

Определение чувствительности активного нейтронного метода при контроле содержания ядерно-опасных делящихся нуклидов в бочках с цементированными радиоактивными отходами

Работа посвящена экспериментальному определению чувствительности активного нейтронного метода определения содержания ядерно-опасных делящихся нуклидов (ЯОДН) в упаковках радиоактивных отходов в виде 200-л бочек, заполненных цементом. Результаты измерений позволили определить минимальную детектируемую массу ЯОДН в количестве 10 мг (по ^{235}U) при потоке импульсного нейтронного генератора $5 \cdot 10^8$ н/с, длительности измерений 200 с и использовании двух модулей детектирования нейтронов на основе систем нейтронного мониторинга ТСРМ82.100 или ТСРМ82.300.

Ключевые слова:

радиоактивные отходы, ядерно-опасные делящиеся нуклиды, метод дифференциального затухания, импульсный нейтронный генератор, минимальная детектируемая масса.

**Д.И.Юрков, О.А.Герасимчук,
А.Ю.Пресняков, В.П.Тарасов,
М.Д.Каретников, В.Ю.Дроздов,
А.Д.Мазницин, В.Ф.Батяев**

ФГУП «ВНИИА им. Н.Л.Духова», г. Москва

М.В.Батяева

АО «ВНИИНМ», г. Москва

Е.В.Беспала

АО «ОДЦ УГР», г. Северск, Томская область

Э.М.Никитин, А.Н.Рыбин,

Д.А.Семенов, А.И.Ермаков

АО «ТВЭЛ», г. Москва

Д.Ю.Байдаров

ГК «Росатом», г. Москва

Перед передачей радиоактивных отходов (РАО) на захоронение Национальному оператору требуется подтверждение их соответствия установленным критериям приемлемости, перечень которых приведен в федеральных нормах и правилах НП-093-14 [1]. Одним из критериев приемлемости, направленным на обеспечение ядерной безопасности пункта захоронения РАО, является содержание в них ядерно-опасных делящихся нуклидов (ЯОДН) – прежде всего изотопов ^{235}U и ^{239}Pu , а также других четно-нечетных изотопов урана и трансурановых элементов.

Достоверный контроль содержания ЯОДН в передаваемых на захоронение упаковках РАО с применением пассивных методов на базе гамма-спектрометрии невозможен, поскольку они не обеспечивают приемлемую точность и чувствительность измерений из-за низких квантовых выходов гамма-излучения ЯОДН, неверного учета самопоглощения их гамма-излучения в неомогенном материале РАО и высокого фона от других гамма-излучающих нуклидов, содержащихся в РАО.

В качестве альтернативных методов неразрушающего контроля содержания ЯОДН в упаковках РАО могут быть использованы

активные нейтронные методы, которые в различных модификациях давно применяются в научных исследованиях, контроле ядерных материалов [2,3] и нашли прикладное применение в каротаже урановых месторождений [4].

Одним из наиболее эффективных активных нейтронных методов для контроля делящихся нуклидов является метод дифференциального затухания, в основе которого лежит использование импульсного источника нейтронов с замедлителем (рис.1). В случае применения метода дифференциального затухания для контроля содержания ЯОДН в упаковках РАО в качестве замедлителя нейтронов выступает сам материал РАО и материал стенки контейнера. Замедленные до тепловых энергий нейтроны вызывают вынужденное деление ЯОДН в составе РАО, а образующиеся быстрые нейтроны деления регистрируются специальными детекторами на основе ^3He -счетчиков, нечувствительными к фоновому гамма-излучению РАО. Размещение детекторов в кадмиевых чехлах делает их нечувствительными к тепловым нейтронам. Полученные в процессе измерений временные зависимости откликов детекторов позволяют разделить по времени регистрацию первичных

Схема обнаружения ЯОДН активным нейтронным методом (метод дифференциального затухания)

Временная зависимость отклика детектора нейтронов между импульсами ИНГ

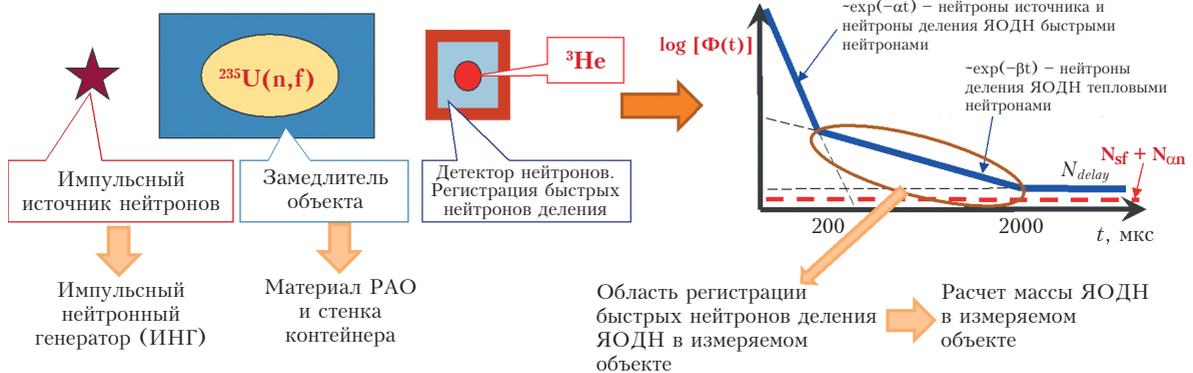


Рис.1. Принципиальная схема метода дифференциального затухания обнаружения ЯОДН в объектах контроля.

нейтронов от импульсного источника и мгновенных нейтронов деления, испускаемых при облучении ЯОДН. Повышенная скорость счета нейтронов в определенном временном окне свидетельствует о наличии ЯОДН в исследуемом объекте.

На основе метода дифференциального затухания в ФГУП «ВНИИА» [5] и в АО «ГНЦ РФ-ФЭИ» [6] разработаны опытные и лабораторные образцы установок для измерений содержания ЯОД в упаковках РАО. В качестве источника первичных нейтронов в разработанных установках использовался импульсный нейтронный генератор (ИНГ), испускающий нейтроны с энергией 14,1 МэВ. Однако оценка метрологических характеристик метода оказалось непростой задачей из-за высокой чувствительности результатов измерений к параметрам матрицы и упаковки РАО, а также к характеристикам стандартных образцов, используемых для проведения испытаний.

Получение метрологических характеристик метода дифференциального затухания для измерений содержания ЯОДН в упаковках РАО должно идти планомерно для матриц РАО различного состава и упаковок различного типа. В этой связи в качестве первого шага предлагается рассмотреть наиболее типичный случай размещения цементированных РАО в металлической бочке объемом 200 л. Данная работа посвящена определению чувствительности метода, характеризующейся минимальной детектируемой массой ЯОДН при их размещении в центре бочки.

Описание лабораторной установки

Для выполнения исследований метрологических характеристик использовали лабораторную установку для контроля ЯОДН в упаковках РАО активным нейтронным методом, которая имела модульное исполнение – состояла из отдельно расположенного

ИНГ и двух модулей детектирования нейтронов. ИНГ располагался перпендикулярно оси бочки напротив ее центра. Модули детектирования нейтронов располагались вокруг бочки под углами 180 и 90 градусов относительно ИНГ (рис.2).

Лабораторная установка для контроля ЯОДН в упаковках РАО была разработана на основе изделий, серийно выпускаемых в ФГУП «ВНИИА», включая:

1. Импульсный нейтронный генератор типа ИНГ-031 [8], работающий в следующем режиме: длительность нейтронного импульса – 1 мкс, частота следования импульсов – 12 Гц, поток нейтронов со средней энергией 14,1 МэВ – $5 \cdot 10^8$ н/с;

2. Каждый модуль детектирования нейтронов включал системы нейтронного мониторинга типа ТСРМ82.100 (2 шт.) и ТСРМ82.300 (2 шт.). В состав каждой ТСРМ82.100 входят 3 счетчика медленных нейтронов типа «Смена-05» [9], в составе ТСРМ82.300 – 1 счетчик. Счетчики были обложены полиэтиленовым экраном для повышения их чувствительности к быстрым нейтронам. Помимо разного количества счетчиков системы ТСРМ82.100 и ТСРМ82.300 отличаются толщиной полиэтиленовых экранов вокруг счетчиков, которые

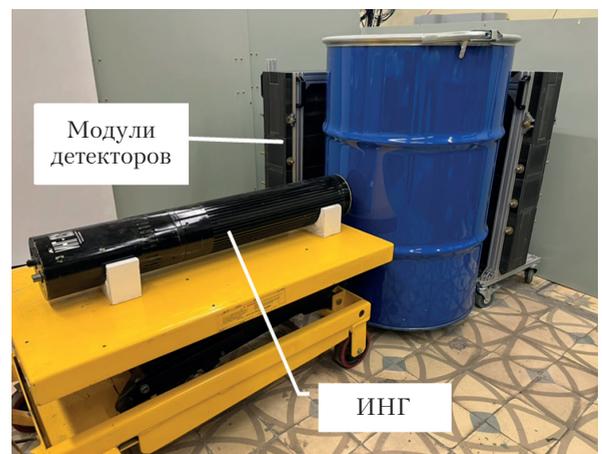


Рис.2. Вид лабораторной установки для контроля содержания ЯОДН в РАО, размещенных в бочках объемом 200 л.

нужны для повышения их чувствительности к быстрым нейтронам. У системы ТСРМ82.300 толщина полиэтиленового экрана примерно вдвое больше и выше чувствительность к нейтронам (в нормировке на один счетчик), однако среднее время реагирования при регистрации быстрых нейтронов примерно вдвое выше, чем у системы ТСРМ82.100 (около 50 мкс против 20 мкс). Ниже будет показано, как данные особенности конструкции детекторов нейтронов влияют на результаты измерений содержания ЯОДН. Схема лабораторной установки (вертикальный разрез) представлена рис.3.

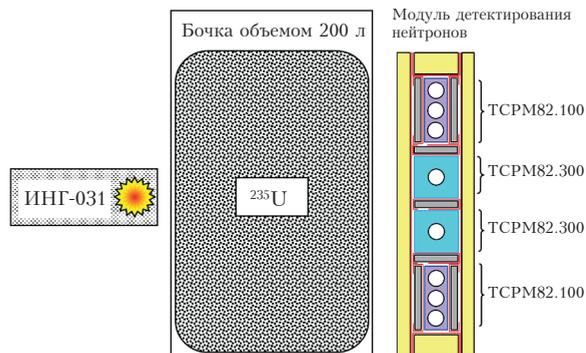


Рис.3. Принципиальная схема (вертикальный разрез) лабораторной установки для контроля содержания ЯОДН в РАО, размещенных в бочках объемом 200 л.

Проведение испытаний лабораторной установки

Для оценки метрологических характеристик измерений содержания ЯОДН лабораторной установкой был изготовлен объект-имитатор упаковки цементированных РАО в виде бочки. Конструкция образца-имитатора была изготовлена на основе стандартной металлической бочки объемом 200 л по ГОСТ 13950-91, заполненной специально обработанными блоками из пенобетона, имитирующими матрицу цементированных РАО. Для размещения образцов ЯОДН в блоках были сделаны сквозные вертикальные каналы (рис.4, слева).

В качестве имитаторов ЯОДН использовался набор из пяти образцов изотопного состава урана производства АО «УЭХК», содержащих 3 г урана с массовыми долями изотопа ^{235}U , равными 0,199, 0,364, 0,698, 4,95 и 29,16% (рис.4, справа). Образцы изотопного состава урана аттестованы как государственные стандартные образцы (ГСО) [7]. Эффективные массы ЯОДН (от 6 до 540 мг ^{235}U), учитывающие поглощение тепловых нейтронов в объеме урана, были оценены для закиси-окиси урана в стандартных стеклянных флаконах с внутренним диаметром 20 мм.

При проведении испытаний образцы ЯОДН по очереди располагались в центральном канале



Рис.4. Вид блоков, имитирующих матрицу цементированных РАО (слева), и стандартные образцы содержания ЯОДН (справа).

матрицы образца-имитатора упаковки РАО на середине высоты. Измерения фона выполнялись для образца-имитатора упаковки РАО без внесения образцов ЯОДН. Длительность каждого замера составляла 200 с.

Результаты испытаний

В результате каждого измерения были получены временные распределения скоростей счета импульсов, зарегистрированных детекторами нейтронов после нейтронного импульса ИНГ. На рис. 5 и 6 показаны примеры временных зависимостей откликов систем ТСРМ82.100 и ТСРМ82.300 в составе модуля детектирования нейтронов при различной массе ЯОДН (^{235}U) в образце-имитаторе упаковки РАО.

Представленные на рис. 5 и 6 временные зависимости скоростей счета $C(t)$ состоят из двух частей с разными константами спада (декрементами затухания) и могут быть приближенно описаны в следующем алгебраическом виде:

$$C(t) = A \cdot \exp(-t/\tau_1) + B \cdot \exp(-t/\tau_2), \quad (1)$$

где: $1/\tau_1$ и $1/\tau_2$ – декременты затухания, которые физически соответствуют τ_1 и τ_2 – средним временам жизни тепловых нейтронов внутри модулей детектирования и внутри

упаковки РАО, соответственно. Среднее время жизни нейтронов внутри модулей детектирования τ_1 определяется, главным образом, размерами замедлителя вокруг счетчиков нейтронов и составляют около 20 мкс в случае системы ТСРМ82.100 и 50 мкс в случае системы ТСРМ82.300. Среднее время жизни тепловых нейтронов в центре упаковки РАО с используемой матрицей τ_2 оказалось равным 370 ± 20 мкс. От соотношения величин τ_1 и τ_2 зависит момент начала появления проявления отклика от нейтронов деления ЯОДН во временных зависимостях скоростей счета; A – множитель, зависящий от потока ИНГ, конфигурации объекта и измерительной системы, эффективности регистрации нейтронов; B – множитель, который зависит от всех факторов, указанных для множителя A , и дополнительно от количества ЯОДН в объекте контроля.

Соответственно, величина, равная отношению значений множителей A и B , в уравнении (1), $S = B/A$, должна определять отклик системы на внесение ЯОДН и напрямую зависеть от их количества.

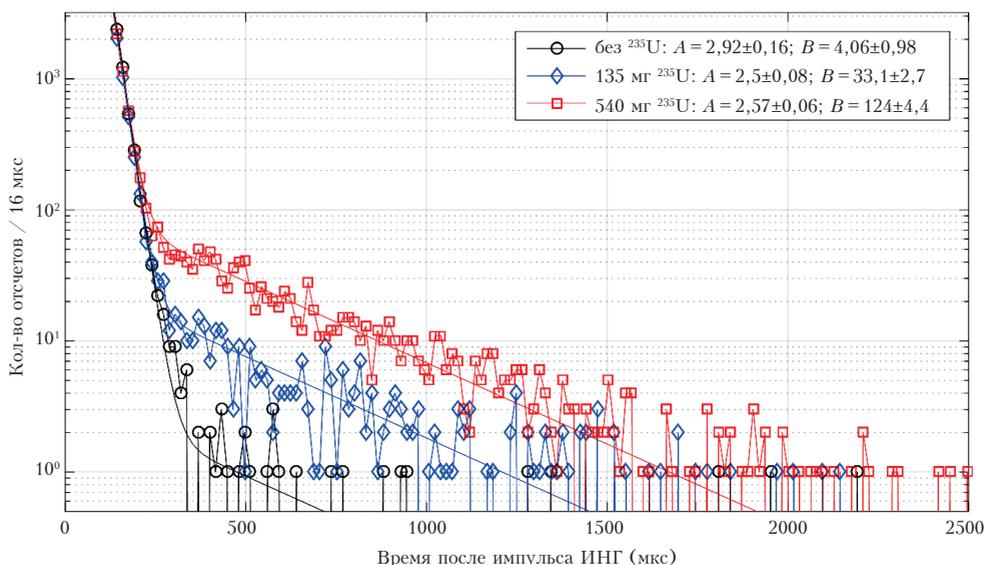


Рис. 5. Примеры временных зависимостей откликов модуля детектирования нейтронов на базе системы ТСРМ82.100 при размещении ЯОДН в центре образца-имитатора упаковки РАО.

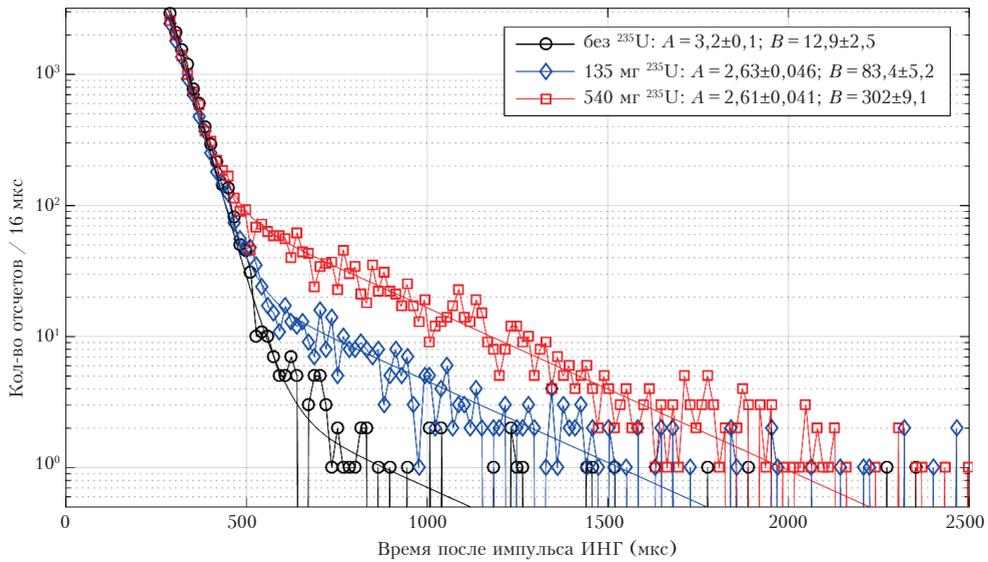


Рис.6. Примеры временных зависимостей откликов модуля детектирования нейтронов на базе системы ТСРМ82.300 при размещении ЯОДН в центре образца-имитатора упаковки РАО.

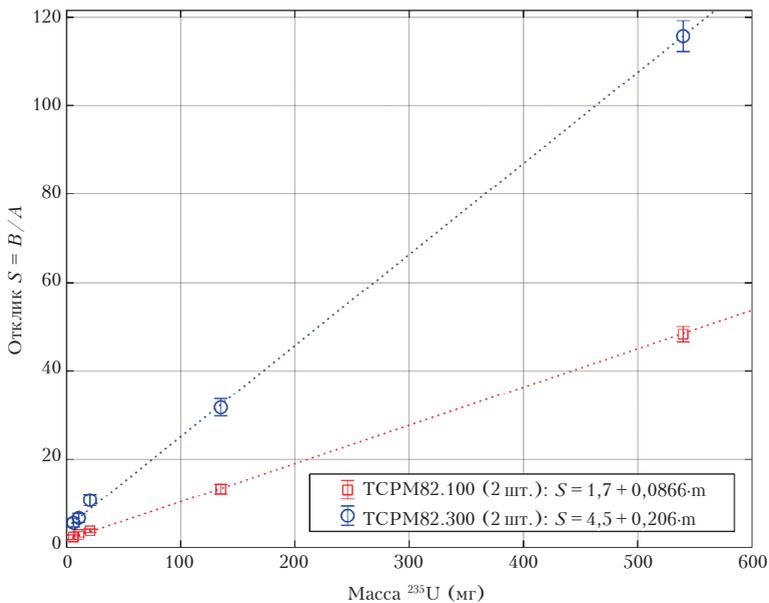


Рис.7. Зависимость откликов систем ТСРМ82.100 и ТСРМ82.300 ($S = B/A$) от массы ^{235}U в образце-имитаторе упаковки РАО.

Для подтверждения данной гипотезы были получены значения откликов систем ТСРМ82.100 и ТСРМ82.300 ($S = B/A$) в зависимости от массы ^{235}U (m), загруженного в образец-имитатор упаковки РАО (рис.7). Анализ полученных результатов показывает, что отклики систем ТСРМ82.100 и ТСРМ82.300 линейно зависят от массы ЯОДН:

$$S = S_0 + \alpha \cdot m, \quad (2)$$

где: S_0 – отклик детекторов при измерении фона; α – коэффициент пропорциональности, мг^{-1} .

Данная гипотеза подтверждается определением коэффициентов α в уравнении (2) как отношений откликов детекторов нейтронов S за вычетом фоновых значений S_0 к массе m ЯОДН в образце-имитаторе упаковки РАО:

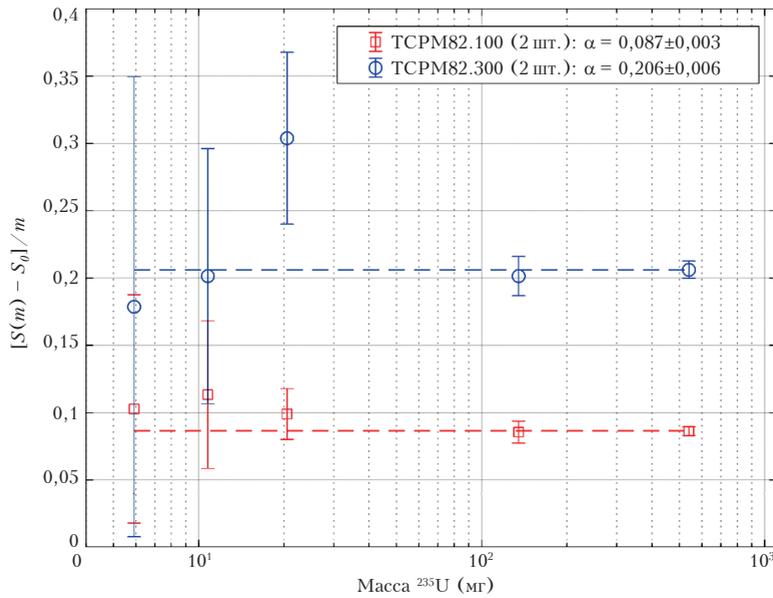


Рис.8. Зависимости коэффициентов α для систем ТСПМ82.100 и ТСПМ82.300 от массы ^{235}U в образце-имитаторе упаковки РАО.

$$\alpha = \frac{S - S_0}{m} \quad (3)$$

На рис.8 показаны зависимости значений коэффициентов α в уравнении (2) от массы ^{235}U в образце-имитаторе упаковки РАО для систем ТСПМ82.100 и ТСПМ82.300. Как видим, эти коэффициенты являются постоянными. Статистические погрешности откликов детекторов нейтронов ΔS достаточно хорошо описываются уравнением:

$$\Delta S = \beta \cdot \sqrt{S}, \quad (4)$$

в котором фактор β практически постоянен при небольших, менее 100 мг, массах ЯОДН (рис.9). Снижение значений фактора β в области больших масс обусловлено снижением статистической погрешности определения параметра B уравнения (1) за счет смещения влево момента начала проявления отклика от нейтронов деления ЯОДН во временных зависимостях скоростей счета (рис. 5 и 6).

Минимальная детектируемая масса ЯОДН

Полученные зависимости откликов детекторов от массы ЯОДН и значения их коэф-

фициентов в уравнениях (2) и (4) позволяют определить значение минимальной детектируемой массы (МДМ) ЯОДН (M_0), которая удовлетворяет условию:

$$S(M_0) = S_0 + Q \cdot \Delta S(m \rightarrow 0), \quad (5)$$

где: Q – квантиль обнаружения; $\Delta S(m \rightarrow 0)$ – погрешность отклика детектора нейтронов при массе ЯОДН в упаковке РАО, стремящейся к нулю.

Подставляя формулы (2) и (4) в формулу (5) получаем уравнение:

$$\alpha \cdot M_0 = Q \cdot \beta \cdot \sqrt{S_0}, \quad (6)$$

из которого можно получить значение МДМ ЯОДН в упаковке РАО:

$$M_0 = Q \cdot \frac{\beta}{\alpha} \cdot \sqrt{S_0}. \quad (7)$$

Значения параметров α , β и S_0 в уравнении (7), определенные по результатам испытаний лабораторной установки для контроля содержания ЯОДН в РАО, размещенных в бочках объемом 200 л, представлены в табл.1.

Результаты, представленные на рис. 8, 9 и в табл.1, позволяют оценить МДМ ЯОДН в цементированных РАО, размещенных в бочках объемом 200 л, при заданной эксперимен-

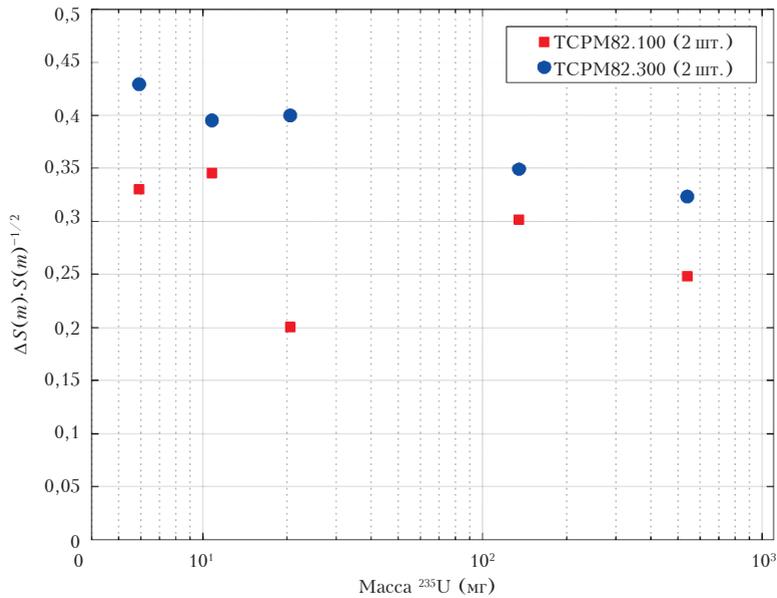


Рис.9. Зависимости фактора $\beta = \Delta S / \sqrt{S}$ для систем TCPM82.100 и TCPM82.300 от массы ^{235}U в образце-имитаторе упаковки РАО.

тальной конфигурации лабораторной установки (поток нейтронов ИНГ $5 \cdot 10^8$ н/с, длительность замера 200 с, два модуля детектирования нейтронов на основе систем TCPM82.100 или TCPM82.300), на уровне 10 мг (по ^{235}U) при минимальном квантиле обнаружения Q , равным 2. Более высокие значения квантилей обнаружения соответствуют обнаружению с лучшими соотношениями вероятностей пропуска и ложных обнаружений, а также уровням минимальной измеряемой массы ЯОДН с заданной потребителем погрешностью.

Выводы

Полученные при испытаниях лабораторной установки результаты подтверждают техническую возможность контроля содержания ЯОДН в упаковках цементированных РАО активным нейтронным методом с использованием серийно выпускаемой продукции ФГУП «ВНИИА им. Н.Л. Духова». Чувствительность активного нейтронного метода при контроле содержания ЯОДН в цементированных РАО, размещенных в бочках объемом 200 л, определенная как МДМ ЯОДН,

Табл.1. Результаты определения значений параметров α , β и S_0 и их соотношения при испытании лабораторной установки.

№	Параметр	Детектор нейтронов	
		TCPM82.100	TCPM82.300
1	S_0	$1,7 \pm 0,2$	$4,5 \pm 0,6$
2	α , мг ⁻¹	$0,0866 \pm 0,0029$	$0,206 \pm 0,006$
3	β при $m \rightarrow 0$	$0,33 \pm 0,03$	$0,43 \pm 0,04$
4	$\frac{M_0}{Q} = \frac{\beta}{\alpha} \cdot \sqrt{S_0}$, мг	$5,0 \pm 0,6$	$4,4 \pm 0,5$

составляет около 10 мг (по ^{235}U) при потоке нейтронов ИНГ $5 \cdot 10^8$ н/с, длительности измерений 200 с и использовании двух модулей детектирования нейтронов на основе систем ТСРМ82.100 или ТСРМ82.300.

Результаты проведенных испытаний (табл.1) показывают, что при использовании модулей детектирования нейтронов на основе систем ТСРМ82.300 значения M_0/Q и, соответственно, значения МДМ ЯОДН примерно на 10% ниже аналогичных значений для модулей детектирования нейтронов на основе систем ТСРМ82.100. Однако окончательные выводы о предпочтении того или иного исполнения модулей детектирования нейтронов в установке для контроля содержания ЯОДН в упаковках РАО могут быть сделаны только после учета:

- геометрии расположения модулей детектирования нейтронов относительно источника вторичных нейтронов – контролируемой упаковки РАО (разница примерно на 15% в средней дистанции до имитатора ЯОДН);

- результатов испытаний при наполнении образцов-имитаторов упаковок РАО матрицей иной морфологии, в которой время жизни нейтронов будет ниже, чем в бетонной матрице, используемой в представленном эксперименте. В таком случае система ТСРМ82.100 может иметь преимущество за счет малого времени реагирования τ_1 .

В этой связи работы по испытаниям лабораторной установки для контроля содержания ЯОДН в упаковках РАО будут продолжены с матрицами РАО другой морфологии, включая органические материалы и металл. Также необходимо расширить перечень испытаний, включив в него измерения с альтернативным размещением образцов ЯОДН внутри объема матрицы объекта-имитатора упаковки РАО как по высоте, так и по дистанции от центральной оси бочки.

Литература

1. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения» (НП-093-14). Утверждены приказом Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору от 15 декабря 2014. С. 572.
2. Справочник по методам измерений ядерных материалов. Под ред. Д.Роджерса. Пер. с англ. М.: «Издательство БИНОМ», 2009.
3. Фролов В.В. Ядерно-физические методы контроля делящихся веществ. М.: Энергоатомиздат, 1989.
4. Клигер К.Г., Полканов Ю.Г., Титов И.А. Разработка и создание каротажной аппаратуры для прямых определений урана в скважинах месторождений, обрабатываемых способом подземного выщелачивания // Каротажник. 2024. Вып. № 328. С. 28.
5. Батяев В.Ф., Бочкарев О.В., Складов С.В., Ромоданов В.Л., Черникова Д.Н. Контроль делящихся и матричных материалов в закрытых контейнерах с помощью импульсных источников нейтронов // Атомная Энергия. 2013. Т. 115. Вып. 2. С. 99-104.
6. Бежунов Г.М., Рыков Н.С., Рязанов Б.Г. Разработка малогабаритной импульсной нейтронной системы измерения массы делящихся нуклидов в твердых радиоактивных отходах // ВАНТ. 2021. Серия: Ядерно-реакторные константы. Вып. 3.
7. Государственные стандартные образцы изотопного состава урана. Каталог. АО «УЭХК», URL: <http://www.ueir.ru> (дата обращения: 6.08.2025).

8. Нейтронные генераторы для элементного состава веществ и материалов. ФГУП «ВНИИА им. Н.Л. Духова». URL: <https://www.vniia.ru/> (дата обращения: 6.08.2025).
9. Счетчики медленных нейтронов «Смена», ФГУП «ПО «Маяк». URL: <https://www.po-mayak.ru> (дата обращения: 8.08.2025).

Determination of the Sensitivity of the Active Neutron Method for Monitoring the Content of Nuclear-Hazardous Fissile Nuclides in Barrels with Cemented Radioactive Waste

Yurkov Dmitry, Gerasimchuk Oleg, Presnyakov Alexey, Tarasov Viacheslav, Karetnikov Maxim, Drozdov Vladimir, Maznitsin Anton, Batyaev Viacheslav (FSUE «N.L. Dukhov Research Automatics Institute» (VNIIA), Moscow, Russia)

Batyaeva Mariia (JSC «A.A. Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials» VNIINM, Moscow, Russia)

Bespala Evgenii (Experimental Demonstration Center for Decommissioning of uranium-graphite reactors «PDC UGR» JSC, Seversk, Russia)

Nikitin Eduard, Rybin Alexei, Semenov Dmitrii, Ermakov Alexander (TVEL Fuel Company of Rosatom Corporation, Moscow, Russia)

Baidarov Dmitrii (Rosatom Corporation, Moscow, Russia)

Abstract. The work is devoted to the experimental determination of the sensitivity of the active neutron method for determining the content of nuclear-hazardous fissile nuclides (FN) in radioactive waste packages in the form of 200-liter barrels filled with cement. The measurement results made it possible to determine the minimum detectable mass of FN in the amount of 10 mg (for ^{235}U) at a pulsed neutron generator flux of $5 \cdot 10^8$ n/s, a measurement duration of 200 s and the use of two neutron detection modules based on the neutron monitoring systems TSRM82.100 or TSRM82.300.

Keywords: radioactive waste, nuclear-hazardous fissile nuclides, differential die-away technique, pulsed neutron generator, minimum detectable mass.

Д.И.Юрков (д.т.н., доцент, зам. директора, первый зам. гл. констр.), О.А.Герасимчук (к.т.н., зам. гл. констр., зам. рук. НПП, нач. отд.), А.Ю.Пресняков (нач. НИО), В.П.Тарасов (нач. лаб.), М.Д.Каретников (д.ф.-м.н., вед.н.с.), В.Ю.Дроздов (гл. спец.), А.Д.Мазницин (инж.-програм.), В.Ф.Батяев (к.ф.-м.н., нач. лаб.) – ФГУП «ВНИИА им. Н.Л.Духова», г.Москва

М.В.Батяева (к.ф.-м.н., нач. отд.) – АО «ВНИИНМ», г.Москва

Е.В.Беспала (к.ф.-м.н., зам. ген. директора) – АО «ОДЦ УГР», Северск, Томская область

Э.М.Никитин (директор по выводу из экспл.), А.Н.Рыбин (рук. гр.), Д.А.Семенов (нач. управл.), А.И.Ермаков (к.х.н., гл. эксп.) – АО «ТВЭЛ», г.Москва

Д.Ю.Байдаров (к.юр.н., директор Департ.) – ГК «Росатом», г.Москва

Контакты: +7 (495) 795-00-09; presnyakov_aleks@mail.ru, Dmitry_yurkov@mail.ru