

## ИЗМЕРЕНИЕ МАССЫ УРАНА В СЕРДЕЧНИКАХ ИЗ СПЛАВА $UAl_x$ НЕРАЗРУШАЮЩИМ МЕТОДОМ МНОГОЭНЕРГЕТИЧЕСКОЙ ПЛОТНОМЕТРИИ

© 2013 Ю.А. Кушнир, Ю.И. Лещенко, Д.А. Леоненко, А.А. Леоненко, В.С. Романовский

ОАО «ГНЦ НИИАР», Ульяновская область. Димитровград-10

Поступила в редакцию 26.11.2013

Описана установка, позволяющая проводить измерения распределения массы урана в реакторных мишенях из сплава урана и алюминия. Для измерений использовался метод неразрушающего анализа, основанный на просвечивании мишени рентгеновским излучением источника на основе радионуклида  $^{55}Fe$ .

Ключевые слова: реакторная мишень, радиационная плотнометрия, спектр пропускания, источник рентгеновского излучения.

Неразрушающий анализ (НРА) позволяет проводить измерения различных параметров материала, не нарушая при этом целостность самого материала. Разработанная установка УИРУМ-С способна измерять распределение массы урана по длине сердечника мишени из сплава  $UAl_x$ .

В установке используется метод просвечивания сердечника рентгеновским излучением. В качестве источника рентгеновского излучения (РИ) используется радиоизотопный источник на основе изотопа  $^{55}Fe$ , испускающий рентгеновское излучение с непрерывным спектром в диапазоне 30-220 кэВ.

Кроме самой экспериментальной установки, разработана методика выполнения измерений (МВИ), а также созданы алгоритмы вычисления локальной массы урана (ЛМУ) в сердечниках мишеней. Проведены метрологические исследования с использованием комплектов контрольных образцов. Для обработки измеряемых спектров и управления процессом измерения разработано специальное программное обеспечение.

### МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ МАССЫ УРАНА В ОБРАЗЦАХ

В основу метода положен принцип измерения пропускания образцом внешнего рентгеновского излучения от изотопа  $^{55}Fe$  с широким энер-

*Кушнир Юрий Алексеевич, ведущий научный сотрудник отделения метрологии и измерительной техники.*

*E-mail: orip@niiar.ru*

*Лещенко Юрий Иосифович, старший научный сотрудник реакторного исследовательского комплекса.*

*E-mail: orip@niiar.ru*

*Романовский Вадим Сергеевич, младший научный сотрудник реакторного исследовательского комплекса.*

*E-mail: orip@niiar.ru*

*Леоненко Дмитрий Анатольевич, инженер 1 категории реакторного исследовательского комплекса.*

*E-mail: orip@niiar.ru*

*Леоненко Александр Анатольевич, ведущий инженер реакторного исследовательского комплекса.*

*E-mail: orip@niiar.ru*

гетическим спектром в диапазоне (30-220) кэВ. Локальная масса урана в сканируемом участке определяется по измеренному спектру пропускания, который определяется как отношение потока квантов, прошедшего через образец, к потоку без образца (опорному). Поскольку опорный спектр излучения широкий и непрерывный, в результате измерения образца получается набор (спектр) значений коэффициентов пропускания, вычисленных для каждого канала анализатора (канал соответствует энергии 1,4 кэВ.) Каждому каналному значению коэффициента пропускания соответствует вычисленное значение ЛМУ на сканируемом участке сердечника. Результатом измерения является среднее по спектру масс в определенном диапазоне каналов (энергий) значение ЛМУ. Усреднение по нескольким десяткам каналных значений, измеренных одновременно, обеспечивает надежность и точность результатов измерения.

### ОПИСАНИЕ АЛГОРИТМОВ ВЫЧИСЛЕНИЯ

Интенсивность моноэнергетического пучка гамма-излучения  $I$ , прошедшего через слой поглощающего материала толщиной  $x$ , уменьшается по сравнению с начальной интенсивностью пучка  $I_0$  в соответствии с уравнением [1]

$$I = I_0 \cdot \exp(-\mu \cdot x) = I_0 \cdot \exp\left(-\frac{\mu}{\rho} \cdot m\right), \quad (1)$$

где  $\mu$  – линейный коэффициент ослабления,  $m^{-1}$ ;

$x$  – толщина образца, м;

$\rho$  – плотность вещества,  $kg/m^3$ ;

$m$  – поверхностная плотность,  $kg/m^2$ ;

$\frac{\mu}{\rho}$  – массовый коэффициент ослабления,  $m^2/kg$ .

Для сложных веществ, состоящих из несколь-

ких элементов, коэффициент  $\frac{\mu}{\rho}$  определяется через массовые коэффициенты составляющих элементов.

Для сердечника мишени, который изготовлен из двухэлементного сплава  $UAl_x$  справедливо выражение:

$$\ln T = -m_U * \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_U - m_{Al} * \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Al}, \quad (2)$$

где  $m_U$  и  $m_{Al}$  – массы урана и алюминия на площади  $S$  (площадь сердечника, просвечиваемая пучком).

Выражение (2) можно использовать для определения массы урана и алюминия при известной геометрии пучка, путём измерения спектров пропускания исследуемых образцов и контрольных образцов поверхностной массы урана и алюминия (эталонов).

Разработан алгоритм определения спектра масс в просвечиваемых объемах исследуемого образца на основе паспортных данных по его диаметру и справочных данных по плотности алюминия, урана и основного интерметаллида  $UAl_x$  в сплаве. Тогда к уравнению (2) добавляется уравнения баланса массы (объемов) урана и алюминия в просвечиваемом объеме. Локальная масса урана в просвечиваемом объеме стержневого сердечника определяется как среднее значение для выбранного диапазона энергий в спектре масс.

## ОПИСАНИЕ ИЗМЕРИТЕЛЬНОЙ УСТАНОВКИ

Установка предназначена для измерения и анализа характеристик распределения локальной массы урана (ЛМУ) по длине сердечника с последующей отбраковкой сердечников с критическими значениями неоднородностей.

Основными узлами установки являются источник рентгеновского излучения РЖ55-03 на основе изотопа  $^{55}Fe$ , сцинтилляционный детектор с анализатором спектра гамма излучений, а также устройство перемещения сердечника.

На рис. 1 показано расположение привода и измерительного узла, а на рисунке 2 показано относительное размещение блоков измерительного узла.

Блок схема управления шаговыми двигателями и анализатором излучений источника приведена на рис. 3.

## СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЙ КОМПЛЕКС

Прошедший через образец пучок рентгеновского и гамма-излучения регистрируется анализатором спектров, который состоит из двух блоков:

- спектроскопического сцинтилляционного детектора с кристаллом  $NaI(Tl)$  размером 2Ч2 дюйма типа 905-3 фирмы ORTEC, помещенного в защитный свинцовый корпус;
- анализатора спектра ORTEC digiBASE.

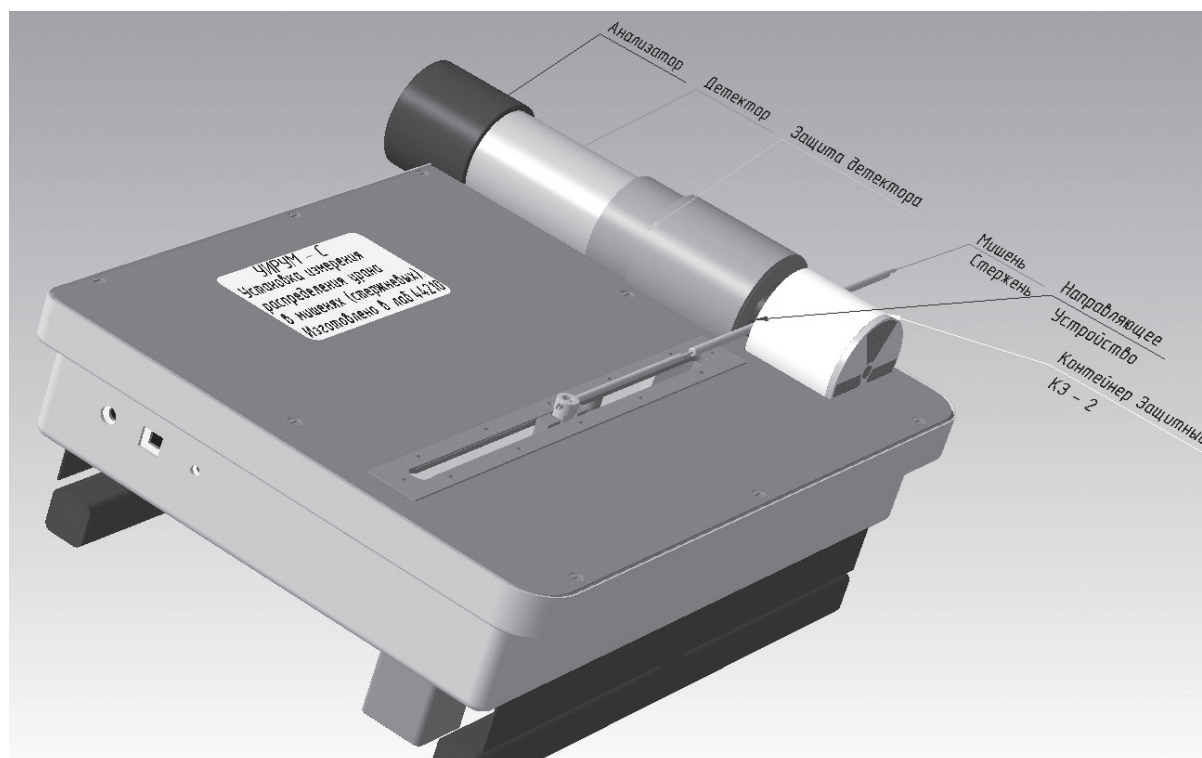
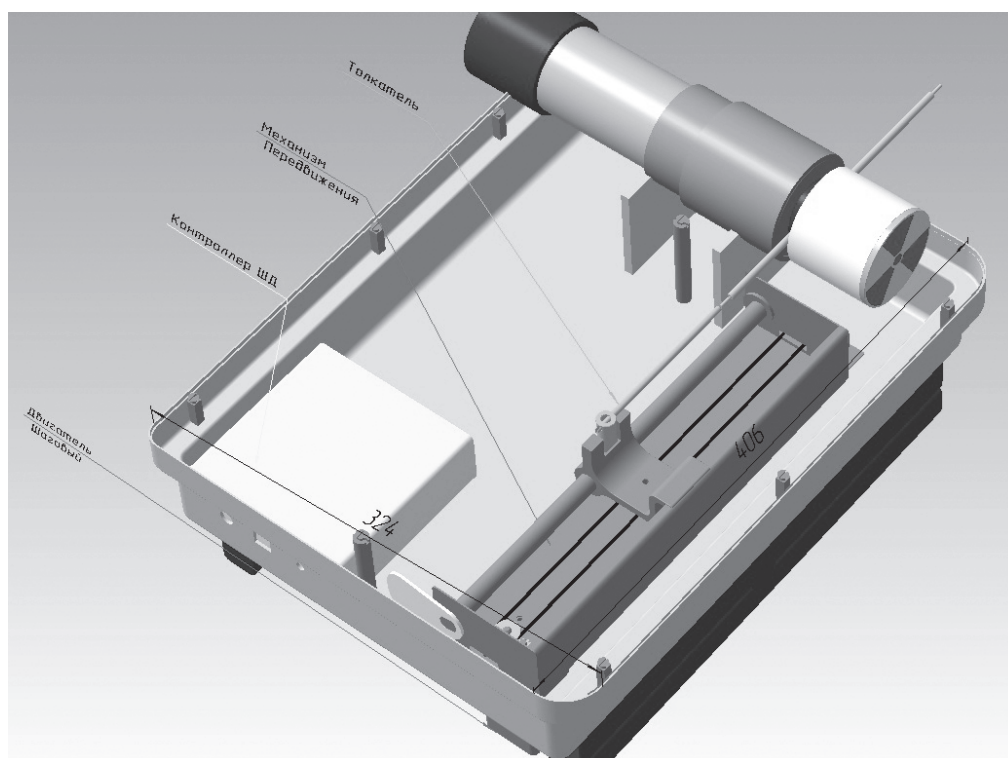
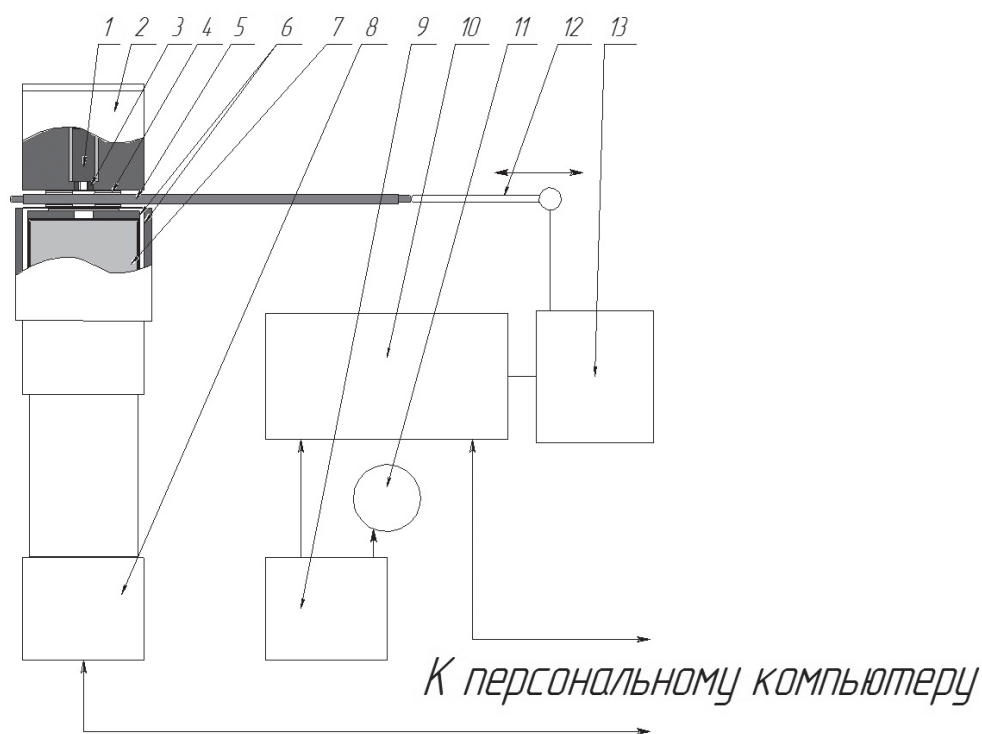


Рис. 1. Измерительный блок в сборе



**Рис. 2.** Размещение блоков измерительного узла установки УИРУМ-С



**Рис. 3.** Блок схема установки:

1 – источник РИ; 2 – контейнер защитный; 3 – коллиматор вольфрамовый; 4 – направляющая втулка; 5 – сердечник  $Al_2O_3$ ; 6 – защита детектора; 7 – сцинтиллятор NaI(Tl); 8 – анализатор digiBASE; 9 – блок питания контроллера ШД; 10 – контроллер ШД; 11 – вентилятор; 12 – толкатель; 13 – привод толкателя с ШД

Анализатор работает в комплекте с программой MAESTRO, входящей в семейство программных продуктов CONNECTION-32, поставляемых в комплекте с анализатором. На базе этих продуктов было разработано прикладное

специальное программное обеспечение SPCU, в котором реализованы управление установкой и методика выполнения измерений (МВИ) локальной массы урана.

### СИСТЕМА ПЕРЕМЕЩЕНИЯ ОБРАЗЦОВ

Привод для перемещения сердечников состоит из следующих узлов:

- модуля ремённого привода горизонтального перемещения толкателя с шаговым двигателем;
- контроллера управления шаговыми двигателями (ШД) TSMC;
- вентилятора для охлаждения контроллера.

Горизонтальное перемещение сердечника осуществляется в одном направлении с помощью толкателя модуля привода с шаговым двигателем. Шаговый двигатель посредством контроллера управляется с помощью программы SPCU, также координирующей работу анализатора. Привод обеспечивает перемещение толкателя на длине 200 мм. Калибровка привода и определение коэффициентов преобразования осуществляется автоматически после запуска программы.

### ГЕНЕРАТОР РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Источник размещён в защитном контейнере (ЗК). В выходное отверстие ЗК установлен вольфрамовый коллиматор (ВК) с отверстием прямоугольной формы размерами 5х2 мм. На выходе из коллиматора рентгеновский луч проходит через направляющий диск, в котором размеща-

ется испытуемый сердечник.

Активная часть источника (хлорид железа-55 с активностью около 100 ГБк) находится внутри полости (диаметром 5 мм и глубиной 6 мм) в вольфрамовой подложке диаметром 10 мм. Подложка устанавливается в капсулу с «окном» из нержавеющей стали толщиной 0,3 мм. «Окно» и крышка приварены к корпусу аргонодуговой сваркой.

Источник излучения соответствует классу прочности ИСО “/99/В2 11111” по ГОСТ Р 52241-2004. Основная особенность этого источника заключается в том, что вольфрамовая втулка обеспечивает формирование луча рентгеновского излучения, выходящего в направлении открытого отверстия подложки, и проходящего через окно капсулы.

Реальный препарат, который использован для изготовления источника, кроме изотопа  $^{55}\text{Fe}$  содержит примеси радиоактивных изотопов в основном  $^{54}\text{Mn}$  и  $^{60}\text{Co}$ . Несмотря на малое содержание примесей  $^{60}\text{Co}$  и  $^{54}\text{Mn}$  в препарате, гамма-излучение этих изотопов создаёт значительную подложку в области энергий рентгеновского излучения. Этот спектр подложки имеет сложную структуру, которая обусловлена комптоновским рассеянием жёсткого гамма-излучения нескольких энергий (рис. 4). Форма подложки от примесей учитывается в методике.

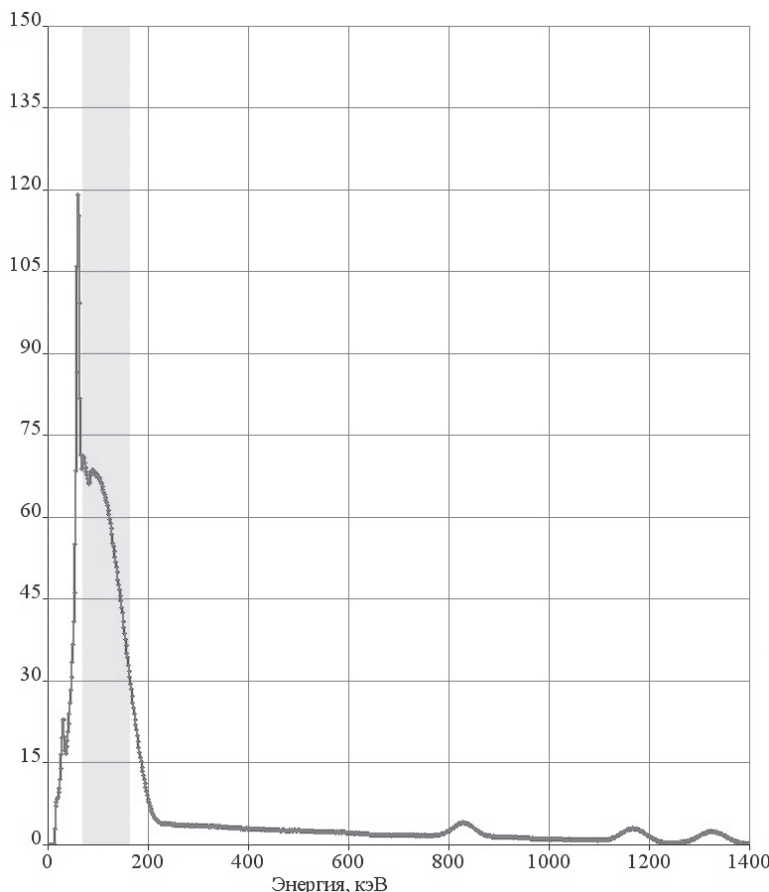


Рис. 4. Спектр излучения источника РЖ55-03-06

## СТАНДАРТНЫЕ ОБРАЗЦЫ И СПЕЦИАЛЬНЫЕ ИСТОЧНИКИ

Для подготовки установки и энергетической калибровки спектрометра изготовлены специальные изотопные источники, а для метрологической аттестации МВИ изготовлены и аттестованы контрольные образцы.

Набор из 4 источников гамма излучения включает три источника одной конструкции: основной источник генератора луча РИ типа РЖ55-03, вспомогательные источники ГМн54-03 и ГКО60-03, которые используются для определения формы спектров комптоновского рассеяния для гамма излучения изотопов  $^{54}\text{Mn}$  и  $^{60}\text{Co}$ . Четвёртый источник с  $^{241}\text{Am}$  типа ОСГИ встроен в защиту детектора и служит для стабилизации энергетической шкалы всех измеряемых спектров.

Комплект контрольных образцов предприятия (КОП) предназначен для исследования характеристик измерительной установки и аттестации МВИ.

Разработаны два типа контрольных образцов:

- КОП поверхностной плотности урана (КОП-ппу) металлического с обогащением 90% по  $^{235}\text{U}$ ;

- комплект образцовых сердечников из сплава  $\text{Al}_x\text{U}$ , которые аттестованы как контрольные образцы предприятия (КОП) штатной локальной массы урана (КОПС41), неоднородности урана (КОПС700) и диапазона ЛМУ (КОПС701).

Комплект из 6 КОПпу содержит урановые образцы в виде дисков диаметром примерно 10 мм из металлического урана в полиэтиленовом корпусе типа АКН или АКН-Т-10. Основной метрологической характеристикой является поверхностная плотность урана. Комплект перекрывает диапазон поверхностных плотностей урана металлического 0,05 - 0,5 г/см<sup>2</sup>. Эти образцы использованы для измерения спектра коэффициента массового ослабления ( $\mu/\text{с}$ ) урана – основного параметра, необходимого для вычисления массы урана по результатам просветки.

Три КОП используются для проведения метрологических исследований и аттестации МВИ.

## ИЗМЕРЕНИЕ СПЕКТРА КОЭФФИЦИЕНТА ПРОПУСКАНИЯ

Источник РЖ55-03 позволяет реализовать процедуру определения непрерывного спектра коэффициента пропускания  $K_n(E)$  в этом диапазоне энергий путём поканального деления скоростей счета двух измеряемых спектров

$$K_n(E_i) = \frac{S(E_i)}{R(E_i)}, \quad (5)$$

где  $S(E_i)$  – скорость счета в  $i$ -ом канале спектра рентгеновского излучения, прошедшего через образец;  $R(E_i)$  – скорость счета в  $i$ -ом канале опорного спектра рентгеновского излучения, измеренный без образца;  $E_i$  – энергия в  $i$ -ом канале.

В спектрометрическом сцинтилляционном детекторе фотонов с кристаллом  $\text{NaI(Tl)}$  при регистрации рентгеновского и гамма излучений реального источника РЖ55-03-06 аппаратурный спектр в энергетическом диапазоне действия рентгеновских лучей является суперпозицией нескольких спектров.

При измерении сердечника с ураном к спектру прошедшего через сердечник излучения источника примешивается спектр гамма излучения урана-235 (спектр объекта). Фоновые спектры должны вычитаться из аппаратурных измеренных спектров при вычислении спектра пропускания. Учет спектра комптоновского рассеивания гамма излучения  $^{54}\text{Mn}$  и  $^{60}\text{Co}$  производится с помощью двух специальных источников с этими изотопами. При расчёте коэффициента пропускания также учитывается распад изотопов  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  и  $^{60}\text{Co}$ .

Вычисление спектров коэффициента пропускания в процессе сканирования сердечника в программе SPCU проводится по формуле

$$K_n(E_i) = \frac{\left( S(E_i) - B_i(E_i) - \frac{A_S^{Mn}}{A_{Mn}} \cdot M_{Mn}(E_i) - \frac{A_S^{Co}}{A_{Co}} \cdot M_{Co}(E_i) \right) \cdot \exp\left( -\frac{L \mu(2)}{T_{1/2}^{Fe55}} \cdot (\tau_S - \tau_R) \right)}{R(E_i) - B(E_i) - \frac{A_R^{Mn}}{A_{Mn}} \cdot M_{Mn}(E_i) - \frac{A_R^{Co}}{A_{Co}} \cdot M_{Co}(E_i)}, \quad (6)$$

где  $A_S^{Mn}$  – площадь фотопика примеси  $^{54}\text{Mn}$  в спектре образца;

$A_S^{Co}$  – площадь фотопика примеси  $^{60}\text{Co}$  в спектре образца;

$A_R^{Mn}$  – площадь фотопика примеси  $^{54}\text{Mn}$  в опорном спектре;

$A_R^{Co}$  – площадь фотопика примеси  $^{60}\text{Co}$  в опорном спектре;

$A_{Mn}$  – площадь фотопика  $^{54}\text{Mn}$  в примесном спектре;

$A_{Co}$  – площадь фотопика  $^{60}\text{Co}$  в примесном спектре;

$T_{1/2}^{Fe55}$  – период полураспада изотопа  $^{55}\text{Fe}$ ;

$\tau_S$  и  $\tau_R$  – даты измерения опорного спектра и спектра образца.

Для стандартных образцов урана и алюминия формулы для вычисления спектров коэффициента пропускания аналогичны.

## ПРЕДСТАВЛЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ИЗМЕРЕНИЙ

На рис. 5 приведен в качестве примера спектр локальной массы урана и среднее значение ЛМУ в области интереса, полученной при обработке гамма-спектров просветки сердечника КОПС41 с содержанием урана около 18%.

В настоящее время испытание одного сердечника составляет около 16 минут (32 позиции через 5мм по 30с в каждой). По окончании испытания выдаётся в EXCEL отчёт, в котором указаны общие сведения о сердечнике, распределение ЛМУ в цифровом виде, измеренные характеристики распределения (среднее ЛМУ, СКО ЛМУ, максимальное ЛМУ, относительная неоднородность, доля урана, общая масса урана). Выдаётся и рисунок распределения ЛМУ по длине сердечника.

## МЕТРОЛОГИЧЕСКИЕ ИСПЫТАНИЯ И АТТЕСТАЦИЯ МВИ

Целью аттестации являлось установление метрологических характеристик методики. Установлению подлежали границы погрешности (для доверительной вероятности  $P=0,95$ ) при однократном измерении на участке сканирования для следующих величин:

- Локальной массы урана;
- Значения неоднородности распределения локальной массы урана;
- Суммарной массы урана в сердечнике.

При метрологических исследованиях методики проведена проверка нормальности распределения в выборках для значений канальной массы урана  $m$  в спектре масс (в области интереса), а также значений локальной массы урана в вы-

борках результатов параллельных измерений. С помощью программы “Проверка критерия нормальности”, в которой используется критерий согласия Пирсона, установлено, что и канальные массы  $m$ , и локальные массы МУ, подчиняются нормальному закону.

Характеристики погрешности измерения локальной массы урана на участке сканирования закономерно зависят от статистики счета при измерениях, т.е. от длительности экспозиции. Доверительные границы полной относительной погрешности значений МУ, погрешности значений максимальной инструментальной неоднородности и погрешности суммарной массы урана в сердечнике при доверительной вероятности  $P=0,95$  приведены в таблице 1.

Измеренное значение суммарной массы урана по длине сердечника имеет систематическое смещение порядка 8%, не зависящее от длительности экспозиции. Оно обусловлено неточным знанием апертуры коллиматора излучения. Указанное систематическое смещение устранено введением поправочного множителя  $K_{см}=1,081$ .

Проведенные измерения опытных партий мишеней и стержней из уран-алюминиевого сплава подтвердили работоспособность разработанной методики и установки, и позволили выявить и отбраковать образцы с неоднородным содержанием урана.

Опытная установка УИРУМ-С прошла производственные испытания более 2 месяцев в технологическом режиме 100% контроля более 1000 произведённых сердечников. В 2012 г проведены процедуры метрологического исследования и метрологической аттестации установки и МВИ, а метрологическая служба института выдала свидетельство об аттестации МВИ.

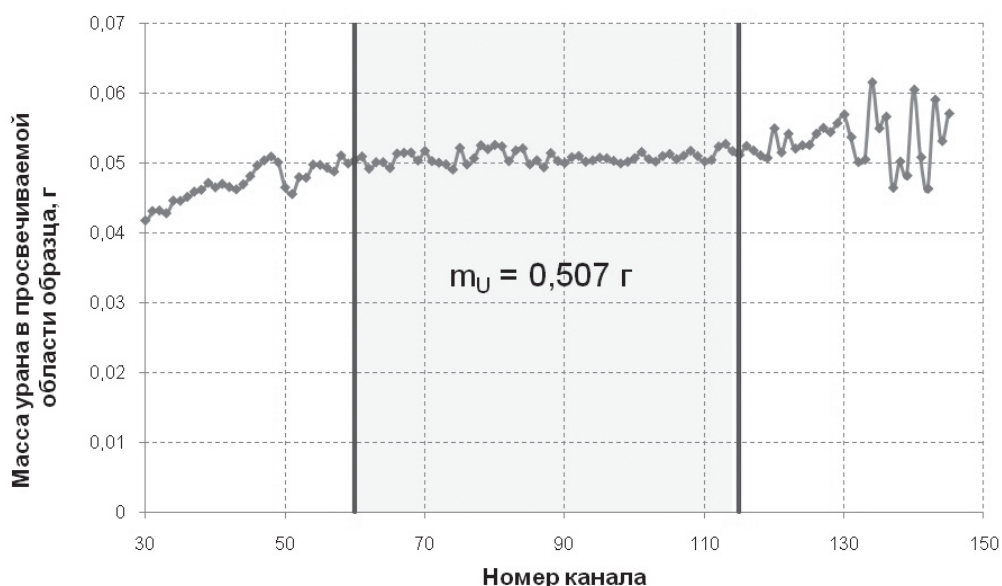


Рис. 5. Спектр локальной массы урана в одной позиции по длине контрольного образца КОПС41

**Таблица 1.** Основные характеристики погрешности методики в зависимости от длительности экспозиции,  $t_{\text{эксп.}}$   $P=0,95$  (на 01.08.12)

$t_{\text{эксп.}}$ с	$\delta(M_U)$ , %	$\delta(H_U)$ , %	$\delta(M_U)$ , %
20	$\pm 4,5$	4,5	$\pm 1$
40	$\pm 3,2$	3,2	$\pm 0,8$
90	$\pm 2$	2	$\pm 0,7$

Проведенные метрологические испытания и аттестация МВИ подтвердили принципиальную работоспособность методики и установок.

МВИ обеспечивает достаточно точные неразрушающие измерения массы контролируемого нуклида (в частности урана) как на сканируемом участке длиной порядка 5 мм (локальная масса), так и на всей рабочей длине исследуемого объекта в целом, причем результат измерения получают в абсолютных единицах (в граммах делящегося вещества).

Разработанная МВИ может быть модифицирована для измерения мишеней, содержащих вместо урана другие элементы, в частности, трансплутониевые элементы. Кроме того, разработанная методика может с успехом использоваться для выполнения измерений локальной массы элементов применительно к мишеням нецилиндрической формы (например, плоских). Это потребует изменения конструкции узла перемещения мишени и алгоритма обработки данных.

Следует отметить, что при использовании гамма детекторов типа ППД с анализатором в несколько тысяч каналов для модифицированной установки с аналогичным способом измерения локальной массы ЯМ, позволит значительно по-

высить достоверность, надежность и точность результата измерения, не повышая выхода внешнего источника  $^{55}\text{Fe}$ . Использование ППД позволит одновременно реализовать, например, способ измерения концентрации ядерного элемента методом плотнометрии по К-краю поглощения рентгеновского излучения, а также реализовать контроль изотопных соотношений для некоторых изотопов тяжёлого элемента мишени.

*Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации.*

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. D. Reilly et al., "Passive Non-destructive Assay of Nuclear Materials", NUREG /CR-5550, LA-UR-90-732, March 1991.
2. Table of Radioactive Isotopes. URL: <http://ie.lbl.gov/toi/nuclide.asp?iZA=260055>. (дата обращения 14.10.2013).
3. Таблица радионуклидов (Table of radionuclides), Le Laboratoire National Henri Becquerel. URL: [http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/DDEPdata.htm](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm) (дата обращения 14.10.2013).
4. Nuclear Data Standards for Nuclear Measurements. 1991 NEAND/INDC Nuclear Standards File. Editor H. Conde, Uppsala University. 1992. OECD.

#### MEASUREMENT OF URANIUM MASS IN UAL<sub>x</sub> FUEL MEATS BY A NON-DESTRUCTIVE METHOD OF MULTI-ENERGY DENSITOMETRY

© 2013 Yu.A. Kushnir, Yu.I. Leshchenko, D.A. Leonenko, A.A., Leonenko V.S. Romanovsky

JSC SSC RIAR, Ulyanovsk Region, Dimitrovgrad-10

The paper describes a device to measure the uranium mass distribution in reactor targets made of uranium and aluminum alloy. A non-destructive assay is applied based on transmitting a target with a  $^{55}\text{Fe}$ -based X-ray source.

Key words: reactor target, radiation densitometry, transmission spectrum, X-ray source

*Yury Kushnir, Leading Research Fellow, Metrology Division.*

*E-mail: [orip@niiar.ru](mailto:orip@niiar.ru)*

*Yury Leshchenko, Senior Research Fellow, Reactor Complex.*

*E-mail: [orip@niiar.ru](mailto:orip@niiar.ru)*

*Vadim Romanovsky, Associate Research Fellow, Reactor complex. E-mail: [orip@niiar.ru](mailto:orip@niiar.ru)*

*Dmitry Leonenko, Engineer, Reactor Complex.*

*E-mail: [orip@niiar.ru](mailto:orip@niiar.ru)*

*Alexandr Leonenko, Leading Engineer, Reactor Complex.*

*E-mail: [orip@niiar.ru](mailto:orip@niiar.ru)*