

S. Avdić, M. Pešić, N. Zavaljevski
Institut za nuklearne nauke 'Vinča'
Laboratorija za nuklearnu energetiku
i tehničku fiziku - NET¹
P.p.522, 11001 Beograd

NEDESTRUKTIVNI METOD VERIFIKACIJE IZOTOPSKOG OBOGAĆENJA URANIJUMSKIH GORIVNIH ELEMENATA

NONDESTRUCTIVE METHOD OF VERIFICATION OF ISOTOPIC ENRICHMENT OF URANIUM FUEL ELEMENTS

SADRŽAJ - U Laboratoriji NET je razvijen, u okviru programa kontrole kvaliteta, metod nedestruktivnog testiranja svežih gorivnih elemenata od uranijuma. Metod je zasnovan na gama spektrometrijskoj analizi uzoraka pomoću poluprovodničkog Ge detektora i primeni domaćih računarskih programa ANA (za automatsku obradu složenih gama spektara) i EFI (za proračun samo-apsorpcije gama zraka u materijalu goriva uključujući geometrijske korekcije primenom tehnike Monte Karlo). Razvijeni koncept merenja i proračuna je primenjen za verifikaciju izotopskog obogaćenja gorivnih segmenata reaktora RB od 2% obogaćenog metalnog uranijuma i 80% obogaćenog UO_2 dispergovanog u aluminijumu. Dobijeni rezultati su pokazali dobru saglasnost sa deklariranim vrednostima koje je dao proizvođač goriva.

ABSTRACT - Nondestructive testing of fresh uranium fuel materials as a part of a QA programme at the NET Laboratory of the 'Vinča' Institute is developed. The method is based on gamma spectrometry of fuel elements by semiconductor Ge detector and application of developed computer codes ANA (for a gamma spectrum analysis) and EFI (for calculation of gamma-ray self-absorption in the fuel material including geometrical corrections by Monte Carlo technique). This developed concept of the measurement and calculations is used for isotopic enrichment verification of the 2% enriched metal uranium and 80% enriched UO_2 fuel elements of the RB reactor. The obtained results are shown good agreement with values given by fuel manufacturer.

1 Uvod

Početne analize kvaliteta novog nuklearnog goriva u Institutu u Vinči su inicirane 1977 god. u Laboratoriji reaktora RA [1] kada je u saradnji sa Odeljenjem za kontrolu nuklearnog materijala Međunarodne agencije za atomsku energiju, izvršena kvantitativna analiza 80% obogaćenih UO_2 gorivnih segmenata. Relativna statistička varijacija mase izotopa ^{235}U za oko 20% od ukupnog broja svežih gorivnih segmenata, izabranih na bazi slučajnih brojeva, je analizirana primenom nedestruktivnog 'pasivnog' gama spektrometrijskog postupka i metodom visoke osjetljivosti kritičnog

¹ Rad je urađen povodom 45 godina Instituta u Vinči, 40 godina Laboratorije NET i 35 godina rada reaktora RB

nivoa posebno projektovanog jezgra reaktora RB [2] na perturbacije usled postavljanja gorivnog segmenta u centar vertikalnog eksperimentalnog kanala. Rezultati merenja, dobijeni primenom oba metoda, su predstavljeni histogramima koji pokazuju približno jednaka odstupanja vrednosti mase izotopa ^{235}U u gorivnom materijalu izabranih segmenata u odnosu na srednju vrednost [3].

U Laboratoriji NET je razvijen metod apsolutnog odredjivanja izotopskog obogaćenja svežih uranijumskih gorivnih segmenata reaktora RB, koji je baziran na gama spektroskopiji i primeni razvijenih računarskih programa za obradu eksperimentalnih podataka. Od mnogih gama linija u spektrima obogaćenih uranijumskih gorivnih segmenata za analizu su izabrane linije na energijama 143.8 keV, 163.6 keV, 185.7 keV i 205.3 keV izotopa ^{235}U i 1001 keV izotopa $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (u ravnoteži sa ^{238}U). S obzirom da u raspoloživoj literaturi nisu postojali konzistentni podaci za prinos gama linije na 1001 keV izotopa $^{234\text{m}}\text{Pa}$, izvršena su merenja gama spektara nekoliko uzoraka od metalnog prirodnog uranijum na različitim rastojanjima od detektora i u različitim položajima. Uzimajući u obzir materijalni sastav uzorka od prirodnog uranijuma, efikasnost detekcije za izabranu gama energiju i izračunate korekcije za konačne dimenzije izvora i samo-apsorpciju nisko energetskih gama fotona u uranijumskom uzorku, dobijena je srednja vrednost prinosa gama linije na 1001 keV od $(0.8089 \pm 0.0041) \%$ [4].

2 Odredjivanje izotopskog obogaćenja uranijumskog goriva

Sistem za gama spektroskopska merenja sa koaksijalnim Ge detektorom, koji je povezan sa višekanalnim analizatorom S-90 (Canberra Inc.), je podešen tako da se dobiju najbolji parametri za analizu gama spektra (energetska rezolucija 1.86 keV za energiju od 1332.5 keV gama linije izotopa ^{60}Co i najveće vrednosti efikasnosti detekcije). Merni sistem je kalibrisan u energetskom opsegu gama zraka od 50 keV do 2000 keV koristeći dva standardna seta gama kalibracionih izvora. Za odredjivanje funkcije apsolutne efikasnosti detekcije korišćena je polinomijalna funkcija zavisnosti efikasnosti od inverzne vrednosti energije detektovanih gama linija dobijena fitovanjem metodom najmanjih kvadrata.

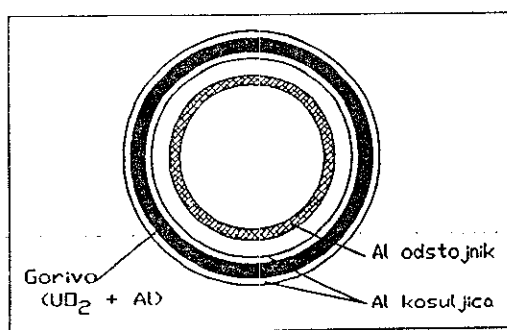
Razvijeni računarski program ANA [5] uključuje proceduru pretraživanja i fitovanja gama pikova u izmerenom spektru, identifikaciju detektovanih gama pikova i odredjivanje aktivnosti i parcijalne ekspozicione doze detektovanih nuklida u merenom uzorku tačkaste geometrije. Rutina za pretraživanje gama pikova je bazirana na metodu 'izravnjenja' (smoothing) spektralnih podataka u oblasti gama spektra gde je odziv značajno različit od fona, da bi se minimizirale statističke fluktuacije brzine brojanja impulsa. Program ANA koristi sopstvenu biblioteku podataka za oko 360 gama linija u energetskom opsegu 25 keV do 3500 keV, koja uključuje, pored vrednosti energija karakterističnih gama linija, prinosa, vremena poluraspada nuklida, specifične gama

konstante i podatke o poreklu nuklida. Verifikacija računarskog programa ANA je izvršena analizom više test primera pomoću poznatih inostranih računarskih programa ASAP Ver.-01 [6] i APOGEE Ver.-1.3 [7].

Metod nedestruktivne analize je iskorišćen za apsolutno određivanje izotopskog obogaćenja gorivnih segmenata od 2% obogaćenog metalnog uranijuma i 80% obogaćenog UO_2 dispergovanog u Al. Kompleksna geometrija oba tipa obogaćenih gorivnih segmenata je identična (Slika 1.), ali materijalni sastav gorivnog sloja (debljine 2 mm i visine 100.0 mm) je bitno različit [9]. Nisko i visoko obogaćeni gorivni segmenti sadrže po 7.70 g ^{235}U , ali je masa izotopa ^{238}U različita: 382.2 g, odnosno 1.93 g, respektivno.

U toku merenja, gorivni segmenti su postavljeni na različitim rastojanjima od Ge detektora i u različitim položajima. Gama spektri uzoraka i fona su mereni dovoljno dugo da bi se dobili zadovoljavajući statistički uslovi za automatsku obradu spektralnih podataka. Za analizu su izabrane najjače gama linije izotopa ^{235}U i gama linija izotopa ^{234m}Pa na energiji od 1001 keV, čiji je prinos određen u prethodnim merenjima.

Za potrebe određivanja izotopskog obogaćenja gorivnih segmenata kompleksne geometrije i različitog materijalnog sastava razvijen je računarski program EFI [8], koji je zasnovan na tehnici Monte Karlo za realnu geometriju uzoraka i Ge detektora. Srednja efikasnost detekcije za ceo gorivni segment se izračunava za izabrana rastojanja od detektora i različite položaje, saglasno izvršenim merenjima, uključujući efekte samo-apsorpcije gama zraka u gorivnom materijalu. Relativna statistička greška proračuna pomenutih korekcija metodom Monte Karlo iznosi $\pm 1\%$. Atenuacija gama zraka u Al košuljici gorivnih segmenata debljine 1 mm je zanemarena u proračunima.



Slika 1. Horizontalni presek obogaćenog gorivnog segmenta reaktora RB

Automatska obrada gama spektralnih podataka je izvršena pomoću računarskih programa ANA i APOGEE. Posle serije merenja i izvršenih proračuna određena je srednja vrednost izotopskog obogaćenja tj. odnosa koncentracija $^{235}U/U$ za nisko i visoko obogaćene gorivne segmente reaktora RB. Rezultati su dati u tabeli 1. za interval pouzdanosti od 95%. Dobijene vrednosti su u dobroj saglasnosti sa deklarisanim vrednostima, uzimajući u obzir podatke iz

deklaracije proizvođača (SSSR) 80% obogaćenih gorivnih segmenata [10], gde je masa izotopa

^{235}U od 7.7 g data sa greškom od ± 0.34 g (± 4.4 %). Za sada, nisu na raspolaganju podaci o geškama sa kojima je data deklarirana vrednost 2 % obogaćenih gorivnih segmenata. Rezultat verifikacije izotopskog obogaćenja visoko obogaćenog gorivnog segmenta je dobijen sa većom relativnom statističkom greškom, s obzirom na znatno manji sadržaj izotopa ^{238}U nego u 2 % obogaćenom gorivnom segmentu, tako da greška određivanja neto površine ispod evaluiranog gama pika na 1001 keV od ± 3.0 % (1.96σ) najviše doprinosi totalnoj nesigurnosti dobijenog rezultata. U cilju dobijanja veće pouzdanosti rezultata verifikacije predviđena su poboljšanja uslova merenja (produženje vremena merenja, smanjenje fona, povećanje broja merenja spektra uzoraka, ispitivanje radialne heterogenosti gorivnog sloja). Takođe, u okviru razvijenog računarskog programa EFI predviđa se korišćenje vrednosti atenuacionih koeficijenata gama zraka datih energija za nuklide gorivnog materijala iz najsavremenijih dostupnih biblioteka podataka.

Tabela 1. Rezultati merenja i proračuna izotopskog obogaćenja gorivnih segmenata reaktora RB ($P = 95$ %)

$N(^{235}\text{U})/N(\text{U})$	
deklarirana vrednost	izracunata vrednost
2 %	(1.97 ± 0.08) %
80 %	(77.5 ± 4.4) %

3 Zaključak

Razvijeni gama spektroskopski metod nedestruktivne analize svežeg uranijumskog goriva je korišćen za ispitivanje sastava goriva i verifikaciju izotopskog obogaćenja uranijumskih gorivnih segmenata reaktora RB. Glavna prednost primenjenog metoda se sastoji u tome što ne zahteva upotrebu standarda. Primenjeni koncept merenja i proračuna može da se koristi za nedestruktivnu analizu uranijumskog goriva različite geometrije i izotopskog obogaćenja, uključivanjem odgovarajućih korekcija kroz razvijene programe. Dobijeni rezultati su interesantni sa aspekta provere deklarisanog kvaliteta goriva, kao i drugih aspekata sigurnosti rada reaktora RB.

Zahvalnost

Rad je uradjen za potrebe ugovora br. 0812 i 5854/1 sa Ministarstvom za nauku i tehnologiju Republike Srbije.

Reference

- 1 Directory of Nuclear Reactors, IAEA Vienna, Vol. V (1964) 217.1
 - 2 D.Popović: ' Proc. of the 2nd UN Inter. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy', paper 15/P/491, Geneva, Vol. 12 (1958) p. 392.
 - 3 R.Martinc i dr. u 'Zbornik radova sa Konferencije o korišćenju nuklearnih reaktora u Jugoslaviji, Beograd (1978) str. 539.
 - 4 S.Avdić, M.Pešić, P.Marinković:' Determination of Gamma-Ray Line Intensities for Natural Uranium Fuel at the RB Reactor', Proceedings of IRPS, p. 342, Dubrovnik (1989).
 - 5 S.Avdić, M.Pešić: ' Program ANA za analizu gama spektara', NET biblioteka računarskih programa, Vinča (1987).
 - 6 ASAP Ver.-01 Gamma Spectrum Analysis Code, Nuclear Data Inc. (1987).
 - 7 APOGEE Ver.-1.3 Gamma Spectrum Analysis Code, Canberra Industries Inc. (1986).
 - 8 M.Milošević, S.Avdić: ' Program EFI za određivanje geometrijske efikasnosti Ge detektora', NET biblioteka računarskih programa, Vinča (1988)
 - 9 M.Pešić, O.Šotić: 'Nuklearni podaci za materijale reaktora RB', IBK-1430, Vinča (1977).
 - 10 Tehniceskie uslovia na postavku teplovidel'ajushchego elementa disperzionnoga tipa dlja reaktora TVR-S, No. 162.000.TU, No.L-1055s (1969).
-
