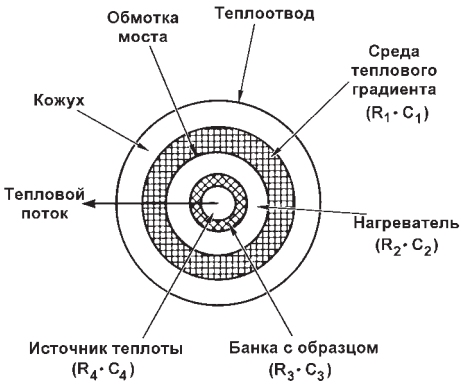

Рис. 21.9. *Радиальное поперечное сечение идеализированного калориметра с четырьмя участками, каждый из которых имеет различные значения теплового сопротивления R_i и теплоемкости C_i*

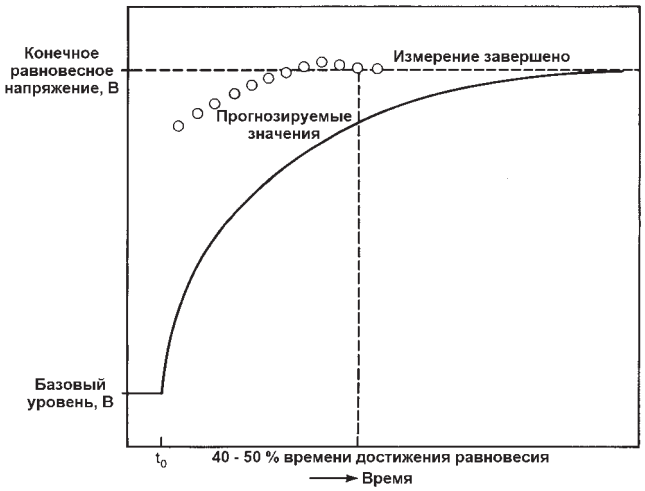

Рис. 21.10. *Графическое представление метода прогнозирования конечной точки. Измерение завершается, когда прогнозируемые значения характеризуются нулевым наклоном в пределах ожидаемого стандартного отклонения*

21.8 ГРАДУИРОВКА КАЛОРИМЕТРА

Точная градуировка необходима для определения соответствия выходной мощности калориметра и известных значений мощности. Для градуировки обычно используются два типа стандартных образцов: электрические и радиоизотопные источники теплоты. Независимо от используемого метода градуировки весьма важно, чтобы электрические или радиоизотопные стандартные образцы были сертифицированы Национальным бюро стандартов [4].

21.8.1 Электрическая градуировка

Методы электрической градуировки применимы для калориметрических методов, в которых мощность нагревателя дублирует или замещает тепловую мощность образца [4]. Мощность, вырабатываемая в электрическом нагревателе, определяется произведением падения напряжения нагревателя на ток, протекающий через нагреватель. Для градуировки нагревателя ток может определяться измерением падения напряжения на эталонном сопротивлении. Такая градуировка дает соотношение между потенциалом моста и тепловой мощностью образца — чувствительность калориметра (уравнение (21.14)). Результатом этого является кривая зависимости чувствительности от мощности образца.

Для точной электрической градуировки необходимо, чтобы электрический нагреватель вызывал такие же изменения на выходе калориметра, что и образец эквивалентной мощности [4]. Это означает, что расположение нагревателя относительно измерительного датчика должно быть таким же, как у радиоактивного образца. Погрешность, связанная с этим фактором, вызвана неопределенностью теплового распределения. Для определения величины этой погрешности рекомендуется помещать небольшой образец в различных точках камеры и измерять выходной сигнал для различных положений. Для этой цели был бы идеален один

из радиометрических образцовых источников теплоты, рассматриваемых в следующем разделе. Другим источником погрешности при электрической градуировке является потеря мощности в проводах нагревателя для калориметров с одной камерой. Методика поправки на погрешность за счет проводов нагревателя описана в работе [4].

21.8.2 Градуировка с использованием радиоизотопных источников теплоты

Градуировка с использованием радиоизотопных источников теплоты более проста и обычно предпочтительна, так как охватывает все стороны работы калориметра. В Маундской лаборатории имеются образцовые источники теплоты на основе $^{238}PuO_2$ в диапазоне от 0,04 мВт до 100 Вт, для которых может быть прослежена связь с эталонными материалами Национального бюро стандартов [7]. Эти источники компактны и для них может быть рассчитана зависимость выходной мощности от времени. Источники теплоты должны охватывать диапазон реальных мощностей образцов.

В ходе процедуры градуировки радиоизотопные источники теплоты помещаются в камеру для образца также, как это делается для неизвестных образцов. Выходной сигнал калориметра измеряется с использованием известной мощности каждого образцового источника теплоты. Эти данные используются для получения градуировочной кривой и связанной с ней кривой чувствительности также, как и в случае электрической градуировки. Дополнительные подробности об этой процедуре приведены в работе [4].

21.9 ИСТОЧНИКИ ПОГРЕШНОСТЕЙ

Как описано в разделе 21.3, определение содержания плутония является двухступенчатым процессом: определение мощности калориметром и определение эффективной удельной мощности экспериментальным или расчетным методами. Источники погрешностей сведены в табл. 21.3 [4, 7, 13].

Источники погрешностей при определении мощности включают в себя:

а) неточность калориметрической системы — дисперсия отклика системы вследствие колебаний температуры помещения, температуры ванны, влажности, веса образца, ударов образца при загрузке и выгрузке и т.д.;

б) погрешность теплового распределения — дисперсия отклика системы, обусловленная пространственным размещением образца в камере;

в) погрешность градуировки — дисперсия отклика системы в зависимости от метода градуировки и используемых образцовых источников;

г) погрешность из-за выделения тепла от вызывающих помехи процессов, таких, например, как реакции продуктов деления или химические реакции.

Источники погрешности при определении эффективной удельной мощности зависят от применяемого метода: экспериментального или расчетного. Если используется экспериментальный метод, то возможными источниками погрешностей являются:

а) погрешности определения мощности образца;

б) погрешности определения содержания плутония в образце.

При применении расчетного метода для определения эффективной удельной мощности, источниками погрешностей являются:

а) погрешности определения изотопного состава образца;

б) неопределенность значений удельной мощности (см. последний столбец в табл. 21.1).

Суммарная неопределенность анализа может быть оценена объединением погрешности определения мощности калориметром с неопределенностью эффективной удельной мощности:

$$\sigma(\mathrm{Pu}) = \sqrt{\sigma^2(\mathrm{W}) + \sigma^2(\mathrm{P}_{\text{эфф}})}. \qquad (21.20)$$

Значения погрешностей, приведенные в табл. 21.3, являются типичными. Реальные погрешности могут быть совершенно другими. В частности, погрешности, связанные с определением изотопного состава, зависят от используемого метода. Для концентраций ниже 0,1 % приведенные погрешности типичны для погрешностей результатов радиометрических измерений ^{238}Pu и ^{241}Am. Для концентраций от 0,1 до 1 % минимальная погрешность масс-спектрометрического определения составляет 1 %, для концентраций свыше 20 % минимальная погрешность составляет 0,3 %. Если изотопный состав определяется методом гамма-спектрометрии высокого разрешения, то погрешности для большинства плутониевых изотопов находятся в пределах от 0,1 до 10 %. Погрешности определения эффективной удельной мощности находятся в диапазоне от 0,3 до 1 % при времени измерения от 1 до 4 ч ([14] и глава 8). Обычно погрешность измерений мощности калориметром меньше, чем неопределенность, связанная с определением эффективной удельной мощности.

Таблица 21.3 – Источники погрешностей калориметрического анализа [4, 7, 13]

Источник погрешности	Приблизительное значение, %
Измерение мощности	
неточность калориметрической системы	< 0,1
погрешность теплового распределения	< 0,1
погрешность градуировки	< 0,1
погрешность от помех	< 0,1
Определение эффективной удельной мощности	
экспериментальный метод	
определение мощности образца	< 0,2
определение содержания плутония в образце	< 0,2
расчетный метод	
определение изотопного состава	
концентрация <0,1 %	2-5
концентрация >0,1 %	1,5
концентрация > 1 %	0,5
концентрация > 20 %	0,3
неопределенность значений удельной мощности	< 0,1

ЛИТЕРАТУРА

1. W. Rodenburg, “Calorimetric Assay,” in “Handbook of Nuclear Safeguards Measurement Methods,” D.R. Rogers, Ed., Mound Laboratory report MLM-2855, NUREG/CR-2078 (1983), pp.533-550
2. W. Rodenburg, “An Evaluation of the Use of Calorimetry for Shipper-Receiver Measurements of Plutonium,” Mound Laboratory report MLM-2518, NUREG/CR-0014 (1978).
3. W. Strohm, S. Fiarman, and R. Perry, “A Demonstration of the in-Field Use of Calorimetric Assay for IAEA Inspection Purposes,” *Nuclear Materials Management* XIV (3), 182 (1985).
4. "Calibration Techniques for the Calorimetric Assay of Plutonium-Bearing Solids Applied to Nuclear Materials Control," ANSI N15.22-1975 (American National Standards Institute, Inc., New York, 1973) and 1986 revision.
5. "Methods for Chemical, Mass Spectrometric, and Spectrochemical Analysis of Nuclear-Grade Plutonium Dioxide Powder and Pellets," ANSI N104-1973 (American National Standards Institute, Inc., New York, 1973).
6. "Methods for Chemical, Mass Spectrometric, Spectrochemical, Nuclear, and Radiochemical Analysis of Nuclear-Grade Plutonium Metal," ANSI N572-1974 (American National Standards Institute, Inc., New York, 1974)
7. Mound Calorimetric Assay Training School Manual, Mound Laboratory, Miamisburg, Ohio, October 22-25, 1985.
8. F. O'Hara, J. Nutter, W. Rodenburg, and M. Dinsmore, “ Calorimetry for Safeguard Purposes,” Mound Laboratory report MLM-1798 (1972).
9. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, “A Portable Calorimeter System for Nondestructive Assay of Mixed-Oxide Fuels,” American Chemical Society Symposium Series, No. 79 (1978).
10. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, “Calorimetric Systems Designed for In-Field Nondestructive Assay of Plutonium-Bearing Materials”, International Atomic Energy Agency/Argonne National Laboratory report IAEA-SM-231/78 (1978).
11. C.L. Fellers and P.W. Seabaugh, “Real-Time Prediction of Calorimetric Equilibrium,” *Nuclear Instruments and Methods*, 163, 499 (1979).
12. R.A. Hamilton, “Evaluation of the Mound Facility Calorimeter Equilibrium Prediction Program,” Rockwell Hanford report RHO-SA-114 (1979).
13. W. Rodenburg, “Some examples of the Estimation of Error for Calorimetric Assay of Plutonium-Bearing Solids,” Mound Laboratory report MLM-2407, NUREG-0229 (1977).
14. T. Sampson, S.T. Hsue, J. Parker, S. Johnson, and D. Bowersox, “The Determination of Plutonium Isotopic Composition by Gamma-Ray Spectroscopy,” *Nuclear Instruments and Methods*, 193, 177 (1982).

Глава 22

Приборы для калориметрического анализа

Р. Лайкс
(Переводчик П. И. Самарин)

22.1 ВВЕДЕНИЕ

В данной главе описываются некоторые современные системы калориметрического анализа, используемые в настоящее время в ядерном топливном цикле для неразрушающего анализа плутония. Начиная с 1950 г. Маундской лабораторией (МЛ, Monsanto Research Corporation, Майямибург, штат Огайо) создано свыше 200 калориметров различных конструкций для целей учета и контроля ядерных материалов, главным образом, на объектах Министерства энергетики США. Наряду с этим, некоторые объекты Министерства энергетики и коммерческие ядерные предприятия создавали свои собственные калориметры. Аргоннская национальная лаборатория (АНЛ, Чикагский Университет, Аргонн, штат Иллинойс) построила несколько калориметров для Международного агентства по атомной энергии (МАГАТЭ). Описываемые в этой главе калориметры представляют типы используемых в настоящее время приборов, включающие приборы, созданные МЛ, АНЛ, заводом Рокки Флэтс и фирмой "Дженерал электрик".

Описываемые в настоящей главе приборы МЛ представлены следующими калориметрами: аналитическим, передвижным, серийным двухэлементным мостовым и градиентным мостовым. Приборы АНЛ представлены следующими калориметрами: для небольших образцов, для анализа материалов в балк-форме, для топливных стержней длиной в 1 м. Также описываются используемые для производственных целей калориметры Рокки Флэтс и калориметр фирмы "Дженерал Электрик" для облученных ТВЭЛов. Приведенным в настоящей главе примерам предшествует сводка типичных компонентов калориметрических систем и обсуждение их конструкций.

22.1.1 Компоненты систем калориметрического анализа

Типичная современная система, предназначенная для калориметрического анализа материалов, содержащих плутоний, имеет следующие компоненты:

а) механически точно обработанный корпус калориметра теплового потока: двухэлементного мостового, мостового с верхней/нижней камерами или градиентного мостового типа. Каждая камера содержит схему электрического нагревателя для точной имитации мощности образца;

б) мостовую схему для точного измерения разности температур между камерой для образца и внешним теплоотводом. Электрическая схема включает высококачественные потенциометры и цифровые вольтметры;

в) цифровой или аналоговый считывающий прибор, который обычно представляет собой микрокомпьютер. Компьютер управляет работой калориметра, сбором и хранением данных и осуществляет анализ данных;

г) электрические или радиоизотопные градуировочные образцовые источники теплоты. Электрические измерения используются для определения разностей температур и для управления схемами электрических нагревателей, имитирующих мощность образца. Кроме того, могут быть предусмотрены радиоизотопные образцовые источники теплоты для градуировки и определения тепловой мощности систем.

22.1.2 Рассмотрение конструкции калориметров

При проектировании прибора для проведения калориметрического анализа решающее влияние на конструкцию оказывают многие важные факторы. Невозможно создать единый универсальный калориметр, который был бы применим ко всем задачам измерений. В этом разделе приводятся некоторые факторы, оказывающие влияние на конструкцию калориметра:

а) *Размер образца*. Физический размер образца предопределяет размеры камеры для образца. Плотный тепловой контакт образца с калориметром существенен для минимизации времени анализа. Диаметры камер для образца существующих калориметров находятся в диапазоне от 1 до 30 см.

б) *Тепловая мощность образца*. В общем случае для образцов высокой мощности требуются низкочувствительные калориметры с низким тепловым сопротивлением, а для образцов малой мощности — высокочувствительные микрокалориметры с высоким тепловым сопротивлением.

в) *Градуировка*. Конструкция калориметра зависит от метода градуировки, т.е. используются ли для этого радиоизотопные или электрические образцовые источники теплоты.

г) *Конструкционные материалы*. Теплоемкость и теплопроводность материалов, используемых в конструкции калориметра, оказывают влияние на рабочие характеристики прибора.

д) *Производительность*. Требуемое для анализа время оказывает влияние на выбор типа калориметра, метода работы с ним и определяет необходимое количество калориметров.

е) *Точность*. При выборе типа калориметра и метода работы желаемая точность анализа должна сопоставляться с требуемой производительностью и имеющейся производственной площадью.

ж) *Условия использования*. На конструкцию калориметра оказывает влияние рабочая окружающая среда и имеющаяся площадь для размещения калориметра. В заводских условиях непрерывного производства требуются конструкции, отличающиеся от конструкций для работы в лабораторных условиях.

22.2 НЕБОЛЬШИЕ КАЛОРИМЕТРЫ ДЛЯ АНАЛИЗА В ЛАБОРАТОРНЫХ УСЛОВИЯХ

Небольшие калориметры могут использоваться в лабораториях аналитической химии для выполнения неразрушающего анализа небольших образцов плутония. Они могут использоваться для определения эффективной удельной мощности экспериментальным методом, при котором небольшие образцы плутония

анализируются неразрушающим калориметрическим методом, а затем разрушающими химическими методами. Кроме того, небольшие калориметры являются средством оценки погрешностей пробоотбора.

22.2.1 Маундский аналитический калориметр

Аналитический калориметр Маундской лаборатории был разработан специально для использования в лаборатории аналитической химии [1]. Этот компактный прибор (рис. 22.1) предназначен для измерения образцов объемом до 5 см^3 (около 10 г плутония). Калориметр включает в себя автоматический загрузчик образцов с положением для подготовки к достижению теплового равновесия и предназначен для установки внутри стандартного 90-сантиметрового перчаточного бокса. Для образцов, выделяющих мощность 10 мВт, погрешность и сходимость результатов измерения лучше, чем 0,1 %. Данные о рабочих характеристиках аналитического калориметра приведены в табл. 22.1 [1, 2]. Значения погрешности и сходимости в граммах приведены для плутония низкого выгорания с эффективной удельной мощностью 2,3 мВт/г и хорошо известным изотопным составом.

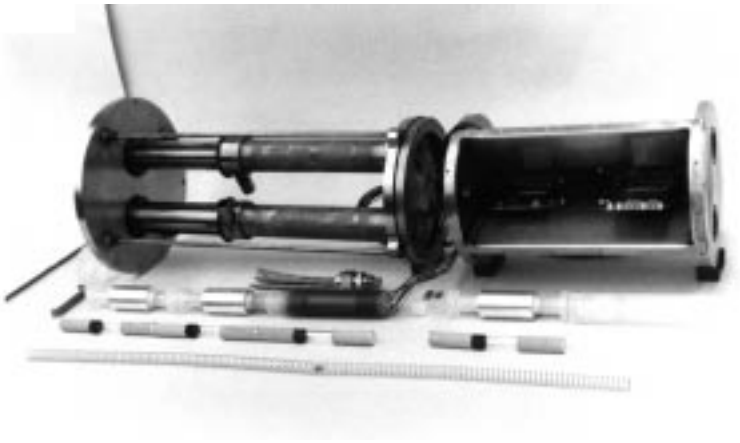

Рис. 22.1. *Внешний вид разобранного Маундского аналитического калориметра для анализа небольших образцов плутония в стеклянных ампулах весом 2 г. (Фотография предоставлена Маундской лабораторией)*

Таблица 22.1 – Рабочие характеристики Маундского аналитического калориметра для образцов с удельной мощностью 2,3 мВт/г и известным изотопным составом [1, 2]

Погрешность, г	0,008
Сходимость, г	0,008
Диапазон измерений	
масса, г	0,4–10
тепловая мощность, мВт	1–23
Чувствительность измерения в контейнере объемом 5 см^3	
масса, г	0,4
тепловая мощность, мВт	1
Время анализа, мин	30–100

В аналитическом калориметре измерялось большое разнообразие содержащих плутоний материалов, включая металлы, оксиды и смеси оксидов. Затем они были растворены и проанализированы на содержание плутония. Сравнение полученных результатов показало, что калориметрический анализ является точным и обеспечивает хорошую сходимость результатов.

22.2.2 Аргоннский калориметр для небольших образцов

Аргоннский калориметр для небольших образцов предназначен для анализа образцов смешанного оксидного топлива объемом до 6 см^3 в форме таблеток, порошков и растворов [3, 4]. Его максимальная мощность составляет 45 мВт, что эквивалентно 20 г плутония низкого выгорания. Уникальной особенностью этой системы является ее портативность, полезная для проведения инспекций на объектах. На рис. 22.2 показаны два модуля, из которых состоит система: изотермический калориметр и модуль сбора данных. Общий вес прибора составляет 18 кг.

Рис. 22.2. *Аргоннский калориметр для небольших образцов (справа) и его система сбора данных (слева). (Фотография предоставлена Аргоннской национальной лабораторией)*

Калориметр для небольших образцов является изотермическим градиентным мостовым калориметром. Он представляет собой "сухой" калориметр или калориметр с "воздушной камерой", в котором отсутствует теплоотводящая водяная ванна, как описано в разделе 21.5.4 и показано на рис. 21.7 главы 21. Для получения хорошей точности эта конструкция требует работы прибора в режиме сервоконтроля постоянной температуры. Сведения о рабочих характеристиках калориметра для небольших образцов приведены в табл. 22.2 [4-6]. Сходимость результатов измерений калориметром составляет около 0,1 % при времени измерения

20 мин [4]. Малое время проведения анализа и хорошая сходимость результатов частично обусловлены двойным капсулирование м образцов в металлические контейнеры с целью обеспечения максимальной теплопередачи.

Таблица 22.2 – Рабочие характеристики Аргоннского калориметра для небольших образцов с предполагаемой мощностью 2,3 мВт/г и известным изотопным составом [4-6]

Погрешность, г	0,01
Сходимость, г	0,01
Диапазон измерений	
масса, г	1–20
тепловая мощность, мВт	2–45
Чувствительность измерения, г	1
Время анализа, мин	20

Модуль сбора данных автоматически выполняет электрическую градуировку в выбранном входном диапазоне. Она выполняется с помощью микропроцессора, рассчитывающего опорное напряжение, которое должно быть подано на витки градуировочного резистора. Эта электрическая градуировка заменяет набор плутониевых стандартных образцов во всем измерительном диапазоне [4].

Независимая проверка и оценка калориметра [5] показали его нечувствительность к действиям оператора и влиянию окружающей среды. Однако рекомендовано проводить предварительный нагрев капсул с образцами, чтобы избежать дрейфа базового уровня эталонной мощности. Градуировка калориметра проводилась с помощью плутониевых образцовых источников теплоты, а для проверки градуировки было рекомендовано использовать электрически подогреваемую капсулу.

22.3 ПЕРЕДВИЖНЫЕ КАЛОРИМЕТРЫ

Для использования на различных объектах ядерного топливного цикла во время проведения периодических проверок, подтверждающих инвентарные количества материалов (физических инвентаризаций), было разработано несколько калориметров в передвижном варианте. Такая портативность обеспечивает инспектору возможность независимо проверять инвентарные количества материалов. Кроме того, для определения изотопного состава плутония используется гамма-спектрометр, в результате чего можно преобразовать измеренную калориметром тепловую мощность в массу плутония.

22.3.1 Маундский передвижной калориметр

Маундский передвижной калориметр был разработан для использования инспекторами Министерства энергетики [1, 7]. По своей конструкции он аналогичен большему по размерам прибору, предназначенному для работы в заводских условиях, описанному далее в разделе 22.4.1, за исключением того, что ванна постоянной температуры заменена теплообменником, насосом и небольшим резер-

вуаром с регулируемой температурой. Вода из небольшой ванны прокачивается через теплообменник для поддержания калориметра при постоянной температуре. Эти изменения существенно сокращают габариты и вес системы. Данный калориметр относится к типу мостовых калориметров с верхней и нижней камерами [1].

На рис. 22.3 показаны небольшой водяной резервуар, блок электроники и корпус калориметра, установленные на алюминиевой тележке. Так как общий вес системы составляет всего 200 кг, то эту установку может передвигать один человек. Камера может вмещать образцы до 13 см в диаметре и высотой до 20 см при мощности образцов в диапазоне от 0,5 до 10 Вт. Система сбора данных считывает потенциал моста, контролирует температуру воды в резервуаре с точностью 0,001 °С и использует метод прогнозирования конечной точки для сокращения времени анализа [7].

Рис. 22.3. *Передвижная Маундская калориметрическая система с контроллером температуры ванны (вверху слева), блоком электроники и системой сбора данных (внизу слева) и мостовым калориметром с верхней/нижней камерами (справа). (Фотография предоставлена Маундской лабораторией)*

В полевых условиях после распаковки требуется около 4 ч для доведения водяного резервуара до контролируемой температуры и охлаждения внутреннего германиевого детектора гамма-излучения. Во время работы для каждого измерения тепловой мощности образца калориметром и гамма-спектрометрического анализа

требуется около 4 ч. Работающий в режиме реального времени компьютер используется для получения изотопного состава на основе анализа гамма-спектра и для расчета эффективной удельной тепловой мощности. Неопределенности результатов измерения составляют около 0,3 % для определения мощности, включая погрешности измерения, градуировки и управления нагревателем, и 1-2 % при определении удельной мощности по гамма-излучению [6]. Сведения о рабочих характеристиках передвижного калориметра приведены в табл. 22.3 [7].

Таблица 22.3 – Рабочие характеристики Маундского передвижного калориметра при предполагаемой мощности образца 2,3 мВт/г и известном изотопном составе [7]

Погрешность, %	0,3
Сходимость, %	0,1
Диапазон измерений	
масса, кг	0,2–4,4
тепловая мощность, Вт	0,5–10
Время анализа, ч	4

22.3.2 Аргоннский калориметр для анализа материалов в балк-форме

Аргоннский калориметр для анализа материалов в балк-форме (рис. 22.4) был разработан для использования инспекторами МАГАТЭ [6, 8]. Он предназначен для измерения герметизированных контейнеров, содержащих до 3 кг плутония высокого выгорания в форме металла, порошка или скрапа. Этот изотермический градиентный воздушный калориметр (см. раздел 21.5.4 главы 21) работает в режиме сервоконтроля (см. раздел 21.6.3 главы 21). Он состоит из пяти вложенных друг в друга цилиндров с сервоконтролем температуры, отделенных один от другого теплопроводящим эпоксидным компаундом. Эта система включает в себя нагреватели для предварительного нагрева образцов и полностью управляется микропроцессором. Камера для образца может вмещать контейнеры диаметром 11 см и высотой 33 см.

Сведения о рабочих характеристиках [6, 8–10] калориметра для анализа материалов в балк-форме приведены в табл. 22.4. В одном эксперименте проводился анализ ТВЭЛов длиной 18 см из смеси оксидов при различном количестве ТВЭЛов и их различном расположении [6]. Геометрическое размещение не оказывает влияния на результаты анализа, а отклик на грамм материала был постоянным в пределах 0,1 % при изменении количества стержней. Такой результат отличается от ситуации при других методах анализах, в которых самопоглощение гамма-излучения или размножение нейтронов в образце могут привести к нелинейным эффектам.

Полевые испытания калориметра для анализа материалов в балк-форме проводились на заводе по изготовлению смешанного оксидного топлива в Бельгии [9]. Были проанализированы пять банок с оксидом плутония со средней погрешностью 0,2 % (1 σ). Большинство банок с плутонием на объекте имели диаметр более 11 см и поэтому не могли быть проанализированы при этих испытаниях. Не-

Рис. 22.4. *Аргоннский калориметр для анализа материалов в балк-форме (в центре) с системой сбора данных (слева), блоком питания схемы управления (справа), камерами предварительного нагрева образцов и калориметрическими контейнерами (на переднем плане). (Фотография предоставлена Аргоннской национальной лабораторией)*

давняя оценка этого калориметра для анализа материалов в балк-форме на трех объектах Агентства по атомной энергии Великобритании включала в себя измерения более 70 стандартных образцов, содержащих плутоний в виде оксида, металла, топливных таблеток или смешанных оксидов [10]. Используя значение измеренной мощности и сведения об изотопном составе образца, полученные с помощью гамма-спектрометрии, можно видеть, что отношение измеренной массы плутония к заявленной массе плутония обычно отличалось от 1 на 0,3 %. Считается, что отсутствие водяной рубашки охлаждения полезно при проведении таких полевых испытаний.

Таблица 22.4 – Рабочие характеристики Аргоннского калориметра для анализа материалов в балк-форме [6, 8–10]

Погрешность, %	0,1–0,9
Сходимость, %	0,1–0,7
Диапазон измерений	
масса плутония, кг	до 10
тепловая мощность, Вт	1,4–26
Время анализа с прогнозированием конечной точки, ч	4

22.4 КАЛОРИМЕТРЫ ДЛЯ РАБОТЫ В ЗАВОДСКИХ УСЛОВИЯХ

22.4.1 Маундский серийный двухэлементный мостовой калориметр

Серийный двухэлементный мостовой калориметр (рис. 22.5) предназначен для анализа плутония в форме металла, оксида, скрапа и отходов высокой плотности [10]. Он создан для использования в заводских условиях. Камера для образца и эталонная камера находятся в водяной ванне с контролем постоянной температуры и имеют примерно 12 см в диаметре для размещения в них стандартных банок, в которые упакованы плутониевые материалы. По этому же проекту изготавливают калориметры, способные размещать банки с отходами и скрапом объёмом до 3,8 л. Прибор, показанный на рис. 22.5, представляет собой два двухэлементных мостовых калориметра, помещенных в общую водяную ванну.

Каждый из двухэлементных мостовых калориметров может иметь сервоконтроллер для поддержания постоянной температуры, камеру для образца с возможностью достижения предварительного равновесия или средства использования методов прогнозирования конечной точки. Эти отличительные особенности могут сократить время анализа и повысить производительность прибора. Все электрические измерения выполняются с помощью мостовых схем или цифровых вольтметров и передаются непосредственно в компьютерную систему сбора данных. Эталонные резисторы и источники напряжения соответствуют требованиям Национального бюро стандартов и используются для обеспечения точных

Рис. 22.5. *Маундский серийный двухэлементный мостовой калориметр. Водяная ванна (слева) содержит два двухэлементных мостовых калориметра. (Фотография предоставлена Маундской лабораторией)*

измерений. Для градуировки применяются образцовые источники теплоты на основе плутония-238.

На плутониевом производстве в Лос-Аламосе для анализа плутониевых полуфабрикатов и изделий используются два двухэлементных мостовых калориметра модели 102 с общей водяной ванной [12], аналогичных установке, показанной на рис. 22.5. В целях экономии площади, камеры для образца с достижением предварительного равновесия не применяют. Все анализы выполняются без прогнозирования конечной точки в течение 8 ч. Программа контроля измерений требует еженедельного проведения измерения стандартного образца весом 400, либо 870 г. Анализ результатов контроля измерений за год показывает, что сходимость результатов определения мощности составляет около 0,1 %, а смещение — около 0,1 %. Для больших образцов эффективная удельная мощность определяется с помощью гамма-спектрометрии со сходимостью результатов около 0,4-0,5 % (1 σ) при времени измерения 1,5-2 ч. При этом общая сходимость определения массы плутония для больших однородных образцов составляет 0,5-0,7 % (1 σ) (частная информация от Р. Бланкеншипа и Ф.Сью, ЛАНЛ). Сведения о рабочих характеристиках двухэлементного мостового калориметра приведены в табл. 22.5 [11, 12]. Аналогичные сведения о рабочих характеристиках были представлены для плутония высокого выгорания с эффективной удельной тепловой мощностью около 14,5 мВт/г [13].

Таблица 22.5 – Рабочие характеристики Маундского серийного двухэлементного мостового калориметра при предполагаемой мощности 2,3 мВт/г и известном изотопном составе ([11, 12] и частная информация от Р. Бланкеншипа и Ф.Сью, ЛАНЛ)

Погрешность, %	0,1–0,2
Сходимость, %	0,1–0,2
Диапазон измерений	
масса, кг	0,1–2,5
тепловая мощность, мВт	0,23-5,8
Время анализа, ч	8

Для сравнения и повышения производительности на производстве Лос-Аламоса также используются четыре мостовых калориметра с верхней/нижней камерами, по внешнему виду похожие на калориметры, описанные ниже в разделе 22.4.4. Два из них имеют камеры для образца диаметром 12,4 см, а два других — камеры для образца диаметром 17,8 см. Для сокращения времени анализа калориметры работают с использованием метода прогнозирования конечной точки. Типичное время анализа образцов, содержащих 2-3 кг плутония, составляет немногим более 3 ч. Небольшие или плохо упакованные образцы могут потребовать для анализа до 8 ч, при этом 100 г плутония являются нижним рабочим пределом, позволяющим избежать увеличения времени анализа. Результаты контроля измерений за год показывают, что эти более быстро работающие калориметры имеют сходимость результатов измерений около 0,2 % по сравнению со сходимостью 0,1 % для двухэлементного мостового калориметра.

22.4.2 Маундский калориметр для совместных измерений изотопов

Калориметрический анализ в заводских условиях требует как измерения тепловой мощности образца с помощью калориметра, так и определения (для расчетного метода) эффективной удельной тепловой мощности образца с помощью масс-спектрометрических или гамма-спектрометрических измерений изотопного состава. Наиболее общий подход для серии образцов предполагает последовательные измерения изотопного состава плутония с помощью гамма-спектрометра высокого разрешения, за которыми следует калориметрический анализ. Измерения изотопного состава и калориметрические измерения могут также осуществляться одновременно.

На рис. 22.6 показан пример системы совместных измерений [14]. Данный калориметр относится к Маундским передвижным мостовым калориметрам с верхней/нижней камерами (см. рис. 21.5 главы 21) и содержит три слоя воды (всего 3,1 см), три слоя оргстекла (всего 2,1 см), 1 см эпоксидной смолы, 0,6 см алюминия и 0,1 см нержавеющей стали между образцом и детектором гамма-излучения. Пропускание гамма-квантов с энергией от 100 до 400 кэВ через стенки калориметра составляет примерно 20-40 %. Так как в этой конструкции используется оргстекло при минимуме стали и алюминия, то в действительности коэффициент пропускания излучения через калориметр выше, чем коэффициент пропускания через гамма-фильтр на поверхности детектора гамма-излучения.

Рис. 22.6. *Маундская система для одновременного калориметрического измерения мощности и гамма-спектрометрического определения изотопного состава. Сбоку виден германиевый детектор, при измерении размещаемый напротив корпуса калориметра. (Фотография предоставлена Маундской лабораторией)*

Типичное время анализа с применением методов прогнозирования конечной точки составляет 5 ч, неопределенность результатов калориметрического измерения мощности — 0,3 % [14]. Данные по изотопным гамма-измерениям накапливаются за тот же период времени, в течение которого проводится измерение тепловой мощности. Полная неопределенность анализа составляла 1 % или менее. Сведения о рабочих характеристиках приведены в табл. 22.6.

Как калориметр, так и многоканальный анализатор гамма-спектрометра управляются микропроцессором, а данные анализа обрабатываются компьютером. Система выполнена таким образом, что данные от одного образца могут анализироваться, когда выполняется измерение другого образца. Однако при совместном измерении имеет место некоторая потеря точности измерений, т.к. образец не может быть размещен непосредственно напротив гамма-детектора. Последовательные измерения обычно предпочтительнее, чем совместные, если нет других более серьезных ограничений.

Таблица 22.6 – Рабочие характеристики Маундского калориметра для совместных измерений изотопов при предполагаемой мощности 2,3 мВт/г [14]

Суммарная погрешность, %	1,0
Погрешность определения мощности, %	0,3
Диапазон измерений	
масса, кг	0,2–4,4
тепловая мощность, Вт	0,5–10
Время анализа с прогнозированием конечной точки, ч	5

22.4.3 Серийные калориметры завода Рокки Флэтс

На заводе Рокки Флэтс были разработаны многокамерные калориметры для анализа оксидов и скрапа плутония низкого выгорания [15]. Эти калориметры относятся к типу двухэлементных мостовых калориметров с воздушным зазором между внутренней камерой для образца и внешней водяной ванной, предназначенным для поддержания теплового равновесия между ними. Банки с оксидом плутония, содержащие приблизительно 1400 г, загружаются в медные держатели, которые размещаются в измерительных камерах. Для изоляции над и под образцом помещаются заглушки из стирофома. Выходная тепловая мощность каждой банки составляет примерно 3 Вт. Непосредственно после разделения америция от плутония 78 % выходной мощности создаются ^{239}Pu, 18 % — ^{240}Pu, а остальная часть мощности — ^{238}Pu и ^{241}Pu. Погрешность калориметрического анализа мощности образца составляет примерно 0,2 %.

Для управления производственной загрузкой образцов, требующих проведения анализа, в наличии имеются три восьмиблочных калориметра [16]. Каждый из них содержит восемь камер, размещенных по кругу в общей водяной ванне. Семь камер используются для анализа образцов, а одна является общей эталонной камерой.

Для новой установки по переработке плутония в Рокки Флэтс Маундской лабораторией была создана серия производственных калориметров и установлена под перчаточными боксами в зоне приема/передачи [17]. Двадцать камер сое-

динены в четыре блока по пять камер в каждом, причем каждый блок имеет свою собственную водяную ванну. В каждом блоке одна из камер служит в качестве общей эталонной камеры для четырех других камер для образца. Каждая камера для образца может достигать состояния равновесия примерно за 10 ч при тепловой мощности образца 4 Вт. Общая воспроизводимость измерений для всех камер составляет около 0,7 %.

Большие размеры контейнеров, длительное время достижения равновесия или плохо известный изотопный состав образца отрицательно влияют на калориметрический анализ скрапа и отходов плутония, встречающихся в технологическом процессе. Крайний случай имел место при анализе неочищенных солевых остатков, содержащих плутоний и до 10 % америция. В таких остатках америций может давать от 50 до 80 % всей тепловой мощности. Поэтому для определения содержания плутония необходимо тщательное гамма-измерение отношения америция к плутонию в неоднородных материалах, содержащих большие куски плутония со значительным эффектом самоослабления. Эти измерения включают в себя измерение изотопного состава при вращении и сканировании образца по спирали, и определение поправочного коэффициента на самопоглощение гамма-излучения для америция и плутония [8]. Удельная мощность определяется со сходимостью около 1 %, а мощность образца — со сходимостью около 0,2 % (1 σ). Хотя это еще не обосновано, но суммарная погрешность анализа лучше, чем получаемая при пассивном гамма- или нейтронном анализе, и приводит к меньшему искажению инвентаризационной разности [18].

22.4.4 Маундские градиентные мостовые калориметры

Для установки по переработке плутониевого скрапа на заводе в Саванна-Ривер были поставлены четыре компактных градиентных мостовых калориметра Маундской лаборатории [19]. Они установлены в помещении для анализа образцов и применяются для получения информации о массе поступающего металлического плутония и отправляемого оксида плутония, которая является учетной и обрабатывается компьютером. Четыре калориметра (рис. 22.7) связаны теплоизолированными водяными шлангами с четырьмя отдельными водяными резервуарами с контролируемой температурой. Два калориметра имеют следующие внешние габариты: диаметр 31 и высоту 97 см и вмещают стандартные банки диаметром 12,4 см. Другие два калориметра имеют диаметр 29 и высоту 93 см и вмещают банки диаметром до 11,0 см, благодаря чему меньшие образцы могут быть проанализированы с более короткими временами достижения равновесия.

Конструкция каждого калориметра [20] аналогична градиентной мостовой конструкции, показанной на рис. 21.6 и описываемой в разделе 21.5.4 главы 21. Тепловые заглушки сверху и снизу камеры для образца изготовлены из стирофома. Вес образца передается на пол через центральную опору, поэтому на точность считывания потенциала моста не влияет деформация витков. Образец помещается в специальную банку из нержавеющей стали с кольцевым уплотнением, которая жестко фиксируется в камере для образца. Насколько возможно, воздушные зазоры между образцом и внутренней стенкой этой "калориметрической банки" заполняются алюминиевой дробью для уменьшения времени анализа, а воздушные зазоры над образцом для предотвращения циркуляции воздуха заполняются смятой алюминиевой фольгой. Время, необходимое для достижения равновесия, зависит от диаметра образца, упаковки и ширины любого из воздушных зазоров.

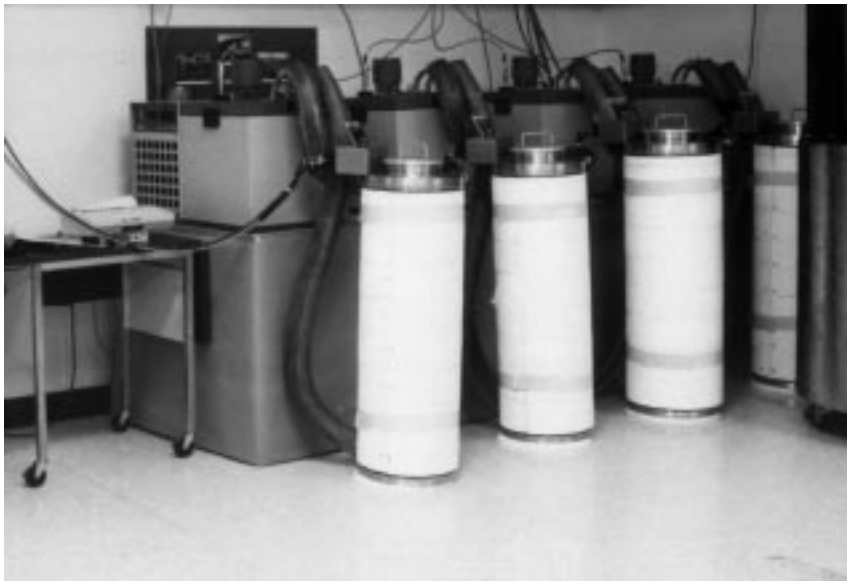

Рис. 22.7. *Комплект из четырех Маундских градиентных мостовых калориметров. Два калориметра имеют камеры для образцов диаметром 11 см, а два другие — камеры для образцов диаметром 12,4 см.*

Четыре калориметра работают в режиме сервоконтроля постоянной температуры [20]. Температура водяной ванны контролируется с точностью 0,001 °С и проверяется через каждые 2 мин. Температура воды выбирается так, чтобы соотношение между температурами нагревания и охлаждения составляло около 1,1. В каждом резервуаре используется приблизительно одна чашка дистиллированной воды за неделю. Блок электроники содержит пять управляемых компьютером цифровых вольтметров, по одному на каждый выход мостовой схемы и один — для наблюдения за температурой помещения. Каждая обмотка нагревателя подключена как резистор с четырьмя выводами, поэтому напряжение на витках может быть определено без погрешностей, обусловленных потерями мощности в проводах.

Для установления уровня мощности пустой камеры работа каждого калориметра требует периодических измерений базового уровня мощности [20], которые обычно занимают 2-2,5 ч, что меньше, чем при анализе образца. Базовый уровень мощности (около 15 Вт) устанавливается по крайней мере на 3 Вт больше, чем оцененная мощность реальных образцов или градуировочных источников. Калориметры снабжены небольшими образцовыми источниками теплоты $^{238}PuO_2$, установленными в специальные банки. Эти источники периодически измеряются с целью контроля рабочих характеристик прибора. Работа калориметра может быть нарушена, если калориметр подвергался механическим ударам, если его крышка была сдвинута во время проведения анализа, если происходят колебания температуры и влажности помещения, температуры ванны или напряжения источника питания. Для плутониевого скрапа время анализа может изменяться в широких пределах в зависимости от состава образца, его упаковки, размера и мощности. Для типичного диапазона тепловой мощности от 2 до 12 Вт погреш-

ность калориметрического измерения составляет 0,2 % [21]. Рабочие характеристики градиентных мостовых калориметров сведены в табл. 22.7.

Таблица 22.7 – Рабочие характеристики Маундских градиентных мостовых калориметров [10, 21]

Погрешность при мощности 2 Вт, %	0,5
Сходимость, %	0,1
Диапазон измерений	
масса, кг	0,5–5
тепловая мощность, Вт	2–12
Время анализа	
для продукта, ч	4
для скрапа, ч	8–16

22.5 КАЛОРИМЕТРЫ ДЛЯ ТОПЛИВНЫХ СТЕРЖНЕЙ

22.5.1 Аргоннский калориметр для топливных стержней

Аргоннский калориметр для топливных стержней длиной 1 м предназначен для неразрушающего анализа содержания плутония в необлученных топливных стержнях из смешанного оксидного топлива [22]. Прототипом этого прибора является Аргоннский калориметр более ранней разработки, используемый для калориметрического анализа топливных стержней длиной 15 см [23]. Был также создан калориметр для топливных стержней длиной 4 м [24]. Измерения на этих приборах относительно непродолжительны вследствие небольшого диаметра камеры для образца, и поэтому эти калориметры называются калориметрами с "быстрым откликом".

Эта система калориметрического анализа содержит следующие компоненты (рис. 22.8) [25, 26]:

1. *Корпус калориметра.* Калориметр для топливных стержней длиной 1 м представляет собой изотермический градиентный воздушный калориметр (см. раздел 21.5.4 главы 21), который работает в режиме сервоконтроля (см. раздел 21.6.3). Калориметр имеет три области регулируемой температуры: камера для образца диаметром 1 см, окружающая тепловая защита и схема нагрева, а также остальной объем корпуса. Температура в этих трех областях контролируется на уровне 33, 32 и 30 °С, соответственно.
2. *Нагреватель предварительного нагрева.* Нагреватель предварительного нагрева связан с корпусом калориметра и служит для нагрева стержней до их введения в измерительную камеру. Он сокращает время анализа и снабжен дополнительным пространством для размещения стержней длиной свыше 1 м.
3. *Пульт управления.* Пульт управления содержит схемы сервоконтроля, органы управления датчиком температуры и другие органы управления электрическими измерениями.
4. *Компьютер.* Сбор данных, анализ и вывод результатов измерений управляются небольшим портативным компьютером.

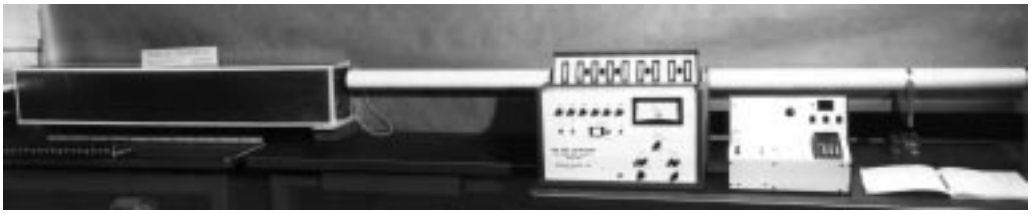

Рис. 22.8. *Аргоннская калориметрическая система для топливных стержней (модель 4 для топливных стержней длиной 1 м), содержащая калориметр (слева), нагреватель предварительного нагрева (длинный белый цилиндр) и блок электроники. (Фотография предоставлена Аргоннской национальной лабораторией)*

Эффективная длина топливных стержней, которая допустима для этого прибора, составляет 98 см. Более длинные топливные стержни должны анализироваться сегментами длиной по 1 м. Вдоль оси калориметра отклик на источники теплоты не линеен. Поэтому должна вводиться поправка на длину стержня и его положение [22]. Кроме того, при определении базового уровня мощности необходимо вставлять в камеру пустой топливный стержень для имитации потерь тепла на концах. Работа калориметра может контролироваться внутренней электрической градуировкой или градуировкой с использованием электрически нагреваемых резистивных стержней.

Полевые испытания и оценка калориметра для топливных стержней проводились на нескольких установках в Бельгии при сотрудничестве с МАГАТЭ [27 и 28]. На одной из установок производились измерения топливных стержней четырех различных геометрий, содержащих плутоний в количестве от 3,6 до 28,5 г, которые имели три различных изотопных состава. Все 12 топливных стержней предварительно нагревались, а затем производилось измерение в течение 1 ч, при этом каждому измерению предшествовало измерение базового уровня мощности в течение 1 ч. Сходимость результатов измерений составила 1 мВт в диапазоне от 10 до 135 мВт. Для стержней с мощностью более 50 мВт наблюдаемая точность составила порядка 3 % (1 σ) или меньше, что находилось в переделах погрешности измерений и неопределенности определения действительной массы плутония [27].

Измерения еще для двух партий из 6 и 11 топливных стержней из смешанного оксидного топлива проводились на двух других бельгийских установках. Некоторые из топливных стержней имели длину 2,5 м; неактивная часть таких стержней находилась внутри нагревателя предварительного нагрева. Для всех типов топливных стержней, для которых разрабатывался калориметр, калориметр работал хорошо и сходимость результатов измерений составила около 0,4 %. Для стержней с низким выходом тепловой мощности результаты измерений оказались недостоверными. Использование калориметра для топливных стержней длиной 1 м для стержней с выходной мощностью меньше 40 мВт не рекомендуется, так как выходная мощность составляла бы менее 5 % от базового уровня мощности [28]. Сведения о рабочих характеристиках Аргоннского калориметра для топливных стержней длиной 1 м приведены в табл. 22.8.

Таблица 22.8 – Рабочие характеристики Аргоннского калориметра для топливных стержней длиной 1 м при предполагаемой удельной мощности 5 мВт/г и известном изотопном составе [27 и 28]

Погрешность, %	1-3
Сходимость	
относительная, %	0,4
абсолютная	
масса, г	0,2
тепловая мощность, мВт	1
Диапазон измерений	
масса плутония, г	8–160
тепловая мощность, мВт	40–800
Время анализа, мин	15–120

22.5.2 Калориметр фирмы "Дженерал Электрик" для облученных топливных сборок

Установка фирмы "Дженерал Электрик" для хранения облученного топлива недалеко от г.Моррис, штат Иллинойс, оснащена бассейновым калориметром для подводных измерений теплоты, вырабатываемой облученными топливными сборками [29]. Калориметр по габаритам и форме идентичен калориметру с выкипающей водой, разработанному ранее Тихоокеанской северозападной лабораторией для надводных измерений в горячих камерах [30]. Калориметр фирмы "Дженерал Электрик" работает в незагруженной нише бассейнового хранилища топлива на глубине около 12 м. Хотя калориметр разрабатывался для получения информации о генерации теплоты при планировании будущих потребностей по хранению облученного топлива, он также способен обеспечить корреляционную зависимость измеренной теплоты с глубиной выгорания топлива.

Длина бассейнового калориметра (рис. 22.9) составляет 4,6 м и он состоит из двух концентрических стальных труб [29]. Внутренняя труба диаметром 41 см образует камеру для образца, в которой могут быть установлены вставки для поддержания топливных сборок реактора на кипящей воде, либо топливных сборок реактора с водой под давлением. Для снижения теплопередачи из калориметра в воду бассейна кольцевой зазор между двумя трубками содержит пенополиуретановую изоляцию толщиной 6 см. Измерения температуры внутри камеры для образца и вне калориметра осуществляются с помощью платиновых резистивных датчиков температуры. Рециркуляционный насос поддерживает однородность температуры воды внутри камеры для образца. Для измерения радиационных потерь и осевых профилей выгорания топливных сборок на калориметре установлены датчики гамма-излучения.

Калориметр обычно работает со средой, имеющей постоянную температуру. После загрузки топливных сборок в калориметр камера для образца закрывается с помощью водонепроницаемой крышки [29]. Подъем температуры воды калориметра контролируется в течение 5 ч. Температура воды вне калориметра обычно стабилизируется в пределах 0,2 °С, если обеспечивается циркуляция воды в бассейне. Скорость изменения температуры внутри калориметра (обычно 4 °С/ч)

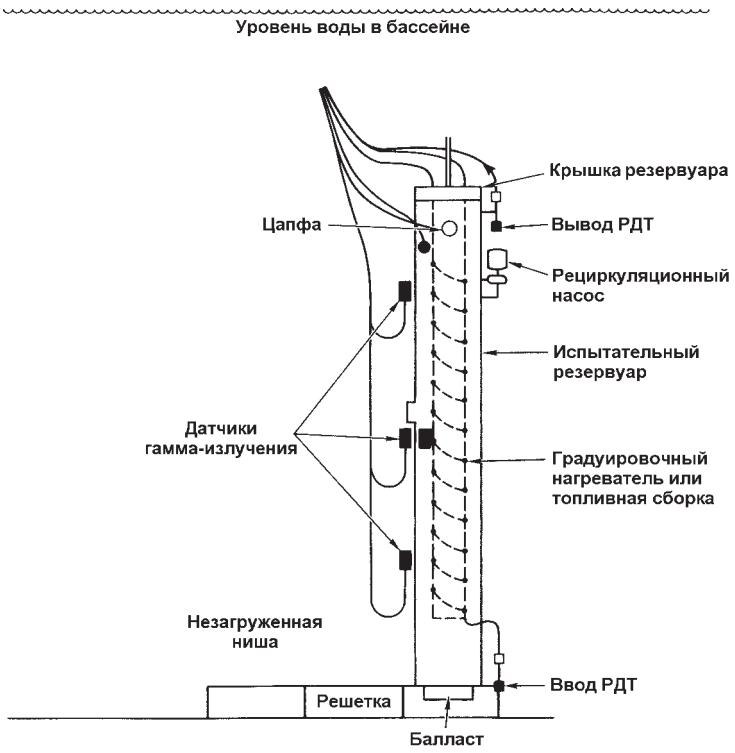

Рис. 22.9. *Бассейновый калориметр фирмы "Дженерал Электрик" в г.Моррис для измерения облученных топливных сборок в незаполненной нише бассейна хранилища топлива. (РТД — платиновый резистивный датчик температуры). (Рисунок предоставлен отделением фирмы "Дженерал Электрик" в г.Моррис)*

пропорциональна тепловой мощности топливной сборки. Калориметр градуируется с помощью четырехметровой трубы, обмотанной лентой электронагревателя. Все измерения корректируются на потери мощности в проводах нагревателя, изменения теплоемкости между используемым для градуировкой и реальным топливом, радиальные потери тепла.

В работе [29] сообщается о серии из 24 измерений для 14 топливных сборок реактора с водой под давлением с заявленным оператором выгоранием от 26 до 40 ГВт·сут/т урана и временами охлаждения от 4 до 8 лет. Бассейновый калориметр измерял тепловую мощность в диапазоне от 360 до 940 Вт со сходимостью 1 %. Измеренная мощность сравнивалась с рассчитанной по данным выгорания реакторного топлива. Разброс данных составляет от 15 % (если программы анализа предполагали непрерывный цикл облучения) до 1 % (если программы анализа использовали действительные данные истории облучения). Для сборок с одинаковым временем охлаждения измеренная мощность была пропорциональна выгоранию с погрешностью около 3 %.

ЛИТЕРАТУРА

1. C. Fellers, W. Rodenburg, J. Birden, M. Duff, and J. Wetzel, "Instrumentation Development for the Enhanced Utilization of Calorimetry for Nuclear Material As-

say," in Proc. American Nuclear Society Topical Conference on Measurement Technology for Safeguards and Materials Control, Kiawah Island, South Carolina, November 26-28, 1979, NBS Special Publication 582 (1980), p.192.

2. W. Rodenburg, "An Evaluation of the Use of Calorimetry for Shipper-Receiver Measurements of Plutonium," Mound Laboratory report MLM-2518, NUREG/CR-0014 (1978).

3. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, "ANL Small-Sample Calorimeter System Design and Operation," Argonne National Laboratory report ANL-NDA-1 (1978).

4. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, "A Portable Calorimeter System for Nondestructive Assay of Mixed-Oxide Fuels," American Chemical Society Symposium Series, No.79 (1978).

5. W. Rodenburg, "Test and Evaluation of an ANL Small-Sample Calorimeter," Mound Laboratory report MLM-2813 (1981).

6. C. Roche, R. Perry, R. Lewis, E. Jung, and J. Haumann, "Calorimetric Systems Designed for In-Field Nondestructive Assay of Plutonium-Bearing Materials", International Atomic Energy Agency/Argonne National Laboratory report IAEA-SM-231/78 (1978).

7. J. Lemming, W. Rodenburg, D. Rakel, M. Duff, and J. Jarvis, "A Field Test of a Transportable Calorimetric Assay System," *Nuclear Materials Management* IX (2), 109 (1980).

8. R. Perry, C. Roche, A. Harkness, G. Winslow, G. Youngdahl, R. Lewis, and E. Jung, "The Bulk Assay Calorimeter: Part 1. System Design and Operation, Part 2. Calibration and Testing," Argonne National Laboratory report ANL-NDA-9 (1982).

9. R. Perry and A. Keddar, "Field Test of the Bulk-Assay Calorimeter," Argonne National Laboratory report ANL-NDA-11 (1982).

10. G.M. Wells and F.J.G. Rogers, "Measurements of Plutonium Mass Using an Argonne Bulk Calorimeter," United Kingdom Atomic Energy Agency report NMACT (86) (1986), p.8.

11. F. O'Hara, J. Nutter, W. Rodenburg, and J. Haumann, "Calorimetry for Safeguard Purposes," Mound Laboratory report MLM-1798 (1972).

12. W. Rodenburg, "Some Examples of the Estimation of Error for Calorimetric Assay of Plutonium-Bearing Solids," Mound Laboratory report MLM-2407, NUREG-0229 (1977).

13. W. Strohm, W. Rodenburg, and R. Carchon, "Demonstration of Calorimetric Assay of Large Mass, High Burn-Up PuO_2 Samples," *Nuclear Materials Management* XIII (Proceedings Issue), 269 (1984).

14. D. Rakel, J. Wetzel, and T. Elmont, "A Field Test and Evaluation of the Simultaneous Calorimetric Assay System," in Proc. Twenty-Fifth Annual Meeting of the Institute of Nuclear Materials Management, Columbus, Ohio, July 1984.

15. F.L. Oetting, "Calorimetry at Dow Rocky Flats," in "Proceedings of the Symposium on Calorimetric Assay of Plutonium, October 1973," Mound Laboratory report MLM-2177 (1974), p.66.

16. R.B. White and F.L. Oetting, "An Eight-Unit Isothermal Calorimeter," USAEC RFP-1401, Rocky Flats (1969).

17. F. Haas, J. Gilmer, G. Goebel, J. Lawless, J. Pigg, D. Scott, and A. Tindall, "Implementation of NDA Instrumentation in the Rocky Flats Processing Facility," in *Proc. ANS/INMM Conference on Safeguards Technology: The Process Safeguards Interface*, Hilton Head Island, South Carolina, November 28-December 2, 1983 (1984), p.106.

18. J.G. Fleissner, "NDA of Plutonium in Isotopically Heterogeneous Salt Residues," in *Proc. ANS/INMM Conference on Safeguards Technology: The Process Safeguards Interface*, Hilton Head Island, South Carolina, November 28-December 2, 1983 (1984), p.275.

19. M.P. Baker, "An Integrated Nondestructive Assay System for a New Plutonium Scrap Recovery Facility," in *Proc. of the 7th Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Materials Management*, ESARDA, Liege, Belgium, May 21-23, 1985 (1985), pp.109-112.

20. J. Wetzel, "Calorimeter System Users Manual for the SRP/NSR Facility," Mound Laboratory informal report, May 1986.

21. M.F. Duff, J.R. Wetzel, and J.F. Lemming, "Calorimetry Design Considerations for Scrap Assay," *American Nuclear Society Transaction* 50, 170 (1985).

22. R.B. Perry et al., "One-Meter Fuel Rod Calorimeter Design and Operating Manual," Argonne National Laboratory report ANL-NDA-4 (1981).

23. N.S. Beyer, R.N. Lewis, and R.B. Perry, " Small Fast-Response Calorimeters Developed at Argonne National Laboratory for NDA of Plutonium Fuel Rods," in "Proceedings of the Symposium on Calorimetric Assay of Plutonium, October 1973," Mound Laboratory report MLM-2177 (1974).

24. S. Brumbach, A. Finkbeiner, R. Lewis, and R. Perry, "Design and Construction Effort for the Four-Meter Fuel Rod Calorimeter," in "Plutonium Calorimetry and SNM Holdup Measurements Progress Report," Argonne National Laboratory Report ANL-77-8 (1977).

25. N.S. Beyer, R.B. Perry, and R.N. Lewis, "Advances in Fuel Rod Calorimetry with the ANL FFTF Calorimeter," *Nuclear Materials Management* IV (3), 577 (1975).

26. N.S. Beyer, R.N. Lewis, and R.B. Perry, "Fast-Response Fuel Rod Calorimeter for 36 inch Fuel Columns," *Nuclear Materials Management* III, 118 (1974).

27. W. Rodenburg and A. Keddar, "Test and Evaluation of the One-Meter Fuel Rod Calorimeter at Mol, Belgium, June 1981," Mound Laboratory report MLM-3003 (1982).

28. R.B. Perry and A. Keddar, "Field Test of the One-Meter Fuel Rod Calorimeter," Argonn National Laboratory report ANL-NDA-10 (1982).

29. B. Judson, J. Doman, K. Eger, and Y. Lee, "In-Plant Test Measurements for Spent-Fuel Storage at Morris Operation," General Electric Company Report NEDG-24922-3 (1982).

30. J. Creer and J. Shupe, Jr., "Development of a Water Boil-Off Spent-Fuel Calorimeter System," Pacific Northwest Laboratory report PNL-3434 (1981).

Глава 23

Руководство по применению методов неразрушающего анализа

Н. Энсслин, Д. Райлли и Х. Смит, мл.
(Переводчик И. Н. Сазонов)

23.1 ВВЕДЕНИЕ

Эта глава представляет собой руководство по применению методов неразрушающего анализа (НРА) ядерных материалов и предназначена в помощь пользователю при подборе аппаратуры в соответствии с задачами контроля ядерных материалов. Рисунки и таблицы этой главы соответствуют большинству методик измерений, описанных в этой книге, кроме того, в этой главе также рассматриваются несколько важных активных методов. Дополнительная информация по активным методам НРА, используемых в Комиссии США по ядерному регулированию, приведена в руководстве Ц. Гозани "Активный неразрушающий анализ ядерных материалов" [1]. Детальное описание измерительных методов НРА приведено в книге Комиссии по ядерному регулированию "Руководство по методам измерений для обеспечения ядерных гарантий" под редакцией Д.Р. Роджерса [2].

На рис. 23.1 приведен перечень методик НРА, включая примеры некоторых наиболее часто используемых приборов, относящихся к каждой методике. Рисунок показывает многообразие методик, доступных для исследователя. На разных стадиях ядерного топливного цикла плутоний и уран присутствуют в различных формах и это часто затрудняет для пользователя выбор методики, подходящей для задач его измерений. Настоящее руководство предназначено помочь в решении этой проблемы путем обобщения принципиальных возможностей методик гамма- и нейтронного анализа (раздел 23.2) и предоставлением подробной таблицы для подбора подходящей аппаратуры НРА для заданных ядерных материалов (раздел 23.3).

В данном руководстве не рассматриваются измерения облученного топлива, мониторы для контроля периметра ядерных установок, качественные измерения и измерения отложений; этим вопросам посвящены главы 18, 19 и 20.

23.2 ВОЗМОЖНОСТИ НЕКОТОРЫХ ПАССИВНЫХ И АКТИВНЫХ МЕТОДИК НЕРАЗРУШАЮЩЕГО АНАЛИЗА

Гамма-излучение выделяется при радиоактивном распаде и несет энергетическую информацию, которая однозначно идентифицирует изотопы, присутствующие в образце. Эта информация обычно сохраняется в процессе детектирования. Принципиальной трудностью для гамма-методов анализа является введение точных поправок на ослабление в образце. Ослабление гамма-излучения увели-

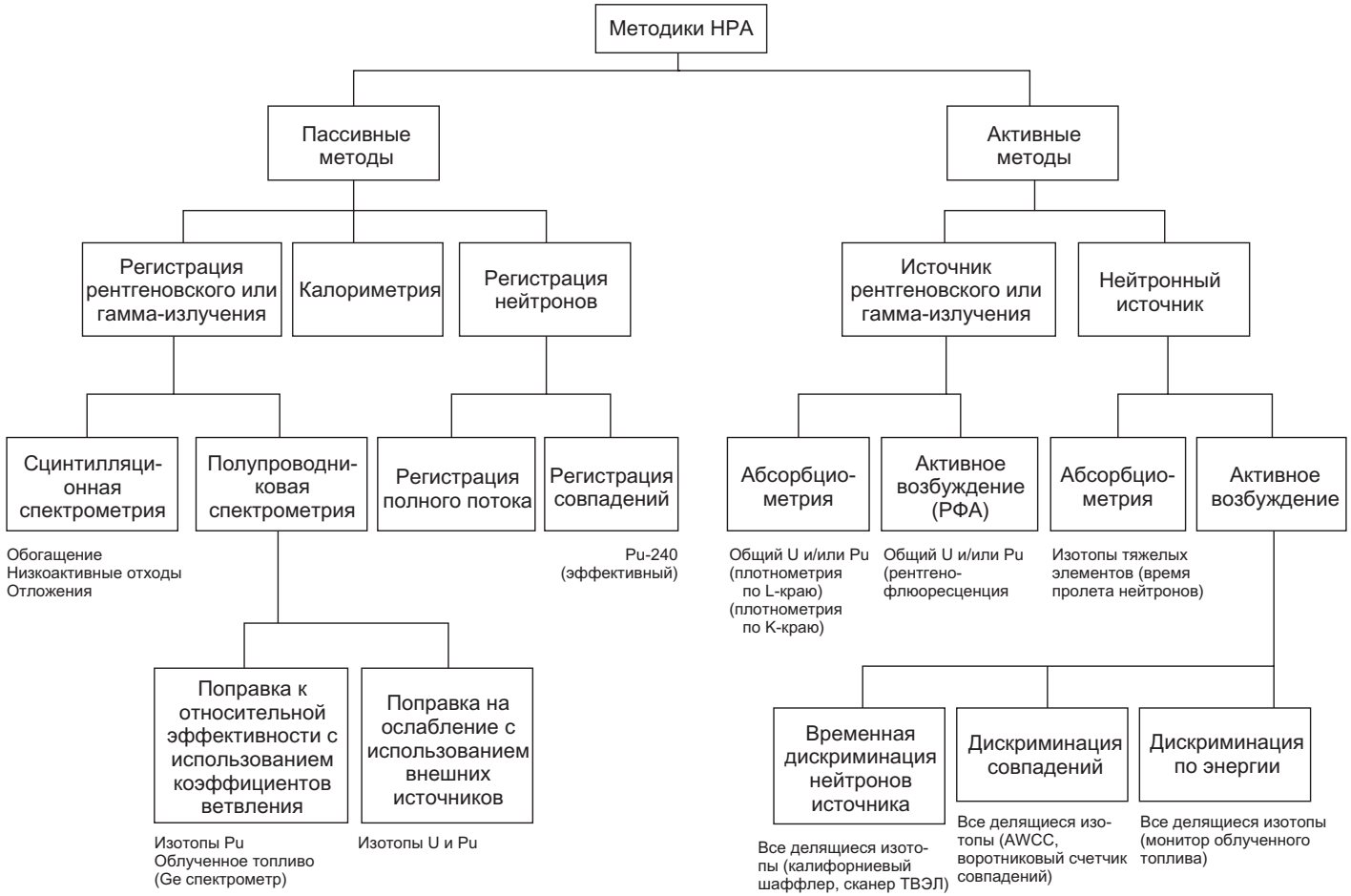

Рис.23.1. *Обзор пассивных и активных методик неразрушающего анализа, включая наименования некоторых широко применяемых приборов*

чивается с ростом атомного номера Z и плотности материала ρ, поэтому методики анализа по гамма-излучению лучше работают для материалов с низким атомным номером ($Z < 25$) и низкой плотностью ($\rho < 1$ г/см^3). Нейтроны несут ограниченную энергетическую информацию, но даже она обычно теряется при типичном процессе детектирования. Нейтронное излучение не предоставляет информации для идентификации разновидностей ядерных материалов, присутствующих в образце. С другой стороны, нейтроны легко проникают сквозь материалы с высоким атомным номером и большой плотностью (например, свинец и уран). Значительно больше трудностей возникает для материалов с низкими атомными номерами, особенно содержащих водород, таких как вода или полиэтилен. Таким образом, гамма- и нейтронные методы дополняют друг друга вследствие их различной чувствительности к плотности и типу материала. В основном пассивные методы хорошо работают с плутониевыми образцами, т.к. плутоний имеет высокую удельную активность (при альфа-распаде и спонтанном делении). Очень низкая удельная активность обоих видов распада урана часто заставляет использовать активные методики измерения.

Рисунки в этом разделе дают представление о точности, которая может быть достигнута при анализе одиночного образца с использованием основных методик НРА. Рис. 23.2 иллюстрирует "контролепригодность" различных форм материалов при использовании методик гамма-спектрометрии. Наиболее точно могут быть проанализированы гомогенные материалы с низкой плотностью, такие как газы, растворы и порошки. Для этих материалов предпочтительны методики на основе анализа гамма-излучения, т.к. наблюдаемые спектральные пики имеют уникальные характеристики, которые позволяют идентифицировать присутствующие изотопы ядерных материалов, а также количественно определять массу изотопа. Важно отметить, что гамма-спектрометрия обеспечивает четкую идентификацию разновидностей изотопов в образце даже в случаях, когда образец имеет высокую плотность или очень неоднороден, что затрудняет точное определение массы.

Для неоднородных или высокоплотных материалов, в которых ослабление гамма-излучения слишком велико для получения точных поправок, более предпочтительными могут быть нейтронные методы анализа. Рис. 23.3 иллюстрирует "контролепригодность" различных форм материалов при использовании методик регистрации нейтронов. Для большинства крупных образцов металлов, оксидов, высокоплотного скрапа (скрап — отбракованный ядерный материал, удаленный из технологического процесса и предназначенный для дальнейшей переработки — прим. ред.) и отходов необходимо применение нейтронных методик. Точность нейтронного анализа ухудшается, если имеется высокий фон от (α,n)-реакций или в отходах присутствуют замедляющие материалы, такие как влага или органические соединения.

Калориметрия представляет собой другой, более медленный, но более точный метод анализа плутония, который нечувствителен к присутствию материалов матрицы (за исключением того, что материалы матрицы могут увеличить время, необходимое для достижения теплового равновесия). Как калориметрия, так и нейтронные методы обычно требуют знания изотопного состава измеряемого плутония; одним из способов измерения изотопного состава является гамма-спектрометрия.

Рис. 23.4 и 23.5 показывают области применения наиболее распространенных методик гамма- и нейтронного анализа. В общем случае, гамма-методики,

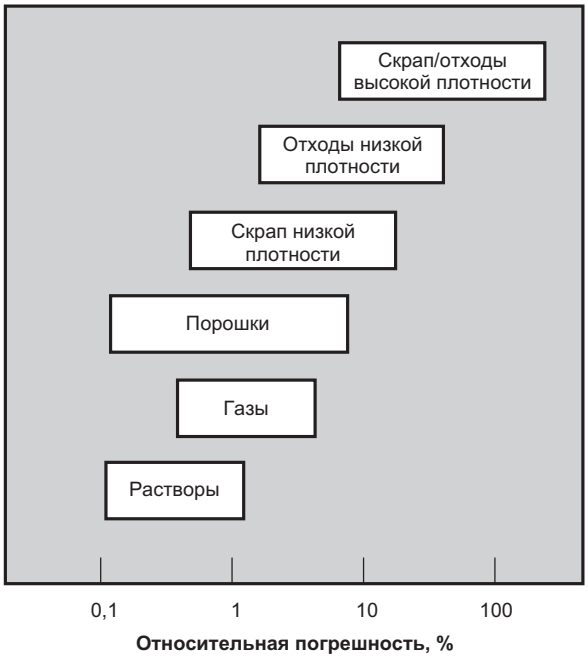

Рис.23.2. *"Контролепригодность" образцов для использования методик гамма-спектрометрии. Для сравнения: методики разрушающего химического анализа достигают погрешности в диапазоне от 0,05 до 0,5 %.*

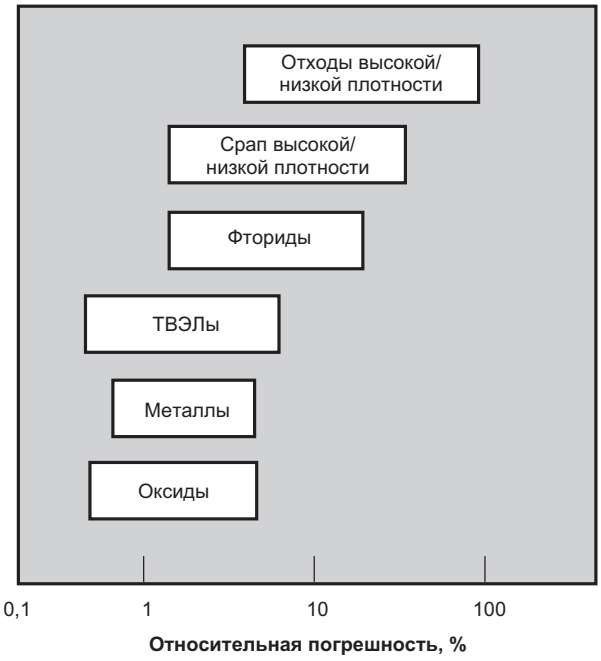

Рис.23.3. *"Контролепригодность" образцов для использования методик нейтронного неразрушающего анализа*

там, где они применимы, более точны, чем нейтронные методики. Аналогично, пассивные методики анализа часто более точны, чем активные, в которых матрица образца может влиять как на возбуждающее, так и на наведенное (анализируемое) излучение, тем самым снижая чувствительность и точность анализа.

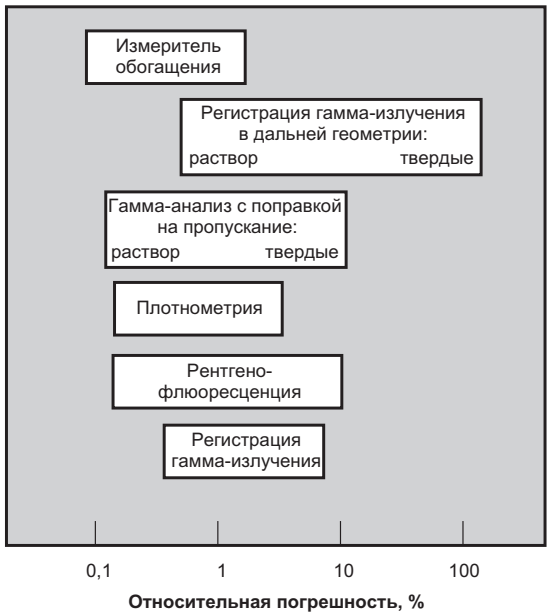

Рис. 23.4. *Области применения неразрушающего анализа по гамма-излучению*

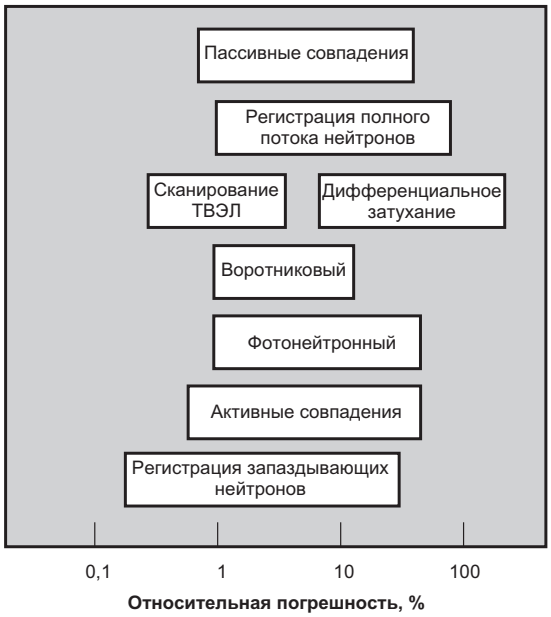

Рис. 23.5. *Области применения неразрушающего анализа по нейтронному излучению*

23.3 ТИПЫ ЯДЕРНЫХ МАТЕРИАЛОВ И ПРИМЕНИМЫЕ МЕТОДИКИ НЕРАЗРУШАЮЩЕГО АНАЛИЗА

Табл. 23.1 содержит перечень методик НРА, которые могут быть использованы для измерений ядерных материалов. Несмотря на свой большой объем, табл. 23.1 не является всеобъемлющей, но каждый ее элемент фактически является обобщением нескольких возможных методик. Таблица может служить для пользователя отправной точкой при выборе подходящей методики. Более детальные таблицы приведены в “Руководстве по методам измерений для обеспечения ядерных гарантий” [2]. Ниже приведены пояснения к заголовкам столбцов таблицы.

Ядерный материал. В табл. 23.1 рассмотрены следующие типы ядерных материалов:

- плутоний;
- высокообогащенный уран (ВОУ);
- низкообогащенный уран (НОУ);
- смесь урана и плутония.

Форма или матрица материала. В табл. 23.1 указаны методики анализа для следующих форм и матриц ядерных материалов:

- металл;
- оксид;
- фторид;
- растворы;
- топливные таблетки;
- тепловыделяющие элементы (ТВЭЛ);
- тепловыделяющие сборки (ТВС);
- скрап и отходы высокой плотности;
- скрап и отходы низкой плотности.

К анализу карбидов в большинстве случаев подходы те же самые, что и к оксидам. Для фторидов методики, применяемые для анализа газообразных UF_6 или PuF_6 и других, применимы также для PuF_6, PuF_4, UF_6 или UO_2F_2 в жидкой, твердой или порошкообразной формах. Для нейтронных методов анализа оксиды имеют низкий, а фториды — высокий выход нейтронов (α,n)-реакций. Скрап относительно богат ядерными материалами и обычно перерабатывается, тогда как содержание ядерных материалов в отходах относительно низкое и обычно они могут быть захоронены. Скрап и отходы могут быть пригодны для гамма-анализа, если имеют относительно низкую плотность.

Методики НРА. В табл. 23.1 приведены следующие методики и оборудование НРА:

<u>Гамма-анализ</u>

- Анализ в дальней геометрии без введения поправок на пропускание излучения — многоэнергетическая система гамма-анализа MEGAS (MultiEnergy Gamma Assay System).

- Анализ с поправкой на пропускание излучения с учетом структуры образца.
- Сегментное сканирование с поправкой на пропускание излучения — сегментный гамма-сканер SGS (Segmented Gamma Scanner).
- Счетчик гамма-илучения колодезного типа.
- Измерение обогащения урана (содержания изотопа ^{235}U).
- Определение изотопного состава плутония.
- Плотнометрия по K-краю.
- Плотнометрия по L_{III}-краю.
- Рентгенофлюоресценция по K- или L-линии.

Нейтронный анализ

- Измерение полного потока нейтронов — направленный нейтронный зонд SNAP (Shielded Neutron Assay Probe).
- Измерение полного потока нейтронов — счетчик нейтронов с 4π-геометрией.
- Пассивная регистрация нейтронных совпадений — высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC (High-Level Neutron Coincidence Counter).
- Пассивная регистрация нейтронных совпадений — счетчик для ТВЭЛ на смешанном уран-плутониевом топливе.
- Пассивная регистрация нейтронных совпадений — счетчик для ТВЭЛ быстрых реакторов-размножителей.
- Активная регистрация нейтронных совпадений — активный колодезный счетчик совпадений AWCC (Active Well Coincidence Counter).
- Активная регистрация нейтронных совпадений — активный воротниковый счетчик совпадений ANCC (Active Neutron Coincidence Collar).
- Активная регистрация нейтронных совпадений — активный сканер для ТВЭЛ.
- Регистрация совпадений быстрых нейтронов — счетчик нейтронов “Рэндом драйвер” (Random driver).
- Регистрация нейтронных совпадений с самоподсветкой.
- Регистрация запаздывающих нейтронов — калифорниевый шаффлер.
- Фотонейтронная подсветка — устройство фотонейтронной подсветки PHONID (PHOtoNeutron Interrogation Device).
- Методика дифференциальной регистрации затухания нейтронов.

Калориметрия

- Калориметрия с дополнительным определением изотопного состава с помощью масс-спектрометрии или гамма-спектрометрии.

Существуют и другие методики НРА, не включенные в данный перечень, такие, как измерения с применением ускорителей, описанные в работе [1].

Для каждого ядерного материала и матрицы в таблицу включены только наиболее общеприменимые методики. Методики перечислены в порядке снижения

точности или частоты использования. Выбор методики может зависеть от особых требований к измерениям и от таких факторов, как стоимость, производительность, необходимая площадь для размещения и т.д.

Измеряемые изотопы. Методики НРА, перечисленные в табл. 23.1, могут определить:

- элемент или изотоп,
- массу или концентрацию элемента (изотопа).

Пользователю часто нужна дополнительная информация, обычно это изотопный состав. Такая информация может быть получена от изготовителя ядерного материала или с помощью других разрушающих или неразрушающих методов анализа.

Пассивная (П) или активная (А) методика. Этот столбец таблицы указывает на использование в активной методике внешнего источника нейтронного или гамма-излучения для облучения образца. Методика нейтронных совпадений самоподсветки, в которой регистрируются деления, вызванные нейтронами, образованными в (α,n)-реакциях, классифицируется как пассивная.

Диапазон. В этом столбце для методик НРА приведена очень грубая оценка диапазона применимости по массе или концентрации. Указанный нижний предел является скорее нижним пределом измерения, чем нижним пределом обнаружения, который может быть значительно меньше, чем масса, приведенная в таблице. Для диапазона использован термин *масса элемента,* даже если измеряется только один изотоп.

Время. Это приблизительное время измерения, необходимое для достижения заданной сходимости.

Сходимость. Это воспроизводимость в одинаковых условиях однократного измерения, определяемая как одно относительное стандартное отклонение, в процентах. Сходимость оценена для образцов средних размеров, а для активных методик — в предположении оптимальной мощности источника подсветки.

Погрешность. Погрешность измерения в процентах установлена как относительное стандартное отклонение и включает в себя погрешности, обусловленные сходимостью измерений, расположением образца, градуировкой и систематической погрешностью прибора. Для калориметрического анализа оценка погрешности включает в себя погрешность определения изотопного состава, которая часто является определяющей. Количественные нормы погрешности для скрапа и отходов предполагают некоторую сортировку и разделение материалов по категориям, а также подразумевает присутствие малых или слабопоглощающих включений ядерного материала.

Ссылки. Ссылки указывают номера разделов этой книги, в которых может быть найдена более подробная информация по приведенной измерительной методике. Ссылка типа "x.y" указывает на раздел "y" главы "x". Другим источником информации является библиография с [1] по [9].

Таблица 23.1 – Руководство по выбору методик НРА

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
Плутоний								
Металл	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	4 ч	0,3	0,3	21.9
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	4 ч	0,5	1-2	21.9
	Нейтронные совпад.(HLNCC)	Воспроизв.	П	10-6000 г	300 с	0,5	1-4	17.2
	Полн. поток нейтронов (SNAP)	Воспроизв.	П	10-6000 г	30 с	1	2	15.2
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10-10000 г	1 ч	5	5-10	17.3
	Гамма-спектрометрия	Весь без ^{242}Pu	П	0,1-10000 г	30-60 мин	0,1-(3-5)	0,1-1	8.7.5
Оксиды	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	4-6 ч	0,3	0,3	21.9
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	4-6 ч	0,5	1-2	21.9
	Нейтронные совпад.(HLNCC)	Воспроизв.	П	10-6000 г	300 с	0,5	1-3	17.2
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10-10000 г	1 ч	5	10	17.3
	Гамма-спектрометрия	Весь без ^{242}Pu	П	0,1-10000 г	30-60 мин	0,1-(3-5)	0,1-1	8.7.5

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
Плутоний								
Порошок PuF_4	Полный поток нейтронов	Воспроизв.	П	1-500 г	30 с	1	2-5	15.2
	Нейтронные совпадения (самоподсветка)	Делящиеся	П	50-1000 г	600 с	1	5-10	20.4
Растворы	Гамма с поправкой на пропускание	Конц. ^{239}Pu	П	0,001-400 г/л	1000 с	0,2-1	0,2-1	6.9.4
	Плотнометрия по K-краю	Конц.Pu	А	40-500 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Плотнометрия по L_{III}-краю	Конц.Pu	А	5-100 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Рентгенофлюоресценция	Конц.Pu	А	0,1-400 г/л	300 с	0,5	0,3-1	10.5
	Нейтронные совпад. (HLNCC)	Воспроизв.	П	1-500 г	300 с	0,5	1-5	17.2
ТВЭЛ	Нейтронные совпадения (счетчик для лотков)	Воспроизв.	П	10-1000 г	600 с	1	0,5-2	[8]
ТВС	Нейтронные совпадения (счетчик для быстрых реакторов).	Воспроизв. /делящиеся	П	1-9 кг	300 с	0,2	0,5-2	[9]

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
Плутоний								
Скрап/отходы (высокой плотности)	Нейтронные совпадения (HLNCC)	Воспроизв.	П	10-6000 г	300 с	1-5	2-30	17.2
	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,3	0,5	22.4
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,5	1-2	22.4
	Нейтронные совпадения (самоподсветка)	Делящиеся	П	50-3000 г	1000 с	1	10	20.4
Скрап/отходы (низкой плотности)	Сегментный гамма-сканер (SGS)	^{239}Pu	П	1-1400 г	1000 с	1	1-5	6.9.5
	Гамма-анализ в дальней геометрии (MEGAS)	^{239}Pu	П	1-1400 г	300 с	1-2	1-5	6.9
	Нейтронные совпад.(HLNCC)	Воспроизв.	П	10-6000 г	1000 с	5	5-30	17.2
	Рентгеновский анализ	^{239}Pu	П	10 мкг-10 г	200 с	10	10-50	[2]
	Дифференциальное затухание	Делящиеся	А	5 мг-10 г	1000 с	1	30	[3]
ВОУ								
Металл	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	1 г-10 кг	1000 с	0,1	0,5-5	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10 г-10 кг	1000 с	0,5-5	1-5	17.3
	Рэндом драйвер	Делящиеся	А	50 г-10 кг	1000 с	1-5	1-5	[5]
	Фотонейтронный (PHONID)	делящиеся	А	1 г-1 кг	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,1-1	0,1-0,5	7.3

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
ВОУ								
Оксиды	Гамма с поправкой на пропускание	^{235}U	П	0,1-200 г	300 с	1	1-2	6.9.3
	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-20 кг	100 с	0,1-1	0,1-0,5	7.3
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	1 г-20 кг	1000 с	0,1	0,3-3	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10 г-20 кг	1000 с	1-5	1-5	17.3
	Рэндом драйвер	Делящиеся	А	50 г-10 кг	1000 с	1-5	1-5	[5]
	Фотонейтронный (PHONID)	Делящиеся	А	1 г-3 кг	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Полн.поток нейтронов (SNAP)	^{234}U	П	100 г-10 кг	500 с	2-5	5-10	15.2
UF_6 газообразный	Гамма с поправкой на пропускание	^{235}U	П	0,1-100 г	1000 с	0,7	1	7.5
UF_6 жидкий	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,1-1	0,25	7.3
UF_6 твердый	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	100-1000 г	1000 с	1-5	1-5	[6]
	Нейтронные совпадения (самоподсветка)	Делящиеся	П	1-20 кг	600 с	0,5	3	17.3
	Полный поток нейтронов	^{234}U	П	10 г-10 кг	200 с	2	2-5	15.2
	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,2-1	0,5-5	7.7

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
ВОУ								
Растворы	Гамма с поправкой на пропускание	Конц. ^{235}U	П	0,001-400 г/л	1000 с	0,1-0,2	0,2-1	6.9
	Плотнометрия по K-краю	Конц.U	А	40-500 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Плотнометрия по L_{III}-краю	Конц.U	А	5-100 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Рентгенофлюоресценция	Конц.U	А	0,1-400 г/л	300 с	0,5	0,3-1	10.5
Топливные таблетки	Рэндом драйвер	Делящиеся	А	50 г-10 кг	1000 с	1-5	1-5	[5]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10 г-10 кг	1000 с	1-5	1-5	17.3
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	1 г-10 кг	1000 с	0,1-2	0,3-3	[4]
	Фотонейтронный (PHONID)	Делящиеся	А	1 г-3 кг	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Колодезный гамма-счетчик	^{235}U	П	0,1-10 г	300 с	0,2	0,1-0,5	7.3
	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,5	0,25-1	[2]
ТВЭЛ	Воротн.счетч.нейтрон.совпад.	Делящиеся	А	100 г-10 кг	1000 с	0,5	2-4	17.3
	Сканер ТВЭЛ	Делящиеся	А	1-100 г	30 с	0,1	1	[1]
Скрап/отходы (высокой плотности)	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	1 г-10 кг	1000 с	0,1-2	2-25	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10-1000 г	1000 с	1-5	5-25	17.3
	Рэндом драйвер	Делящиеся	А	50-1000 г	1000 с	1-5	5-25	[5]

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
ВОУ								
Скрап/ отходы (низкой плотности)	Сегментный гамма-сканер (SGS)	^{235}U	П	1-200 г	1000 с	1	2-10	6.9.5
	Гамма с поправкой на пропускание	^{235}U	П	1-200 г	300 с	1	2-20	6.9.3
	Дифференциальное затухание	Делящиеся	А	5 мг-10 г	1000 с	1	30	[3]
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	1-1000 г	1000 с	0,5	2-25	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	10-1000 г	1000 с	1-5	5-25	17.3
НОУ								
Металл	Полный поток нейтронов (колодезный счетчик)	^{238}U	П	1-500 кг	1000 с	1	2-3	15.4
	Нейтрон. совп. (колод.счетчик)	^{238}U	П	2-500 кг	1000 с	2-5	2-5	15.4
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	1-10 кг	1000 с	5	5-10	17.3
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	10 г-10 кг	1000 с	1	1-2	[4]
	Фотонейтронный (PHONID)	Делящиеся	А	10-1000 г	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-200 кг	300 с	0,2-1	0,2-0,5	7.3

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
НОУ								
Оксиды	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-200 кг	300 с	0,2-1	0,2-0,5	7.3
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	1-10 кг	1000 с	5	5-10	17.3
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	10 г-10 кг	1000 с	1	1-2	[4]
	Фотонейтронный (PHONID)	Делящиеся	А	10-1000 г	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
UF_6 газообразн.	Гамма с поправкой на пропускание	^{235}U	П	5-100 г	1000 с	0,7	1-3	7.5
UF_6 жидкий	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,25-1	0,25-0,5	7.3
UF_6 твердый	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	1-10 кг	1000 с	1	2-5	[6]
	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-500 кг	300 с	1	1-5	7.7
Растворы	Гамма с поправкой на пропускание	Конц. ^{235}U	П	1-400 г/л	1000 с	0,5	0,5	6.9
	Плотнометрия по K-краю	Конц.U	А	40-500 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Плотнометрия по L_{III}-краю	Конц.U	А	5-100 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Рентгенофлюоресценция	Конц.U	А	0,1-400 г/л	300 с	0,5	0,3-1	10.5

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
НОУ								
Топливные таблетки	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	1-10 кг	1000 с	5	5-10	17.3
	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	1 г-10 кг	1000 с	1	1-2	[4]
	Фотонейтронный (PHONID)	Делящиеся	А	10-1000 г	200 с	0,1-3	1-5	[6,7]
	Колодезный гамма-счетчик	^{235}U	П	1-10 г	300 с	0,1-3	0,1-0,5	7.3
	Измеритель обогащения	^{235}U (%)	П	200 г-20 кг	300 с	0,5-1	0,25-1	[2]
ТВЭЛ	Воротн.счетч.нейтрон.совпад.	^{235}U	А	100 г-10 кг	1000 с	1	2-4	17.3
	Воротн.счетч.нейтрон.совпад.	^{238}U	П	1-10 кг	1000 с	2	5	17.3
	Сканер ТВЭЛ	Делящиеся	А	1-100 г	30 с	0,1	1	[1]
Скрап/отходы (высокой плотности)	Калифорниевый шаффлер	Делящиеся	А	1 г-10 кг	1000 с	1	5-20	[4]
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящиеся	А	1-10 кг	1000 с	5	10-50	17.3
	Гамма с поправкой на пропускание	^{238}U	П	100-5000 г	1000 с	1	2-20	6.9.3
	Общ.поток нейтр. (колод.счетч.)	^{238}U	П	10-500 кг	1000 с	1	2-5	15.4

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
НОУ								
Скрап/отходы (низкой плотности)	Сегментный гамма-сканер (SGS)	^{235}U	П	1-200 г	1000 с	1	2-10	6.9.5
	Гамма с поправкой на пропускание	^{235}U	П	5-200 г	1000 с	1	2-20	6.9.3
	Дифференциальное затухание	Делящиеся	А	5 мг-10 г	1000 с	1	30	[3]
Смесь урана и плутония								
Оксиды	Нейтронные совпад.(HLNCC)	Воспроизв.Pu	П	10-6000 г	300 с	0,5	1-2	17.2
	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	4-8 ч	0,3	0,5	21.9
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	4-8 ч	0,5	1-2	21.9
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящ.Pu, U	А	50-2000 г	1000 с	3	5	17.3
	Гамма-спектрометрия	Весь без ^{242}Pu	П	0,1-6000 г	1 ч	0,1-(3-5)	0,2-1	8.7
	Гамма-спектрометрия	Отношение Pu/U	П	0,1-6000 г	300 с	1	2	7.8

Продолжение таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
Смесь урана и плутония								
Растворы	Гамма с поправкой на пропускание	$^{239}Pu/^{235}U$	П	1-400 г/л	1000 с	0,5	0,2-1	6.9
	Плотнометрия по К-краю	Конц.Pu и U	А	40-500 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Плотнометрия по L_{III}-краю	Конц.Pu и U	А	5-100 г/л	1500 с	0,5	0,2-1	9.4
	Рентгенофлюоресценция	Конц.Pu и U	А	0,1-400 г/л	300 с	0,5	U:0,3/Pu:2	10.5
Топливные таблетки	Нейтронные совпад.(HLNCC)	Воспроизв.Pu	П	1-2000 г	300 с	0,5	1-2	17.2
	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,3	0,5	21.9
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,5	1-2	21.9
	Нейтронные совпад. (AWCC)	Делящ.Pu, U	А	50-2000 г	1000 с	3	5	17.3
	Гамма-спектрометрия	Весь без ^{242}Pu	П	0,1-6000 г	1 ч	0,1-(3-5)	0,2-1	8.7
	Гамма-спектрометрия	Отношение Pu/U	П	0,1-6000 г	300 с	1	2	7.8

Окончание таблицы 23.1

Форма или матрица материала	Методика НРА	Измеряемые изотопы	Пассивная или активная	Диапазон	Время	Сходимость, %	Погрешность, %	Ссылка
Смесь урана и плутония								
ТВЭЛ	Воротн.счетч.нейтрон.совпад.	Делящ.Pu, U	А	100 г-10 кг	1000 с	1	2-4	17.3
	Воротн.счетч.нейтрон. совпад.	Воспроизв. Pu	П	100-6000 г	1000 с	1	1-2	17.3
	Калориметрия/изотоп. состав	Общий Pu	П	10-200 г	1 ч	0,4	1-3	22.5
	Сканер ТВЭЛ	Дделящ. Pu, U	А	1-100 г	30 с	0,1	1	[1]
Скрап/отходы (высокой плотности)	Нейтронные совпад. (HLNCC)	Воспроизв. Pu	П	10-6000 г	300 с	1-5	5-30	17.2
	Калориметрия/масс-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,3	0,5	22.4
	Калориметрия/гамма-спектрометрия	Общий Pu	П	10-6000 г	8-16 ч	0,5	1-2	22.4
	Нейтронные совпад.(AWCC)	Делящ.Pu, U	А	50-2000 г	1000 с	5	10-50	17.3
Скрап/отходы (низкой плотности)	Сегментный гамма-сканер (SGS)	^{239}Pu	П	1-1400 г	1000 с	0,5-2	2-20	6.9.5
	Гамма-анализ с попр. прохожд.	^{239}Pu	П	1-1400 г	300 с	1	2-25	6.9.3
	Нейтронные совпад.(HLNCC)	Воспроизв. Pu	П	10-6000 г	1000 с	5	5-30	17.2
	Дифференциальное затухание	Делящ. Pu, U	А	5 мг-10 г	1000 с	1	30	[3]

ЛИТЕРАТУРА

1. T.Gozani, *Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Principles and Applications,* NUREG/CR-0602 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1981).
2. *Handbook of Nuclear Safeguards Measurement Methods,* D.R.Rogers, Ed., Mound Laboratory report MLM-2855, NUREG/CR-2078 (US Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 1983).
3. J.Caldwell et al., "Test and Evaluation of a High-Sensitivity Assay System for Bulk Transuranic Waste," *Nuclear Materials Management* XII, 75, (1984).
4. T.W.Crane, "Test and Evaluation Results of the ^{252}Cf Shuffler at the Savannah River Plant," Los Alamos National laboratory report LA-8755-MS (March 1981).
5. H.O.Menlove, N.Ensslin, and T.E.Sampson, "Experimental Comparison of the Active Well Coincidence Counter with the Random Driver," Los Alamos Scientific Laboratory report LA-7882-MS (June 1979).
6. R.Schenkel et al., "Calibration and Experimental Comparison of the Active Well Coincidence Counter and PHONID-II," Commission of the European Communities report EUR 10377 EN (1986).
7. R.Carchon et al., "Active Interrogation of Pu and U Bulk Samples with PHONID Devices," Proc. 7th ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Liege, Belgium, May 1985, p.153.
8. L.Cowder and H.Menlove, "Neutron Coincidence Counter for MOX Fuel Pins in Storage Trays: Users' Manual," Los Alamos National laboratory report LA-9493-M (August 1982).
9. H.O.Menlove, G.W.Eccleston, J.E.Swansen, P.Goris, R.Abedin-Zadeh, and A.Ramalho, "Universal Fast Breeder Reactor Subassembly Counter Manual," Los Alamos National laboratory report LA-10226-M (August 1984).

Предметный указатель

А

Активность, удельная 3
Альфа-излучение 2
– альфа-частицы 4, 336
– – длина пробега 4, 338
– альфа-излучатели 4
– взаимодействие с веществом 340
Анализатор импульсов
– двухканальный 49
– многоканальный (МКА) 49, 63, 83, 445
– одноканальный (ОКА) 63, 592, 445
Аналого-цифровой преобразователь (АЦП) 83
– ворота антисовпадений 135
– диапазон преобразования 86
– коэффициент преобразования 83
– мертвое время 85, 130
– нелинейность преобразования 85
– – дифференциальная 85
– – интегральная 85
– последовательного приближения 85
– постоянная времени 132
– Уилкинсона 85, 131
Атом
– модель Бора 7
– энергетические уровни *(см. Электрон)*
– ядро *(см. Ядро)*
– ионизация 8
– энергия возбуждения 8
Атомный номер Z 3

Б

Барьер деления 332
Бета-излучение 2
Бета-распад 6
– электронный распад β^- 6
– позитронный распад β^+ 6
– электронный захват 6
Бета-частицы 6
– длина пробега 4
Блок (устройство) детектирования
– полость для образца 509

В

Вековое равновесие распада ядер 219
Ветвление ядерной реакции
– интенсивность 4
Внутреннего стандарта метод 322
Внутренняя конверсия 5
– коэффициент 8
Возраст материала образца 318
Время измерения
– живое 144
– мертвое *(см. Мертвое время)*
– разрешения электроники 383
Выгорание ядерного материала 542
– глубина выгорания 542
– – определение по отношению активностей продуктов деления 552, 558
– плутония 219, 229

Г

Гамма-излучение, взаимодействие с веществом 25
– комптоновское рассеяние 31, 50, 312
– коэффициент ослабления 25
– – массовый μ 27, 35, 158, 267, 308
– – линейный μ_ℓ 25, 157
– коэффициент поглощения
– – линейный $\mu\rho$ 198
– коэффициент пропускания T 26, 57, 161, 268, 283
– – интерполяция 183

– – экстраполяция 183
– образование электрон-позитронных пар 34
– ослабление, основной закон 25
– прохождение через вещество
– – длина пробега в веществе 4, 194
– – средняя длина свободного пробега 17, 27, 310
– реакции 22
– фотоэффект 29, 50, 310
Гамма-излучение, детекторы 41
– выбор 65
Гамма-излучение, источники образования
– аннигиляция электрон-позитронной пары 35
– деление ядер 332
– комптоновское рассеяние 312
– неупругое рассеяние нейтронов 23
– радиационный захват нейтронов 22
– радиоактивный распад ядер 3, 283
– тормозное излучение 22
– облученное ядерное топливо 18
Гамма-излучение, энергетический спектр 10
– комптоновская долина 52
– комптоновский край 52
– комптоновского фона континуум 52
– комптоновское распределение 63
– методики анализа 95
– – определение положения пика 101
– – определение ширины пика 112
– – подгонка пика 127, 247
– – суммирование по рассматриваемой области 246
– область избыточной энергии 52
– пик полного поглощения (фотопик) 51, 63, 116, 118
– пик обратного рассеяния 52, 312
– пик утечки 30
– подъем в области низких энергий 52
Гамма-спектрометрическая система (гамма-спектрометр), составные части 64
– анализ данных 88
– аналого-цифровой преобразователь (АЦП) *(см. Аналого-цифровой преобразователь)*
– высоковольтный источник питания 66
– градуировка энергетическая 95
– детектор *(см. Гамма-излучение, детекторы)*
– дисплей 88
– измеритель скорости счета 82
– каркас (крейт) 66
– постоянная времени 132
– предусилитель 67
– стабилизатор спектра 86
– счетчик (пересчетное устройство) 81
– – максимальная загрузка 82
– таймер 81
– ячейка для образца (кювета) 288-298, 325
Гамма-спектрометрия 63
– высокого разрешения 284, 558
– низкого разрешения 284
Гаусса кривая 102
– хвост 102
Гаусса функция 101
– линеаризованная 108, 118
– парабализованная 108, 118
Геометрия измерения
– ближняя 164, 322
– дальняя 164, 318
Градуировка спектрометра
– внутренняя 96
– энергетическая 96
Градуировочная постоянная 156
Градуировочная характеристика 96
– график 99
– линейная 96, 100
– нелинейная 96
– функция 96

Д

Деление ядер
– барьер деления 332
– вынужденное деление 18, 329
– – множественность нейтронов 331, 334
– гамма-кванты деления 333
– нейтроны деления 330
– продукты (осколки) *(см. Осколки деления)*
– спектр нейтронов деления 333
– спонтанное деление 18, 329
– – множественность нейтронов 331, 334

– – период полураспада 331
Детектор излучения 41
– активируемые фольги 405
– термолюминесцентный дозиметр 405
– энергетическое разрешение 53, 65, 70
– эффективность регистрации излучения 56, 65, 162
– – геометрическая 56
– – образца 57
– – относительная 57
– – поглощения 56
– – полная (абсолютная) 56
– – собственная 57
– – характеристика 99
Детектор излучения газонаполненный 41,378
– время собирания заряда 384, 392
– камера ионизационная 42, 380
– – камера деления 394
– рабочие области 380
– – Гейгера-Мюллера 380
– – ионизации 380
– – пропорциональности 380
– счетная характеристика 380
– – плато 380, 388
– – рабочее напряжение 388
– счетчик газоразрядный 41
– – Гейгера-Мюллера 42, 382
– – пропорциональный 42, 387, 587
– проточный 587
Детектор излучения полупроводниковый (твердотельный) 44-48, 58
– германиевый, особо чистый (ОЧГ) 45
– коаксиальный 45
– колодезный 45
– обедненная область 44
– область собственной проводимости 45
– планарный 45, 70
Детектор излучения сцинтилляционный 43-44, 397
– время высвечивания 401
– детектор Хорняка 405
– дискриминация сигналов по форме импульсов 401
– – приведенная чувствительность 401
– жидкий 397, 502
– неорганический 43
– органический 43
– – пластмассовый 397, 502, 586
– световыход 400
– стеклянный 404
– чувствительный объем 43, 102
– эффективность конверсионная 398
Дискриминатор импульсов амплитудный
– верхнего уровня 86, 592
– нижнего уровня 86, 592
Длина свободного пробега гамма-кванта 4, 17, 310
Длина свободного пробега нейтрона 364

З

Замедлитель детектора нейтронов
– расчет конструкции 432-436
Защита от излучения
– от гамма-излучения 38, 383
– от нейтронов 372
– от рентгеновского излучения 620

И

Излучения, радиоактивные 2
Измеритель скорости счета 82
Изомер 5
Изотоп
– воспроизводящий 332, 360, 540
– делящийся 332, 360, 540
Изотопных отношений метод 239
Импульс детектора излучения
– время нарастания 69, 401
– время спада 69
– наложения импульсов 73, 131
– цепи режекции наложений 67
Ионизация 8, 41, 379
– вторичная 380
– коэффициент газового усиления 381
– лавинная 380
– образование пары ион-электрон 49, 54
Источник излучения
– градуировочный (эталонный) 592
– образцовый (реперный) 143, 187
Источники нейтронов радио изотопные 345
– америций-бериллиевый AmBe, спектр 342

– америций-литиевый AmLi 479, 525
– – спектр 342
– калифорниевый ^{252}Cf 394, 479
– – спектр 333, 335
Источники рентгеновского излучения 306
– возбужденное ядро 8, 306
– радиоизотопный 322
– рентгеновский генератор 322

К

Калориметры 638
– градуировка 651
– основные составные части 655
– – градуировочные источники теплоты 656
– – камера для образца 640
– – камера эталонная 640
– – корпус теплоизолирующий 638
– – мост Уитстона 640
– – пульт управления и обработки данных 656
– – сервоконтроллер 647
– принцип действия 638
– – адиабатический 639
– – изотермический 639
– – теплового потока 639
– метод работы 648, 649
– чувствительность 640
Коллимация гамма-излучения 38, 245, 273
Конверсия внутренняя 5
Корреляция изотопная, ^{242}Pu 243
Коэффициент
– внутренней конверсии 5
– газового усиления 381
– замедления 369
– ослабления *(см. Гамма-излучение, взаимодействие с веществом)*
– поглощения 198
– поправки *(см. Поправка)*
– преобразования АЦП 83
– пропускания гамма-излучения 26, 57, 161, 268, 283, 320
– размножения 370, 426
– усиления 67, 71
– утечки нейтронов 443
Край кривой поглощения фотонов 272, 308
– K-край 273
– L-край 273

М

Массовое число A 3
Мертвое время 130
– аналого-цифрового преобразователя 85, 130-131
– непродлеваемое (непарализуемое) 131, 469
– продлеваемое (парализуемое) 131, 469
– переменное 471
– электроники 392, 468, 473
Множественность нейтронов 333, 486
Монитор радиационный 575
– градуировка 592
– диагностика 591
– испытания 593
– назначение и область применения 576, 594
– порог обнаружения ядерного материала 582
– радиационный фон 577
Монитор радиационный, конструкция 588
– портативный 576
– ручной (носимый) 594
– составные части 588
– – детекторы 586
– – источники питания 591
– – электронные блоки 589
– стационарный 576
– – пешеходный 596
– – транспортный 596
Мониторинг радиационный, обработка результатов измерений 582
– регистрация сигналов детектора 582
– – аналоговая 583
– – долговременная 585
– – цифровая 583
– методика последовательной проверки гипотез 585
– методика последовательных шагов 584
– методика скользящего среднего 584

Н

Нелинейность
– градуировочной характеристики
– дифференциальная 85
– интегральная 85
Неопределенность измерения
– критерий “трех сигм” 279
Нейтронные совпадения 463
– действительные 466
– множественность совпадений 429
– – поправка на эффект размножения 429
– распределение 466
– – интервалов 466
– – Росси-альфа 467
– случайные 466
Нейтронов детекторы 377
– быстрых нейтронов 393
– – на ядрах отдачи 393, 395, 502
– всеволновой (“длинный”) 406, 458
– нейтронных совпадений 501
– – активные 525
– – пассивные 503
– полного потока 409
– тепловых нейтронов 387
– чувствительность 383
– – к быстрым нейтронам 386
– – к гамма-излучению 383, 386, 393, 397
– – к тепловым нейтронам 386
Нейтронов детекторы, обработка сигналов
– биполярный формирователь сигнала 402
– время нарастания импульса 394
– порог дискриминации 394, 396
– постоянная времени формирования сигнала 388, 398
Нейтронов образование
– вынужденное деление ядер 332, *410*
– множественность 331
– неупругое рассеяние нейтронов (n,n′) 344
– радиоизотопные источники *(см. Источники нейтронов радиоизотопные)*
– спонтанное деление ядер 332
– – запаздывающие 330
– – мгновенные 332
– – связанные во времени 501
– фотонейтронные реакции (γ,n) 344
– (n,2n)-реакции 344
– (α,n)-реакции 336
Нейтронов спектрометры 406
– на гелии-3 (спектрометр Шалева) 407
– на протонах отдачи 407
– по времени пролета 407
Нейтроны 329, 353
– время жизни в детекторе (затухание) τ 466, 501
– масса покоя 354
– тепловые 355
– термализация 356, 436, 466
– утечки 370
– – спектр 429
– число нейтронов в ядре N 3, 354
Нейтроны, взаимодействие с веществом 353
– длина свободного пробега *(см. Длина свободного пробега нейтрона)*
– замедление 368
– – замедляющая способность материала 368
– – коэффициент замедления 369
– – логарифмический декремент 368
– рассеяние 355
– – неупругое (n,n′) 356
– – упругое (n,n) 356, 393
– реакции поглощения (захвата) 357
– – деление ядер (n,f)
– – радиационный захват (n,γ)
– – умножение нейтронов (n,2n), (n,3n) и т.п. 369
– – рождение заряженных частиц (n,p), (n,d), (n,α) и т.п. 387
Нейтроны подсветки, источник 410, 525
Нейтроны, размножение 369, 412
– коэффициент размножения k 370, 426
– – эффективный коэффициент размножения $k_{эфф}$ 370
– прибыль нейтронов 426
– умножение нейтронов M 370, 426
– умножение нейтронов утечки M_L 410, 426
Нейтроны, расчет переноса 374
– метод дискретных ординат 375
– метод Монте-Карло 375, 428
Нейтроны, сечение взаимодействия 353
– макроскопическое 361

– микроскопическое 354
– полное сечение взаимодействия 355
– полное сечение рассеяния 358
– – сечение неупругого рассеяния 358
– – сечение упругого рассеяния 358, 393
– резонансные пики сечения 358
– сечение поглощения (захвата) 358
– – сечение реакции деления ядра 358
– – сечение неупругого взаимодействия 358
– – сечение радиационного захвата 358

О

Область анализа, рассматриваемая 89, 95, 119
Облученное ядерное топливо 18, 539
– время охлаждения (выдержки) 544
– выход нейтронов 554, 563
– интенсивность гамма-излучения 549
– черенковское излучение *(см. Черенковское излучение)*
Образец
– анализируемый (исследуемый) 157
– без размножения нейтронов 494
– “бесконечной” толщины критерий 194
– небесконечный 203-205
– однородность 157
– равномерность 157
– с высоким размножением нейтронов 473, 494
– стандартный 156, 271, 322, 444, 494
– – растворителя 271
– типовые формы 163
– толстый 362, 425
– тонкий 425
– эффективность 57
– эффект матрицы 199
Осколки деления 18, 329, 395, 542
– выход гамма-излучения 542
– распределение по массе 543
– средняя длина пробега 395
Ослабление излучения в материале *(см. Вид излучения, взаимодействие с веществом)*
Отложения ядерных материалов 610
– моделирование 612
– процедуры измерения 620
– типичные величины для оборудования 612
Отношение изотопное 219, 239
Отходы ядерных материалов
– сортировка 604
– методические пределы обнаружения 605

П

Пик распределения импульсов
– вычитание комптоновского фона 119-124
– наложение пиков 131
– определение площади 124
– определение положения 101
– определение ширины 112
– параметр формы 245
– полная ширина пика
– – на половине высоты 53, 112
– – на части высоты 117
– реперный 248
– центроида 51, 101-102
Плотномеры 283
– двухэнергетические 284
– источники излучения пропускания 285
– – дискретного гамма-излучения 285
– – непрерывного тормозного излучения 285
– – рентгеновские генераторы 285
– моноэнергетические 283
– по краю поглощения 285
– – по K-краю 286
– – по L_{III}-краю 294
– чувствительность 279
– ячейка (ампула, кювета) для образца 287-298
– – проточная 298
Плотнометрия 267
– двухэнергетическая 271
– моноэнергетическая 268
– многоэнергетическая 271
– по краю поглощения 272
– – источники 283
– – эффект матрицы 280
Плутоний
– возраст образца 218
– выгорание 219, 229
– – высокое 219, 229
– – низкое 96, 219, 221, 229, 463
– – среднее 221
– из регенерированного топлива 219

– изотопная корреляция 243
– изотопное отношение 239
– свежевыделенный 219
– старый 219
– характеристики распада изотопов 217
– эффективная масса изотопа ^{240}Pu 463
Погрешность 177
– абсолютная 177
– относительная 177
Поправка
– на время после извлечения топлива из реактора 244
– на длину ТВЭЛ, ТВС 670
– на излучения на стенках контейнера 207
– на мертвое время сдвигового регистра 471
– на ослабление в образце 155, 317
– на ослабление в стенке контейнера 200, 208
– на ослабление в стенке оборудования 626
– на отложение урана на стенке контейнера 207
– на положение ТВЭЛ, ТВС в камере 670
– на потери в электронике (на просчеты) 156, 318
– на потери от мертвого времени 205, 473, 508
– на пропускание (ослабление в образце) 205, 317
– на разницу в матрицах образцов 211
– на самопоглощение в образце 57, 243
– на самопоглощение в отложении 626
– на саморазмножение в образце 489, 494
– на состав образца 199
– на содержание примесей 494
– на содержание ^{242}Pu 251
– на умножение от нейтронов (α,n)-реакции 490
– на умножение от нейтронов спонтанного деления 490
Порог обнаружения ядерного материала 277, 582
Постоянная времени 132
Предусилитель гамма-спектрометра 67
– импульсно-оптический 70
– максимальная загрузка 69
– максимальная скорость счета 69
– транзисторный 71
Пропускная способность АЦП 132-133
– кривая 136

Р

Равновесие, вековое 219
Разрешение
– амплитудное
– временное 139
– энергетическое 53
Радиоактивность естественная 20
Распад, радиоактивный (ядерный) 3
– альфа-распад 4
– бета-распад 6
– дочернее ядро 4
– материнское ядро 4
– период полураспада $T_{1/2}$ 3, 239
– постоянная распада λ 3, 99, 203, 239
– скорость R (удельная активность) 3
– энергия распада 632
Реакция ядерная
– интенсивность ветвления 4
– кулоновский барьер 338
– мишень толстая 340
– энергия реакции пороговая 338
– энергия реакции Q 4, 338
Рентгеновская флюоресценция 267
– выход флюоресценции W 8
Рентгеновское излучение 2, 306
– источники 8, 306, 317
– – рентгеновский генератор 282, 285, 298, 313, 322
– – тормозное излучение 285, 317
– – характеристическое излучение атома 9, 306
Рентгенофлюоресценцентный анализ (РФА) 293, 305
– дисперсионно-волновой 306
– дисперсионно-энергетический 306
– источник возбуждения 312, 317

С

Самопоглощение излучения 155
Сигнал обнаружения 582
– приращение 583

Системы регистрации нейтронов, конструкция
– блок замедлителя 445
– защита 440
– соединительная коробка 445
Системы регистрации нейтронов, основные составные части
– детектор нейтронов 377
– интегральный дискриминатор
– источник нейтронов подсветки 410, 525
– – генератор нейтронов 567
– – радиоизотопный источник 525, 567
– – ускоритель 567
– предусилитель 445
– сдвиговый регистр
– схема совпадений 410
– – автокорреляционный способ 470
– – взаимокорреляционный способ 470
– счетчик (пересчетное устройство) 445
– таймер
– усилитель 445
Содержание изотопное
– плутония 239
– урана 193
– – атомарное 193
– – весовое 193
Спектр энергетический *(см. Гамма-излучение, энергетический спектр)*

Т

Тепловыделение 632
– удельная тепловая мощность P 251, 634
– – эффективная удельная мощность $P_{эфф}$ 636, 656
Тепловыделяющая сборка (ТВС)
– свежая 548
– облученная 548
– – атрибутивные признаки 548
– – черенковское излучение 548, 560
Топливо ядерное (ЯТ), контроль
– для быстрых критических стендов 512
– для легководных реакторов 193, 503, 532
– – на кипящей воде 531, 541
– – с водой под давлением 531, 541
– для материаловедческих реакторов 193, 503
– для реакторов типа CANDU 193
– для реакторов-размножителей 514, 532, 541
– облученное *(см. Облученное ядерное топливо)* 18, 539
– отработавшее (ОЯТ)
– – продукты переработки 323
– регенерированное 219
Торий, излучение руды 20

У

Уран
– излучение руды 22
– обогащение 193
– – атомарное содержание 193
– – весовое содержание 193
– природного обогащения 96
Усилитель спектрометрический 67, 71
– базовый уровень напряжения 72, 75
– – восстановление 75
– выходной импульс 95
– интегратор 72, 78
– коэффициент усиления 67, 71
– линия задержки 73
– отношение сигнал/шум 72
– режектор наложений 67, 76, 134
– схема “полюс-ноль” 74
– электронное дифференцирование 72

Ф

Фактор Фано 54
Фильтры гамма-излучения 36, 245
Флюоресценция рентгеновская 8, 267
– выход ω 8, 307
Фон радиационный 20
– вычитание фона из спектра 119-124
– неопределенность результата измерения 279
– космический 20
Фотоумножитель (ФЭУ) 43
– коэффициент усиления 44

Х

Характеристика
– градуировочная 528
– чувствительности 509

Ц

Центроида пика 51, 101, 247

Ч

Черенковское излучение 548
– измерение 560

Э

Электрон
– аннигиляция 35
– внутрення конверсия 5
– Оже-электрон 5, 306
– энергетические уровни в атоме 7
– энергия связи в атоме B 8, 306
Энергетическое разрешение
(см. Разрешение энергетическое)
Энергия возбуждения *(см. Атом)*
Энергия реакции пороговая 338
Энергия реакции Q 4, 338
Энергия связи, *(см. Электрон)*
Энергия тепловая ядерного распада 632
Эталонный раствор для плотнометрии
284, 298
Эффективность детектора
– геометрическая, 56
– график (кривая) 57, 99, 241
– образца, 57
– относительная 57, 65, 151, 241
– относительно NaI 57, 152
– поглощения, 56
– полная (абсолютная) 56, 146, 586
– собственная 57, 147, 586

Я

Ядерный материал
– атрибутивные признаки 602
– балк-форма 503
– отложения 444, 447
– отходы 451
– учетная единица (инвентарные
образцы) 503, 516, 609
Ядро атома
– возбужденное состояние 5
– внутренняя конверсия 5
– изомеры 5
– распад 4
– – дочернее 4
– – материнское 4

Содержание 2 части

Глава 15. Приборы регистрации полного потока нейтронов и их применение 439

15.1 Введение 439

15.2 Направленный нейтронный зонд SNAP 439

15.2.1 Контроль металлического плутония 442

15.2.2 Контроль баллонов с UF_6 442

15.2.3 Измерение отложений 444

15.2.4 Другие применения 444

15.3 Плоские детекторы 445

15.3.1 Контроль обогащения UF_6 445

15.3.2 Измерение отложений 447

15.4 Счетчик с 4π-геометрией 447

15.4.1 Счетчик для контейнеров 448

15.4.2 Измерение источников теплоты на основе ^{238}Pu 450

15.5 Измерение низкоактивных отходов 451

15.5.1 Чувствительность регистрации 452

15.5.2 Анализ 55-галонных бочек 452

15.5.3 Анализ больших упаковок 453

15.6 Специальные применения 454

15.6.1 Анализатор водорода на основе источника ^{252}Cf 454

15.6.2 Определение влажности с помощью кольцевого отношения детектора . . 456

15.6.3 Энергетически независимый "длинный" счетчик 457

Литература 459

Глава 16. Принципы регистрации нейтронных совпадений 463

16.1 Введение 463

16.2 Характеристики последовательности нейтронных импульсов . . . 464

16.2.1 Идеальные и действительные последовательности импульсов 465

16.2.2 Распределение интервалов 466

16.2.3 Распределение Росси-альфа 467

16.3 Основные особенности схем совпадений 468

16.3.1 Электронные ворота 468

16.3.2 Продлеваемое и непродлеваемое мертвое время 469

16.3.3 Взаимокорреляционные и автокорреляционные схемы 470

16.4 Три основные схемы регистрации совпадений 471

16.4.1 Схема с переменным мертвым временем 471

16.4.2 Схема одновибратора с продлеваемым мертвым временем 471

16.4.3 Логика уменьшенной дисперсии 473
16.5 Схема анализа совпадений на основе сдвигового регистра 474
16.5.1 Принцип работы сдвигового регистра 474
16.5.2 Ворота R+A 474
16.5.3 Ворота A 476
16.5.4 Чистый отклик совпадений R. 477
16.6 Поправки на мертвое время сдвигового регистра 479
16.6.1 Мертвое время детектора и усилителя 479
16.6.2 Смещение из-за наложения импульсов 480
16.6.3 Мертвое время цифровой электроники 481
16.6.4 Эмпирические формулы поправки на мертвое время. 482
16.6.5 Электроника AMPTEK и выравнивающий буфер. 484
16.7 Неопределенности из-за статистического характера процесса регистрации 485
16.7.1 Простое уравнение для оценки погрешности сдвигового регистра 486
16.7.2 Неопределенности для пассивного и активного счета совпадений 487
16.8 Эффекты саморазмножения в образце. 488
16.8.1 Источник эффекта саморазмножения 488
16.8.2 Результаты вычислений 489
16.8.3 Влияние различных эффектов на отклик сдвигового регистра 493
16.8.4 Простой коэффициент поправки на саморазмножение. 494
16.8.5 Применения и ограничения простой поправки. 495
16.9 Другие эффекты матрицы 496
Литература 498

Глава 17. Приборы нейтронных совпадений и их применение 501

17.1 Основы проектирования установок нейтронных совпадений . . . 501
17.2 Пассивные системы регистрации нейтронных совпадений. 503
17.2.1 Установка для контроля 200-литровых бочек 505
17.2.2 Высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC 506
17.2.3 Усовершенствованный высокоуровневый счетчик нейтронных совпадений HLNCC-II. 508
17.2.4 Специальные блоки детектирования для контроля элементов быстрых критических стендов 512
17.2.5 Специальные блоки детектирования для контроля топлива реакторов на быстрых нейтронах 514
17.2.6 Счетчик совпадений для инвентарных измерений ISCC. 516
17.2.7 Установки для контроля растворов нитрата плутония 520
17.2.8 Двухдиапазонный счетчик совпадений DRCC 522
17.3 Активные системы для регистрации нейтронных совпадений . . . 525
17.3.1 Активный колодезный счетчик нейтронных совпадений AWCC 525
17.3.2 Воротниковый счетчик нейтронных совпадений для урана UNCC 529
17.3.3 Пассивный воротниковый счетчик нейтронных совпадений PNCC . . . 532
17.3.4. Монитор для входного контроля баллонов с UF_6 RAM 534
ЛИТЕРАТУРА 536

Глава 18. Измерения облученного топлива 539
18.1 Введение 539
18.2 Характеристики реакторного топлива 540
18.2.1 Физическое описание 540
18.2.2 Определение выгорания и глубины выгорания 542
18.2.3 Выход продуктов деления 542
18.3 Косвенные характеристики выгорания топлива. 548
18.3.1 Физические атрибутивные признаки 548
18.3.2 Черенковское излучение. 548
18.3.3 Интенсивность гамма-излучения отдельных продуктов деления 549
18.3.4 Полная интенсивность гамма-излучения 551
18.3.5 Отношение активностей продуктов деления 552
18.3.6 Полный выход нейтронов 554
18.4 Гамма-измерения облученного топлива 557
18.4.1 Измерения полной интенсивности гамма-излучения. 557
18.4.2 Измерения интенсивности высокоэнергетического гамма-излучения . . 558
18.4.3 Гамма-спектрометрия высокого разрешения 558
18.4.4 Измерения черенковского излучения. 560
18.5 Нейтронные измерения облученного топлива 562
18.5.1 Вилочный детектор и блок электроники ION-1 563
18.5.2 Нейтронные измерения выгорания 564
18.6 Определение содержания делящихся материалов в облученном топливе 566
18.6.1 Косвенное определение характеристик топлива с помощью пассивных измерений выгорания 566
18.6.2 Определение характеристик топлива методом активной нейтронной подсветки 567
18.7 Обзор методов неразрушающего анализа для контроля облученного топлива 571
Литература 571

Глава 19. Радиационные мониторы контроля периметра 575
19.1 Введение 575
19.2 Влияние радиационного фона 577
19.3 Характеристики сигналов систем контроля за перемещением ядерных материалов и радиоактивного загрязнения 579
19.3.1 Источники излучения 579
19.3.2 Сигналы, изменяющиеся во времени 579
19.4 Анализ сигналов 582
19.4.1 Регистрация излучения 582
19.4.2 Аналоговые методы регистрации 583
19.4.3 Цифровые методы регистрации 583
19.4.4 Долговременный мониторинг 585
19.5 Детекторы излучения 586

19.5.1 Пластмассовые сцинтилляторы 586
19.5.2 Проточные газоразрядные детекторы. 587
19.6 Составные части мониторов контроля периметра 588
19.6.1 Составные части и их функции 588
19.6.2 Электроника для обработки сигналов 589
19.6.3 Источники питания 591
19.6.4 Диагностика 591
19.7 Градуировка мониторов 592
19.7.1 Градуировка сцинтилляционных детекторов 592
19.7.2 Градуировка одноканального анализатора 592
19.7.3 Периодический контроль градуировки. 593
19.8 Методы оценки мониторов 593
19.9 Примеры мониторов контроля периметра 594
19.9.1 Ручные мониторы контроля периметра 594
19.9.2 Автоматические пешеходные мониторы 596
19.9.3 Автоматические транспортные мониторы 596
19.9.4 Обзор характеристик мониторов. 598
Литература 599

Глава 20. Качественные и полуколичественные измерения 601

20.1 Введение 601
20.2 Измерение атрибутивных признаков ядерных материалов 602
20.3 Количественная сортировка отходов. 604
20.3.1 Цель. 604
20.3.2 Чувствительность к гамма-квантам и нейтронам 604
20.4 Подтверждающие измерения 606
20.4.1 Цель. 606
20.4.2 Варианты неразрушающего анализа 606
20.4.3. Современная практика 608
20.5 Отложения ядерного материала. 610
20.5.1 Причины и механизмы 611
20.5.2 Величина отложения 611
20.5.3 Статистическое моделирование 612
20.6 Искусство и наука измерения отложений. 615
20.6.1 Полезные характеристики излучений 616
20.6.2 Детекторы и приборы считывания 618
20.6.3 Процедуры измерения отложений. 620
20.6.4 Градуировка для точечной, линейной зоны и зоны в виде плоскости . . . 621
20.6.5 Стандартные образцы для градуировки и контрольные источники 624
20.6.6 Поправки на ослабление и самопоглощение 625
20.6.7 Оценка погрешности 627
Литература 628

Глава 21. Принципы калориметрического анализа 631

21.1 Введение 631

21.2 Выработка теплоты радиоизотопами 632
21.2.1 Альфа-частицы 633
21.2.2 Бета-частицы 633
21.2.3 Гамма-кванты 634
21.2.4 Другие виды излучений 634
21.3 Определение удельной мощности 634
21.3.1 Определение удельной мощности 634
21.3.2 Эффективная удельная мощность 636
21.4 Измерение теплоты с помощью калориметра 638
21.4.1 Адиабатические калориметры 639
21.4.2 Изотермические калориметры 639
21.5 Типы калориметров теплового потока 640
21.5.1 Общие электрические характеристики 640
21.5.2 Полные мостовые двухэлементные калориметры 640
21.5.3 Мостовые калориметры с верхней/нижней камерами 642
21.5.4 Градиентный мостовой калориметр 643
21.6 Методы работы с калориметрами теплового потока 645
21.6.1 Метод замещения 645
21.6.2 Дифференциальный метод 646
21.6.3 Метод сервоконтроля постоянной температуры 647
21.7 Время анализа 647
21.7.1 Конструкция калориметра и метод работы 648
21.7.2 Предварительная подготовка образца 649
21.7.3 Прогнозирование конечной точки 650
21.8 Градуировка калориметра 651
21.8.1 Электрическая градуировка 651
21.8.2 Градуировка с использованием радиоизотопных источников теплоты . . . 652
21.9 Источники погрешностей 652
Литература 654

Глава 22. Приборы для калориметрического анализа 655

22.1 Введение 655
22.1.1 Компоненты систем калориметрического анализа 655
22.1.2 Рассмотрение конструкции калориметров 656
22.2 Небольшие калориметры для анализа в лабораторных условиях . . 656
22.2.1 Маундский аналитический калориметр 657
22.2.2 Аргоннский калориметр для небольших образцов 658
22.3 Передвижные калориметры 659
22.3.1 Маундский передвижной калориметр 659
22.3.2 Аргоннский калориметр для анализа материалов в балк-форме 661
22.4 Калориметры для работы в заводских условиях 663
22.4.1 Маундский серийный двухэлементный мостовой калориметр 663
22.4.2 Маундский калориметр для совместных измерений изотопов 665
22.4.3 Серийные калориметры завода Рокки Флэтс 666
22.4.4 Маундские градиентные мостовые калориметры 667
22.5 Калориметры для топливных стержней 669

22.5.1 Аргоннский калориметр для топливных стержней 669
22.5.2 Калориметр фирмы "Дженерал Электрик" для облученных топливных сборок. 671
Литература 672

Глава 23. Руководство по применению методов неразрушающего анализа 675

23.1 Введение 675
23.2 Возможности некоторых пассивных и активных методик неразрушающего анализа 675
23.3 Типы ядерных материалов и применимые методики неразрушающего анализа 680
Литература 694

Предметный указатель 695