

УДК 543.08:543.53:546.21

Нейтронно-активационное определение кислородного коэффициента в окисном ядерном топливе

КОНОНОВ В. Ф., МЕЛЕНТЬЕВ В. И., ОВЕЧКИН В. В., ЛУПНОВ В. А.

Кислородный коэффициент окисного уран-плутониевого топлива $[X = O/(U + Pu)]$ оказывает некоторое влияние на взаимодействие топлива с оболочкой твэла [1] и должен определяться с погрешностью не более 1 отн. %.

Нейтронно-активационный метод определения содержания кислорода, как известно, основан на ядерной реакции $^{16}O(n, p)^{16}N$, протекающей под действием нейтронов энергией ~ 14 МэВ, и последующей регистрации наведенного γ -излучения в области энергии 6 МэВ.

Хотя этот метод нашел довольно широкое применение для анализа конструкционных материалов, снижение погрешности примерно до 1% является достаточно трудной задачей, в особенности для делящихся веществ. Это связано главным образом с наличием высокоинтенсивного излучения продуктов деления, скорость спада которого во времени соизмерима с периодом полураспада ^{16}N [2].

В настоящей статье для более точного учета флуктуаций нейтронного потока во время облучения анализируемый образец окружали кислородсодержащим «свидетелем» и регистрировали затем активность образцов

двумя детекторами. Для двухкомпонентной смеси типа MeO_x , когда примеси практически отсутствуют, число импульсов, зарегистрированных от 1 г анализируемого образца в оптимальной энергетической области, можно найти из соотношения

$$S_x = \frac{S_O X + (A_m/A_O) S_d}{X + A_m/A_O}, \quad (1)$$

где S_O и S_d — число импульсов, зарегистрированных от 1 г кислорода и делящегося вещества соответственно, приведенное к одинаковому потоку нейтронов; A_O и A_d — атомная масса кислорода и делящегося вещества.

В интересующей нас области концентраций кислорода ($X \approx 2$) с учетом того, что $A_d/A_O \gg X$, выражение (1) приобретает вид, характерный для уравнения прямой:

$$S_x = aX + b, \quad (2)$$

где $a = (A_O/A_d) S_O$, $b \approx S_d$. Следовательно, с помощью градуировочной зависимости $S_x = f(X)$, построенной в результате измерений контрольных образцов, можно определить кислородный коэффициент X в анализируемом образце. При этом относительная погрешность

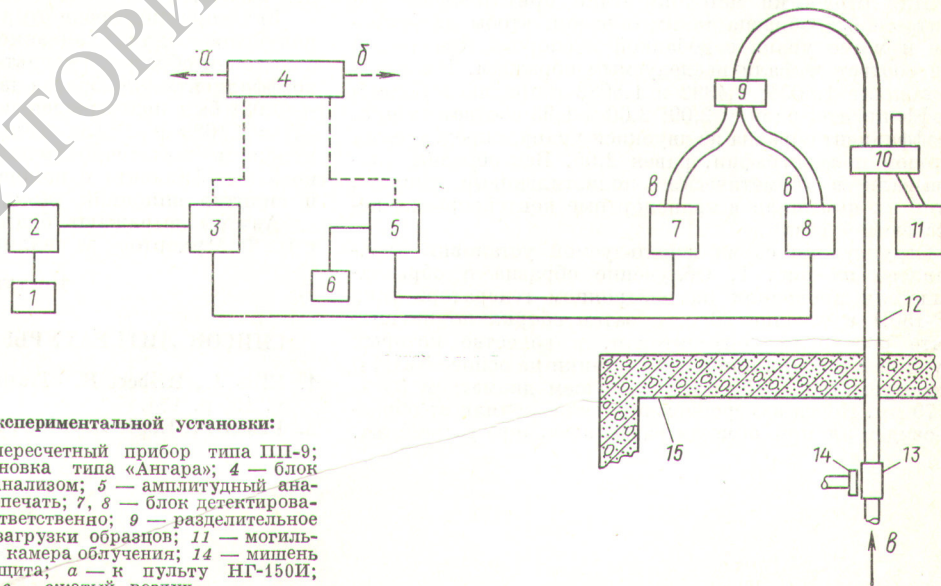


Рис. 1. Структурная схема экспериментальной установки:

1 — цифрпечать БЗ-15; 2 — пересчетный прибор типа ПП-9; 3 — спектрометрическая установка типа «Ангара»; 4 — блок автоматического управления анализом; 5 — амплитудный анализатор импульсов; 6 — цифрпечать; 7, 8 — блок детектирования свидетеля и образца соответственно; 9 — разделительное устройство; 10 — устройство загрузки образцов; 11 — могильник; 12 — пневмопровод; 13 — камера облучения; 14 — мишень генератора; 15 — бетонная защита; а — к пултуу НГ-150И; б — к силовым механизмам; в — сжатый воздух

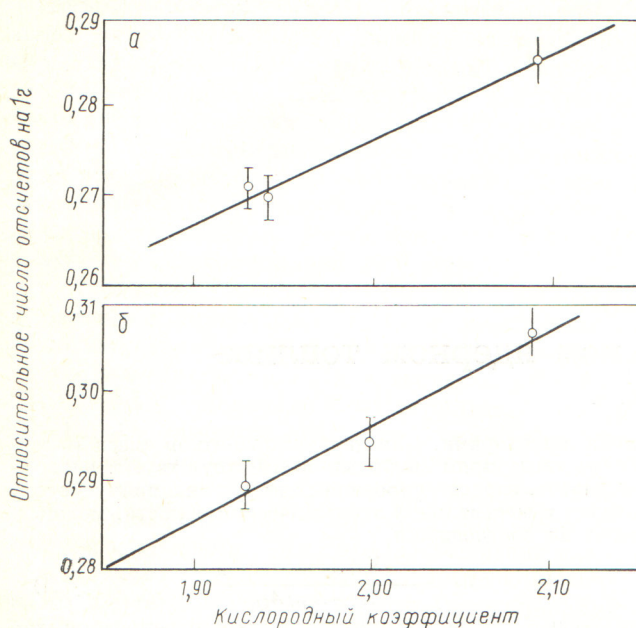


Рис. 2. Зависимость отношения числа импульсов исследуемого образца и образца-свидетеля от кислородного коэффициента (○ — эксперимент)

определения X равна:

$$\delta_X = \left(1 + \frac{10}{c}\right) \frac{\delta_S}{\sqrt{k}}, \quad (3)$$

где δ_S — относительная погрешность значения δ_X , измеряемого в процессе анализа; k — число точек градуировочной зависимости $X = f(S_R)$; $c = S_O/S_D = 35$ (экспериментально полученное значение для оптимальных условий проведения анализа).

Для отработки методики были приготовлены три контрольных образца таким образом, чтобы по размерам и массе урана с добавкой кислорода (оргстекло) они соответствовали исследуемым образцам. Их масса составляла 1,4038; 1,4392 и 1,3082 г при кислородном коэффициенте, равном 2,09; 2,00 и 1,93 соответственно. Коэффициент образца из двуокиси урана, определенный методом полярографии, равен 2,05. Все образцы упаковывали в герметические полиэтиленовые ампулы, затем их помещали в транспортные контейнеры из нержавеющей стали.

Структурная схема используемой установки представлена на рис. 1. Облучение образца и образца-свидетеля проводили на нейтронном генераторе типа НГ-150И в течение 20 с, и затем сборка по пневмопочте поступала к детекторам, в качестве которых служили сцинтилляционные счетчики на основе NaI(Tl) диаметром 150×150 мм с колодцем диаметром 33×70 мм. Перед измерением образец отделяли от образца-свидетеля при помощи разделительного устройства.

Коэффициент вариации отношения числа отсчетов для облученных образцов и образца-свидетеля, %

Топливо	S_X	v_N
Смешанное окисное топливо	0,434	0,8 ($N=12$)
Двуокись урана	0,393	0,8 ($N=14$)
U+O _X (контрольный образец)	0,445	1,2 ($N=14$)

Время транспортировки 3 с, время регистрации 20 с. В состав гамма-спектрометра входит прибор типа СЭС-2-07 («Ангара»).

Наведенную активность исследуемого образца регистрировали в энергетической области от 5 до 7 МэВ. Во избежание перегрузок регистрирующей аппаратуры интенсивность нейтронного потока поддерживали на уровне $(5 \div 7) \cdot 10^9$ нейтр./с. В процессе измерения обнаружилось, что скорость счета в заданной энергетической области возрастает и достигает установившегося значения после 6–7 облучений с интервалом 6 мин, который был выбран таким, чтобы остаточная активность образца от предыдущего облучения составляла не более 0,2% измеряемой. На рис. 2 представлены градуировочные графики в режиме насыщения (а) и до него (б).

Результаты определения коэффициента вариации v_N , вычисленные из N параллельных измерений каждого образца, приведены в таблице. Полученные значения v_N можно использовать для оценки погрешности δ_S . Так, согласно формуле

$$\delta_S = \pm t_{\alpha N} (v_N/n^{1/2}),$$

где $t_{\alpha N}$ — коэффициент Стьюдента; n — число годных параллельных определений; v_N — коэффициент вариации (см. таблицу), при $n = 5$ погрешность определения S_X составит $\pm 0,8$ отн.%, а соответствующая ей по формуле (3) погрешность определения кислородного коэффициента — $\pm 1\%$, что удовлетворяет поставленной задаче.

Значение кислородного коэффициента ($1,90 \pm 0,02$), полученное для смешанного топлива, согласуется с составом образца. Результат измерения кислородного коэффициента для образца двуокиси урана ($X = 2,10 \pm 0,02$) был подтвержден полярографическим методом ($X = 2,1089$ и $2,113$). Таким образом, показана возможность достаточно точного определения кислородного коэффициента с помощью нейтронной активации и сцинтилляционной гамма-спектрометрии.

Авторы выражают благодарность Б. Н. Гриневу и Н. Ф. Мухортову за анализ образцов двуокиси урана.

Поступило в Редакцию 17.VI.77

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ellis J., Hilbert R. «Trans. Amer. Nucl. Soc.», 1974, v. 19, p. 134.
2. Fisher P., Engle L. «Phys. Rev.», 1964, v. 134, p. B796.