

УДК 550.835.212

МНОГОПАРАМЕТРИЧЕСКАЯ СИСТЕМА РЕГИСТРАЦИИ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ СОСТАВА ОТРАБОТАННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

© 2024 г. К. В. Ершов^{1, 2, *}, Н. Е. Мишина¹, Д. В. Тимонин¹

¹ Акционерное общество «Радиевый институт имени В.Г. Хлопина», Санкт-Петербург, Россия

² Федеральное государственное бюджетное учреждение «Петербургский институт ядерной физики имени Б.П. Константинова Национального исследовательского центра

«Курчатовский институт»», Гатчина, Россия

* E-mail: ershov.k@khlopin.ru

Поступила в редакцию 23.05.2024

После доработки 25.06.2024

Принята к публикации 31.07.2024

В Радиевом институте им. В. Г. Хлопина была создана многопараметрическая система регистрации ионизирующих излучений (далее МПСР) для определения состава отработанного ядерного топлива с целью внедрения в производственные циклы переработки топлива, в частности, для анализа состава жидкостей в гидрометаллургическом переделе. Основной задачей было создание универсального прибора (программно-аппаратного комплекса), который можно адаптировать для определения концентрации радиоактивных изотопов в различных технологических циклах путем замены детекторов и/или перенастройки программного обеспечения.

DOI: 10.31857/S0367676524110213, EDN: FJYZVZ

ВВЕДЕНИЕ

В состав отработанного ядерного топлива (далее ОЯТ) могут входить, как элементы, соответствующие ядрам, образовавшимся в результате деления, с атомной массой 90–144 а.е.м (табл. 1), так и уран и трансурановые элементы с атомной массой 232–244 (табл. 2), образующиеся, в основном, в последовательных реакциях n - γ и β -распада. В выдержанном ОЯТ водо-водяных энергетических реакторов содержится около 50 изотопов продуктов деления, примерно половина из которых подвержены β - и γ -распаду. Уран и трансурановые элементы, содержащиеся в выдержанном ОЯТ (около 20 изотопов), все подвержены α -распаду, за исключением ^{241}Pu , который распадается в β -процессах: β -распадом и электронным захватом [1].

Все активные изотопы могут быть качественно определены спектроскопическими методами (методами α -, β - и γ -спектроскопии), а при наличии стандарта могут быть определены количественно [2, 3]. Многопараметрические измерения дают принципиальную возможность использовать методы прямых измерений (например, метод совпадений) для определения активности жидкой пробы, находящейся в кювете. МПСР может быть использована для элементного анализа не только активных элементов при помощи таких методов,

как: рентген-флуоресцентный анализ [4, 7], активационный анализ [5], гамма-абсорбционный анализ [6, 7].

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Для макета МПСР была реализована схема, изображенная на рис. 1. Установка состоит из двух частей: аналоговой и цифровой. В аналоговой части проводится амплитудно-временной анализ импульсов, поступающих из многодетекторной системы. При помощи МПСР регистрируется лист-мода, т.е. поток данных, состоящий из времени прихода и амплитуды импульсов по каждому каналу. Далее поток данных может быть записан на носитель и (или) обработан при помощи прикладных программ. В макете были реализованы 4 канала, из которых одновременно использовались только 2. Из лист-моды могут быть сформированы амплитудные спектры, вычислены совпадения или проведена другая математическая обработка.

Для проверки работоспособности системы использовались специальные кюветы, куда поступали азотнокислые растворы радионуклидов. К кюветам монтировались β - и γ -детекторы, кремниевый детектор α -частиц был встроен внутрь кюветы. В качестве образцов трансурановых элементов

Таблица 1. Активные изотопы продуктов деления

| Нуклид | Период полураспада, $T_{1/2}$, лет | Масса, г/т ОЯТ | Активность, Бк/т ОЯТ |
|----------------|-------------------------------------|----------------------|----------------------|
| Цезий-137 | $3 \cdot 10^1$ | 1367 | 4402 |
| Барий-137m | $4.9 \cdot 10^{-6}$ | 0.00021 | 4164 |
| Иттрий-90 | $7.3 \cdot 10^{-3}$ | 0.15 | 3024 |
| Стронций-90 | $2.9 \cdot 10$ | 588 | 3024 |
| Прометий-147 | 2.60 | 29 | 1012 |
| Цезий-134 | 2.10 | 19 | 932 |
| Криптон-85 | $1.1 \cdot 10$ | 20 | 291 |
| Европий-154 | 8.80 | 22 | 212 |
| Родий-106 | $9.4 \cdot 10^{-7}$ | $1.6 \cdot 10^{-6}$ | 209 |
| Рутений-106 | 1.00 | 1.7 | 209 |
| Празеодим-144 | $3.5 \cdot 10^{-5}$ | $3.5 \cdot 10^{-5}$ | 92 |
| Церий-144 | $8.2 \cdot 10^{-1}$ | 0.82 | 92 |
| Сурьма-125 | 2.70 | 1.8 | 69 |
| Европий-155 | 5.00 | 2.8 | 48 |
| Теллур-125m | $1.6 \cdot 10^{-1}$ | 0.024 | 16 |
| Самарий-151 | $9.0 \cdot 10^1$ | 15 | 14 |
| Тритий | $1.2 \cdot 10^1$ | 0.032 | 11.3 |
| Празеодим-144m | $1.4 \cdot 10^{-5}$ | $2.1 \cdot 10^{-7}$ | 1.4 |
| Технеций-99 | $2.1 \cdot 10^5$ | 1003 | 0.63 |
| Цирконий-93 | $1.5 \cdot 10^6$ | 922 | 0.086 |
| Углерод-14 | $5.7 \cdot 10^3$ | 0.14 | 0.022 |
| Серебро-110m | $6.8 \cdot 10^{-1}$ | 0.000011 | 0.002 |
| Йод-129 | $1.60 \cdot 10^7$ | 229 | 0.0015 |
| Ниобий-95 | $9.6 \cdot 10^{-2}$ | $9.2 \cdot 10^{-10}$ | $1.33 \cdot 10^{-6}$ |

Таблица 2. Актиноиды, содержащиеся в ОЯТ

| Изотоп | Молекулярная масса | $T_{1/2}$, лет | Масса, кг/т ОЯТ | Активность, ТБк/т ОЯТ* |
|--------------|--------------------|---------------------|---------------------|------------------------|
| Плутоний-241 | 241 | $1.44 \cdot 10^1$ | 1.1 | 4100 (b) |
| Плутоний-238 | 238 | $8.77 \cdot 10^1$ | 0.27 | 170 |
| Кюрий-244 | 244 | $1.81 \cdot 10^1$ | 0.052 | 160 |
| Америций-241 | 241 | $4.32 \cdot 10^2$ | 0.47 | 60 |
| Плутоний-240 | 240 | $6.54 \cdot 10^3$ | 2.7 | 23 |
| Плутоний-239 | 239 | $2.41 \cdot 10^4$ | 5.7 | 13 |
| Америций-243 | 243 | $7.38 \cdot 10^3$ | 0.18 | 1.30 |
| Кюрий-243 | 243 | $2.85 \cdot 10^1$ | 0.00047 | 0.90 |
| Кюрий-242 | 242 | $4.5 \cdot 10^{-1}$ | $2.1 \cdot 10^{-7}$ | 0.25 |
| Плутоний-242 | 242 | $3.76 \cdot 10^5$ | 0.75 | 0.11 |

Таблица 2. Окончание

| Изотоп | Молекулярная масса | $T_{1/2}$, лет | Масса, кг/т ОЯТ | Активность, ТБк/т ОЯТ* |
|--------------|--------------------|-------------------|---------------------|------------------------|
| Кюрий-245 | 245 | $8.5 \cdot 10^3$ | 0.0051 | $3.2 \cdot 10^{-2}$ |
| Нептуний-237 | 237 | $2.14 \cdot 10^6$ | 0.63 | $1.7 \cdot 10^{-2}$ |
| Уран-236 | 236 | $2.34 \cdot 10^7$ | 5 | $1.2 \cdot 10^{-2}$ |
| Уран-238 | 238 | $4.47 \cdot 10^9$ | 812 | $1.0 \cdot 10^{-2}$ |
| Плутоний-236 | 236 | 2.85 | $4.2 \cdot 10^{-7}$ | $8.3 \cdot 10^{-3}$ |
| Уран-232 | 232 | $6.89 \cdot 10^1$ | $2.7 \cdot 10^{-6}$ | $2.2 \cdot 10^{-3}$ |
| Уран-235 | 235 | $7.04 \cdot 10^8$ | 7.6 | $6.1 \cdot 10^{-4}$ |

Примечание. * α -распад, за исключением плутония-241.

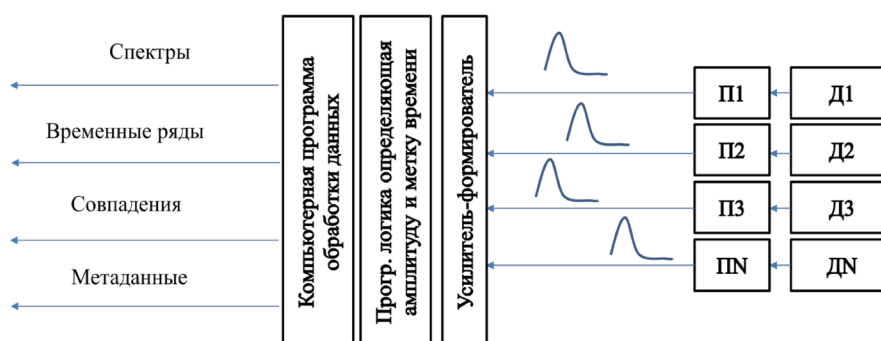


Рис. 1. Блок-схема многопараметрической установки, созданной по техническому заданию Радиевого института им. В. Г. Хлопина.

использовались растворы Am, Pu в одномолярной азотной кислоте, в качестве образцов ядер деления — водные растворы ^{137}Cs . Для определения концентрации Am, Pu в растворах использовались спектральные данные, полученные от погружного кремниевоего детектора. В качестве аналитического сигнала использовался интегральный счет погружного альфа-спектрометра. Для примера на рис. 2 в графическом виде представлены результаты испытаний для плутония.

Для тестирования системы в режиме совпадений использовались водные растворы ^{137}Cs . Для регистрации совпадений использовались электронный и рентгеновский каналы, т.к. корреляции между β -частицами и γ -квантами линии 662 кэВ не наблюдается из-за большого (2.5 мин) времени жизни уровня 662 кэВ. На рис. 3 приведен интерфейс программы для работы с данными МПСР. Интерфейс содержит 4 окна. В двух окнах — амплитудные спектры рентгеновского и электронного каналов, справа от них панели дискриминации. В левом нижнем углу расположено окно 2D диаграммы совпадений. Справа внизу отображается динамика вычисленного значения активности в виде графика зависимости активности (кБк) от

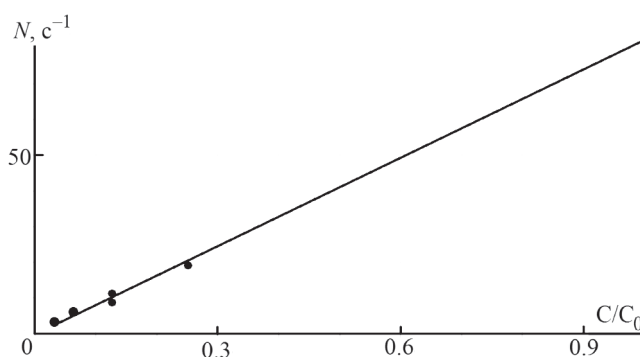


Рис. 2. Зависимость интегрального счета детектора от отношения концентрации измеряемого раствора к исходному для образцов плутония. Удельная активность исходного раствора 60 кБк/г.

времени (с). В данном случае окна дискриминации установлены так, что анализируется полностью весь диапазон зарегистрированных импульсов за исключением первых 5 каналов. Из окна диаграммы совпадений видно, что есть области с более высокой плотностью совпадений. Для электронов

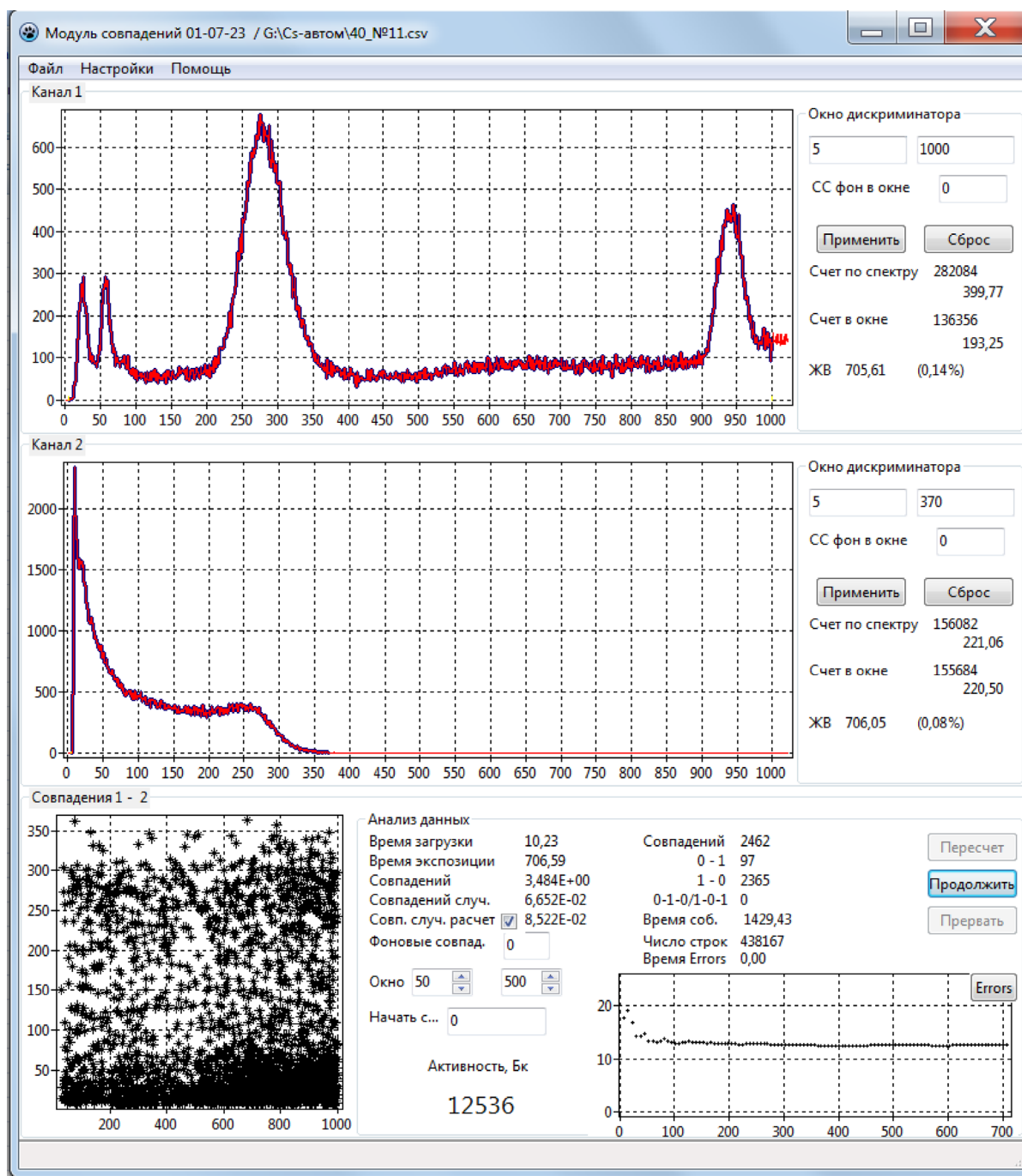


Рис. 3. Интерфейс программы для работы с данными МПСР.

(канал 2) — это область конверсионных электронов $\sim 220\text{--}300$ кэВ и область $\sim 0\text{--}100$ кэВ.

Из диаграммы не очевидно, что количество совпадений между линией рентгена 32 кэВ (200–300 каналы) и конверсионных электронов (220–300 каналы) выше, чем на других участках диаграммы. Для выяснения этого вопроса были рассчитаны совпадения различных областей рентгеновского спектра с двумя областями амплитуд (энергий)

электронов. Расчет по амплитудам рентгеновских импульсов велся с шагом 100 каналов, с окном дискриминации 100 каналов (рис. 4).

Из рис. 4 видно, что электронные импульсы с амплитудами в области конверсионных электронов не коррелируют ни с какими импульсами, соответствующими рентгеновским линиям. Напротив, для области электронных импульсов от 0 до 100 канала корреляция с линией рентгена 32 кэВ

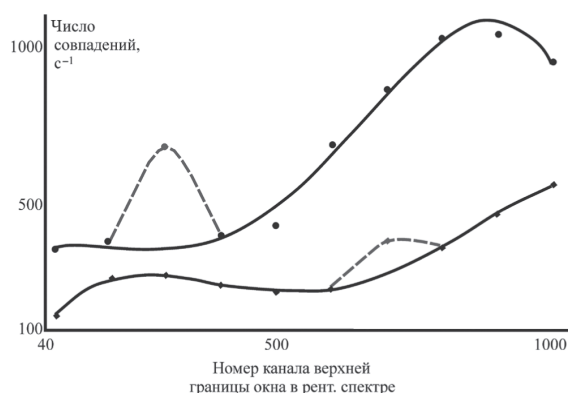


Рис. 4. Зависимость числа совпадений для различных областей амплитуд импульсов (энергий) по каналу 1 (рентгеновское излучение) и 2 (электроны): ♦ — кривая зависимости для диапазона амплитуд импульсов электронов (220–300 канал); • — кривая зависимости для диапазона амплитуд импульсов электронов (0–100 канал). Окно дискриминации для рентгеновских импульсов 100 каналов.

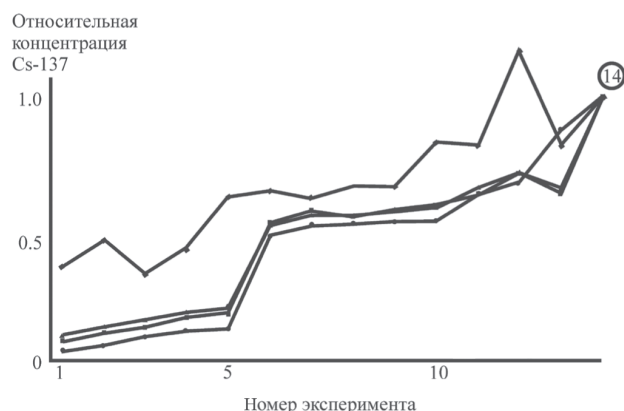


Рис. 5. Сводные результаты эксперимента по измерению концентрации ^{137}Cs в азотнокислом растворе: ♦ — совпадения; ▲ — конверсионные электроны; ■ — рентгеновское излучение; • — контрольные измерения аликвот на γ -спектрометре с HPGe-детектором. Ось X — номер эксперимента, ось Y — относительные единицы.

очевидна. По мнению авторов, это свидетельствует о том, что регистрируются совпадения рентгеновского излучения 32 кэВ с многократно рассеянными электронами, и существенная часть зарегистрированных совпадений представляют собой излучение, рассеянное в защите, а имеющиеся локальные максимумы на кривых соответствуют в одном случае корреляции линии 32 кэВ с рассеянными в установке электронами, а в другом — совпадением между рассеянными рентгеновскими квантами и электронами. Положение и величина максимумов, видимо, сильно зависят от геометрии установки. При этом значения активности, полученные методом совпадений, соответствуют по порядку величины (50–70%) реальной активности кюветы.

На рис. 5 приведены результаты эксперимента с водными растворами ^{137}Cs различной концентрации в виде диаграммы, где по оси X — номера экспериментов (соответствуют хронологическому порядку испытаний), а по оси Y — относительные единицы, к которым приведены различные типы данных, которые получены в результате измерений при помощи МПСР и в контрольных измерениях с использованием γ -спектрометра DSPec-50 производства ORTEC с HPGe-детектором. Для контрольных измерений отбирались аликвоты растворов из ячеек после измерений в ячейках. Из рисунка видно, что все спектроскопические измерения дают похожие результаты. Кривая совпадений демонстрирует существенные отличия в поведении, что, возможно, обусловлено малой статистикой совпадений.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, создана многопараметрическая система регистрации ионизирующих излучений

(МПСР). Эксперименты с азотнокислыми и водными модельными растворами показали работоспособность системы для мониторинга гидрометаллургического передела ОЯТ. Прямое измерение удельной (объемной) активности растворов при помощи МПСР возможно, но требует модернизации системы, методики измерений и дальнейших экспериментов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Колобашкин В.М., Рубцов П.М., Ружанский П.А., Сидоренко В.Д. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива: справочник. М.: Энергоатомиздат, 1983.
2. Верховская Е.А., Ершов К.В., Мишина Н.Е. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2022. Т. 86. № 9. С. 1343; Verkhovskaya E.A., Ershov K.V., Mishina N.E. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2022. V. 86. No. 9. P. 1111.
3. Алексеев И.Е., Белов С.Е., Ершов К.В. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2022. Т. 86. № 8. С. 1172; Alekseev I.E., Belov S.E., Ershov K.V. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2022. V. 86. No. 8. P. 971.
4. Hequn Lia, Zhiqiang Xu, Weidong Wang et al. // Miner. Eng. 2019. V. 131. P. 14.
5. Афонин А.А., Бурмистров Ю.М., Викентьев И.В. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2021. Т. 85. № 10. С. 1374; Afonin A.A., Burmistrov Y.M., Vikentyev I.V. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2021. V. 85. No. 10. P. 1059.
6. Фролов В.В. Ядерно-физические методы контроля делящихся веществ. М.: Атомиздат, 1989.
7. Reilly D., Ensslin N., Smith H. Jr. Passive nondestructive assay of nuclear materials. Washington, 1991.

A multiparametric system to determine the composition of spent fuel by analyzing its radiation

K. V. Ershov^{1, 2, *}, N. E. Mishina¹, D. V. Timonin¹

¹*V.G. Khlopin Radium Institute, Saint-Petersburg, 194021, Russia*

²*B.P. Konstantinov Petersburg Nuclear Physics Institute, National Research Centre*

«Kurchatov Institute», Gatchina, 188300, Russia

** e-mail: ershov_kv@pnpi.nrcki.ru*

A multiparametric recording system of radiation was created at the Khlopin Radium Institute to determine the composition of spent nuclear fuel to introduce it into fuel processing production cycles, in particular, to analyze the composition of liquids in hydrometallurgical conversion. The main task was to create a universal device (hardware and software complex) that can be adapted to determine the concentration of radioactive isotopes in various technological cycles by replacing detectors and/or reconfiguring software.