

ГАММА-СПЕКТРОМЕТР ДЛЯ КОНТРОЛЯ ОБОГАЩЕНИЯ ГАЗООБРАЗНОГО ГЕКСАФТОРИДА УРАНА ИЗОТОПОМ УРАН-235

В.П. Гусев, С.В. Ткачев, В.А. Павликов

*Новоуральский приборный завод,
Россия, 624130, Новоуральск, ул. Дзержинского, 2
tsv.novouralsk@mail.ru*

Поступила в редакцию 16 октября 2009 г.

Рассмотрены результаты разработки гамма-спектрометра для контроля обогащения газообразного гексафторида урана изотопом уран-235. Описаны принципы контроля обогащения гексафторида урана, методы учета мешающего излучения и стабилизации энергетической шкалы гамма-спектрометра. Технические и программные решения, заложенные в прибор, позволили разработать многофункциональный и универсальный гамма-спектрометр.

Ключевые слова: гамма-спектрометр, обогащение, гексафторид урана, мешающее излучение, энергетическая шкала.

Гусев Валерий Павлович - начальник лаборатории ОКБ ООО «Уралприбор».

Область научных интересов: разработка приборов неразрушающего анализа, гамма-спектрометрия, масс-спектрометрия.

Ткачев Сергей Валерьевич: инженер-конструктор-схемотехник лаборатории ОКБ ООО «Уралприбор».

Область научных интересов: разработка приборов неразрушающего анализа, гамма-спектрометрия, масс-спектрометрия.

Павликов Виктор Анатольевич: инженер-конструктор-схемотехник лаборатории ОКБ ООО «Уралприбор».

Область научных интересов: разработка приборов неразрушающего анализа, гамма-спектрометрия, масс-спектрометрия.

Введение

В настоящее время все большее распространение получает применение современных источников энергии, основанных на использовании энергии ядерного распада. Российские предприятия ядерно-топливного цикла прочно удерживают лидирующие позиции на рынке услуг по обогащению урана для атомных электростанций. Технологичность и конкурентоспособность отечественных предприятий основана не только на объемах производства ядерного топлива, но и на степени соответствия качества готовой продукции требованиям заказчика, либо нормам, закреплённым в международных стандартах качества. Незаменимую роль в определении качества ядерного топлива играет контроль обогащения гексафторида урана при помощи средств гамма- и масс-спектрометрии. Масс-спектрометры имеют высокие аналитические характеристики,

незаменимы при контроле качества выходной товарной продукции предприятий, но ограничены в применении из-за высокой цены и необходимости их постоянного технического обслуживания. Гамма-спектрометры имеют гораздо более низкую стоимость, но при этом достаточно точные для решения технологических задач метрологические характеристики и не требуют постоянного внимания обслуживающего персонала. Тем самым они лучше всего подходят для контроля обогащения гексафторида урана на промежуточных точках технологического процесса предприятий по разделению изотопов урана.

В настоящей статье кратко описаны конструкция гамма-спектрометра, физические принципы используемого в гамма-спектрометре способа контроля обогащения ураном-235 гексафторида урана, методика учета мешающего гамма-излучения и система стабилизации гамма-спектрометра.

Конструкция и принцип действия гамма-спектрометра

Структурная схема гамма-спектрометра для контроля обогащения ураном-235 газообразного гексафторида урана [1] показана на рис. 1.

Принцип работы гамма-спектрометра состоит в следующем. Измерительную камеру прибора 6 через патрубки 3 и 4 подключают параллельно участку технологического трубопровода 1 с гексафторидом урана (ГФУ). Внутри трубопровода 1 на участке между патрубками 3 и 4 устанавливают расходомерную шайбу или подкачивающий компрессор 2 и за счет образующегося перепада давления создают непрерывный отбор гексафторида урана в измерительную камеру 6 со впуском через патрубок 3 и выпуском через патрубок 4. Внутри измерительной камеры установлены датчик абсолютного

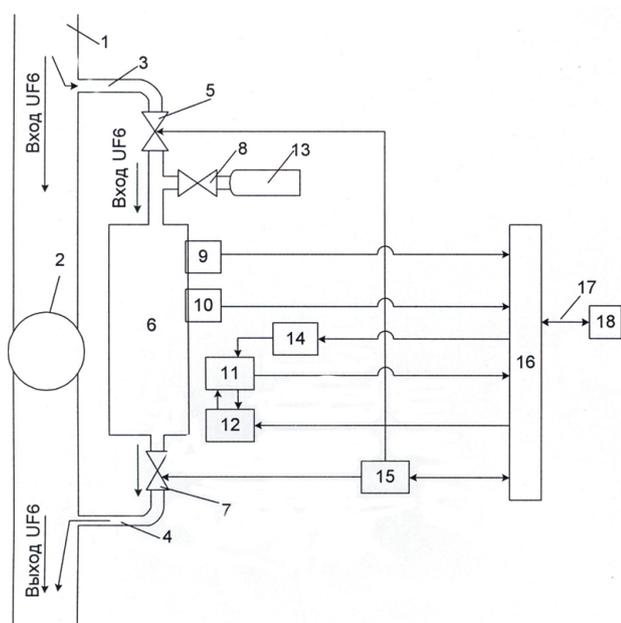


Рис. 1. Структурная схема гамма-спектрометра для контроля обогащения гексафторида урана: 1 – технологический трубопровод с гексафторидом урана; 2 – расходомерная шайба или подкачивающий компрессор; 3 – патрубок ввода; 4 – патрубок вывода; 5 – входной моторный или электромагнитный клапан; 6 – измерительная камера с гексафторидом урана; 7 – выходной моторный или электромагнитный клапан; 8 – клапан отбора пробы для масс-спектрометрического анализа; 9 – датчик абсолютного давления; 10 – измерительный преобразователь температуры; 11 – детектор гамма-излучения в составе сцинтилляционного детектора NaI(Tl) и фотоэлектронного умножителя; 12 – генератор эталонных световых импульсов; 13 – пробоотборник; 14 – программно-управляемый источник питания ФЭУ; 15 – модуль силовых ключей; 16 – контроллер; 17 – локальная сеть; 18 – центральная ЭВМ

давления 9 и преобразователь температуры на основе платинового термометра сопротивления 10. Информация с датчиков поступает на управляющий контроллер 16. Непосредственно под измерительной камерой 6 расположен детектор гамма-излучения 11 в составе сцинтилляционного кристалла NaI(Tl) и фотоэлектронного умножителя ФЭУ. Питание ФЭУ осуществляется программно-управляемым источником питания 14. Детектор 11 регистрирует гамма-излучение изотопа уран-235 и дочерних изотопов урана, образующихся по цепочке радиоактивного распада и присутствующих как в гексафториде урана, так и в составе коррозионных отложений на стенках измерительной камеры. На выходе детектора формируются сигналы в виде электрических импульсов с амплитудой, пропорциональной энергии поглощенных в детекторе гамма-квантов, поступающие затем на вход многоканального АЦП в составе управляющего контроллера 16. Последний регистрирует спектр гамма-излучения от гексафторида урана, производит первичную математическую обработку и передает информацию по локальной сети 17 на центральную ЭВМ цеха 18. Клапан отбора гексафторида урана 8 и пробоотборник 13 позволяют отбирать пробы гексафторида урана для проведения масс-спектрометрического анализа его изотопного состава и расчета градуировочного коэффициента гамма-спектрометра. Моторные или электромагнитные клапаны 5 и 7 позволяют управлять потоком гексафторида урана через измерительную камеру 6. Клапаны управляются при помощи модуля силовых ключей 15 по командам контроллера 16. В состав гамма-спектрометра входит также генератор эталонных световых импульсов 12, использующийся для стабилизации измерительного тракта прибора.

Обогащение ураном-235 гексафторида урана вычисляется как отношение числа молекул урана-235 к общему числу молекул урана гексафторида в объеме измерительной камеры гамма-спектрометра

$$C_5 = \alpha_1 \cdot \frac{n_{235}}{n_{UF6}} \quad (1)$$

Мерой количества молекул изотопа уран-235 является интенсивность гамма-излучения с энергией 185.7 кэВ, сопровождающего альфа-распад урана-235 ($n_{235} \approx I$).

Поведение гексафторида урана в измерительной камере можно принять подчиняющимся законам идеального газа, а содержание легких примесей (компонентов атмосферного воздуха и HF) в технологическом потоке гексафторида урана пренебрежимо мало и достаточно постоянно. Тогда общее число молекул гексафторида урана в газовой камере можно рассчитать

по уравнению Клапейрона-Менделеева для состояния идеального газа. Это уравнение выполняется достаточно точно для молекулярных газов при обычных температурах и давлениях. В этом случае для газовой фазы измерительной камеры данное уравнение в варианте представлений молекулярно-кинетической теории газов можно записать в виде

$$P \cdot V = n_{UF6} \cdot k \cdot T, \quad (2)$$

где P – абсолютное давление в измерительной камере, Па; V – объем измерительной камеры, м³; n_{UF6} – число молекул гексафторида урана в объеме камеры; $k = 1.38066 \cdot 10^{-23}$ Дж/К – постоянная Больцмана; T – абсолютная температура гексафторида урана в измерительной камере, К.

Таким образом, общее число молекул гексафторида урана в объеме измерительной камеры определяется из выражения

$$n_{UF6} = \frac{V \cdot P}{k \cdot T}. \quad (3)$$

Величины V и k постоянны, тогда обогащение гексафторида урана ураном-235 рассчитывается по формуле

$$C_5 = \alpha_1 \cdot \frac{n_{235}}{n_{UF6}} = \alpha_2 \cdot I \cdot \frac{k \cdot T}{V \cdot P} = \alpha \frac{I \cdot T}{P}, \quad (4)$$

где α – коэффициент калибровки гамма-спектрометра по результатам масс-спектрометрического анализа.

Исходя из изложенного выше контроль обогащения газообразного гексафторида урана ураном-235 осуществляется путем измерения интенсивности гамма-излучения изотопа уран-235 с энергией 185.7 кэВ с одновременным контролем давления и температуры газа в измерительной камере.

Учет мешающих излучений

Основным фактором, влияющим на точность определения обогащения гексафторида урана, является гамма-фон, попадающий на высокочувствительный детектор от различных источников [2].

Источниками гамма-фона под контролируемым гамма-спектрометром пиком с энергией 185.7 кэВ являются:

- гамма-излучение от урана-235, находящегося в коррозионных отложениях;
- гамма-излучение от продуктов распада урана-235 (Pa-231, Th-227, Th-231), находящегося в коррозионных отложениях;
- тормозное излучение от продуктов распада урана-238 (Pa-234, Pa-234m, Th-234), находящегося в коррозионных отложениях;
- гамма-излучение и тормозное излучение от радиоактивных примесей (Ru-106, Ru-103,

продукты распада урана-232), находящихся в коррозионных отложениях;

- космическое излучение и гамма-излучение от окружающего прибор оборудования (собственный фон установки).

Гамма-фон от коррозионных отложений на стенках измерительной камеры можно разделить на две части: фон от урана-235 и фон от дочерних продуктов распада урана-238 и урана-235. Осевший на стенках уран-235 из ГФУ увеличивает фоновую подложку под пиком 185.7 кэВ и может вносить систематическую погрешность в результат определения обогащения, являясь концентрационной памятью прибора. Существенное влияние эта составляющая гамма-фона на результат анализа оказывает при переходе контроля обогащения от пробы с высокообогащенным гексафторидом урана к пробе с более низким обогащением ураном-235.

Дочерние продукты распада урана нелетучие, поэтому их накопление на внутренней поверхности измерительной камеры имеет место тогда, когда гексафторид урана остается в камере длительное время. Основными продуктами распада урана-235 являются Th-231 и Pa-231, а урана-238 – Th-234, Pa-234m и Pa-234. В более жесткой части энергетического спектра наиболее заметное влияние оказывает гамма-излучение с энергией 767 кэВ и 1001 кэВ, сопровождающее распад Pa-234m. В свою очередь Th-231, Th-234, Pa-234m и Pa-234 претерпевают бета-распад. При этом имеет место тормозной непрерывный спектр от материала камеры и от урана газовой пробы, распространяющийся на весь энергетический диапазон контролируемого пика. Следовательно, в период нестационарного процесса накопления продуктов распада, гамма-фон от камеры отбора проб будет носить переменный характер, имеющий тенденцию роста до тех пор, пока не будет достигнуто равновесная концентрация.

Таким образом, суммарная скорость счета на пике 185,7 кэВ определяется:

$$I_{\text{сумм}} = I_{235} + I_{\text{торм}}^{\text{меш}} + I_{\text{расп}}^{\text{меш}} + I_{\text{прим}}^{\text{меш}} + I_{235}^{\text{меш}} + D_1 \quad (5)$$

или

$$I_{\text{сумм}} = I_{235} + D, \quad (6)$$

где I_{235} – гамма-излучение от урана-235 с энергией 185.7 кэВ, находящегося в газовой фазе – основная информация; $I_{235}^{\text{меш}}$ – гамма-излучение от урана-235, находящегося в коррозионных отложениях – мешающее излучение; $I_{\text{расп}}^{\text{меш}}$ – гамма-излучение от продуктов распада урана (Pa-231, Pa-234, Pa-234m, Th-234, Th-231), находящегося в коррози-

онных отложениях – мешающее излучение; $I_{\text{торм}}^{\text{меш}}$ – тормозное излучение от продуктов распада урана, находящегося в коррозионных отложениях – мешающее излучение; $I_{\text{прим}}^{\text{меш}}$ – гамма-излучение от радиоактивных примесей (Ru-106, Ru-103, продукты распада урана-232), находящихся в коррозионных отложениях – мешающее излучение; D_1 – фоновое гамма-излучение от внешних источников – мешающее излучение; D – общая фоновая составляющая под пиком 185.7 кэВ.

Величину гамма-фона D под пиком 185.7 кэВ определяют методом нескольких давлений с последующей математической обработкой по следующему способу. Сущность способа заключается в измерении интенсивности гамма-излучения от измерительной камеры с гексафторидом урана одного обогащения при различных давлениях газа. Давление газа изменяется при помощи моторных клапанов 5, 7 газовой схемы гамма-спектрометра (рис.1).

Далее величину гамма-фона D определяют методом наименьших квадратов по выражению:

$$D = \frac{\sum_{i=n-j}^n I_{\text{сумм}i} \sum_{i=n-j}^n P_i^2 - \sum_{i=n-j}^n P_i I_{\text{сумм}i} \sum_{i=n-j}^n P_i}{(j+1) \sum_{i=n-j}^n P_i^2 - (\sum_{i=n-j}^n P_i)^2}, \quad (7)$$

где n – номер последнего замера; j – задаваемая величина выборки из массива (глубина расчета D); P_i – значение давления при i -том замере, мм рт.ст.; G_i – значение счета регистрируемого гамма-излучения с энергией 185.7 кэВ i -го замера.

Данный способ повышает экспрессность анализа и значительно упрощает процесс автоматизации градуировки гамма-спектрометра. Для получения по данному способу учета фоновой составляющей достоверной величины гамма-фона необходимо компромиссное решение между степенью обогащения и величиной изменения давления гексафторида урана. При низких обогащениях и малой величине разницы между давлениями газа величина числителя в выражении (7) будет иметь малую абсолютную величину и, следовательно, большую статистическую погрешность. При значительной разнице давлений (более 15 мм рт. ст.), из-за изменения преобладающей среды торможения бета-частиц, нарушается адекватность вклада тормозного излучения. Лучшие результаты могут быть получены в точках контроля со сравнительно высоким, более 20 мм рт. ст. давлением гексафторида урана.

Исходя из выше изложенного формула расчета обогащения гексафторида урана примет вид

$$C_5 = \alpha \cdot \frac{(I_{\text{сумм}} - D) \cdot T}{P}, \quad (8)$$

где α – калибровочный коэффициент; $I_{\text{сумм}}$ – значение счета регистрируемого гамма-излучения с энергией 185.7 кэВ, с⁻¹; D – значение фона в измерительной камере, с⁻¹; T – среднее значение температуры гексафторида урана в измерительной камере за время измерения, К; P – среднее значение давления гексафторида урана в измерительной камере за время измерения, мм рт. ст.

Стабилизация спектрометрического тракта

При эксплуатации гамма-спектрометров в непрерывном режиме работы, одной из основных проблем является обеспечение долговременной стабильности спектрометрического тракта блока детектирования. Наиболее нестабильными элементами аппаратуры на основе сцинтилляционных детекторов являются фотоэлектронные умножители (ФЭУ), которые чувствительны к изменениям магнитного поля, напряжения питания и температуры, а также подвержены старению. Неконтролируемые изменения коэффициента усиления ФЭУ приводят к смещению энергетической шкалы гамма-спектрометра, уширению пиков, присутствующих в измеряемом спектре, и, как следствие, к временной нестабильности результатов измерения.

В рассматриваемом гамма-спектрометре устойчивость энергетической шкалы обеспечивается системой стабилизации на основе генератора эталонных световых импульсов [3]. Структурная схема системы стабилизации представлена на рис. 2. Аппаратный спектр гамма-спектрометра в области опорного светового пика представлен на рис. 3.

Система стабилизации энергетической шкалы работает следующим образом. Генератор световых импульсов 5 (рис. 2) формирует последовательность эталонных импульсов стабильной частоты и энергии фотовспышки, которые по оптоволокну поступают на входное окно сцинтилляционного детектора 2. Одновременно на сцинтилляционный детектор поступает регистрируемое гамма-излучение от измерительной камеры с гексафторидом урана. Световые вспышки с энергией пропорциональной энергии поглощенного гамма-кванта усиливаются в ФЭУ 3 и преобразуются в импульсы тока. Далее токовые импульсы с ФЭУ 3 поступают на спектрометрический усилитель 6, где происходит усиление и согласование на нагрузку 50 Ом. Усиленные импульсы с усилителя 6 обрабаты-

ваются в многоканальном анализаторе 8, входящим в состав промышленного компьютера 9, который обеспечивает алгоритм работы всего гамма-спектрометра. Контроллер системы стабилизации 4 позволяет смещать опорный пик от эталонных световых импульсов по шкале гамма-спектрометра таким образом, чтобы спектр гамма-излучения от измерительной камеры с гексафторидом урана не накладывался на опорный пик. Данная функция позволяет регистрировать одновременно исследуемое излучение от измерительной камеры с гексафторидом урана и эталонные световые импульсы без взаимного влияния.

За определенные промежутки времени, происходит сравнение счета импульсов в подканалах стабилизации N1, N2 опорного фотопика от генератора эталонных световых импульсов. При превышении разностью счета в вырезанных подканалах, определенной величины, вырабатывается управляющее воздействие на программно-управляемый источник питания ФЭУ 1, посредством изменения кода цифроаналогового преобразователя (ЦАП). Изменение кода ЦАП в противофазе со смещением опорного пика, изменяет величину напряжения питания ФЭУ, тем самым, возвращая опорный световой пик, а следовательно и контролируемый пик гамма-излучения с энергией 185.7 кэВ, в исходное положение на энергетической шкале спектрометра.

Структурная схема генератора эталонных световых импульсов представлена на рис. 4. Генератор импульсов 2 формирует

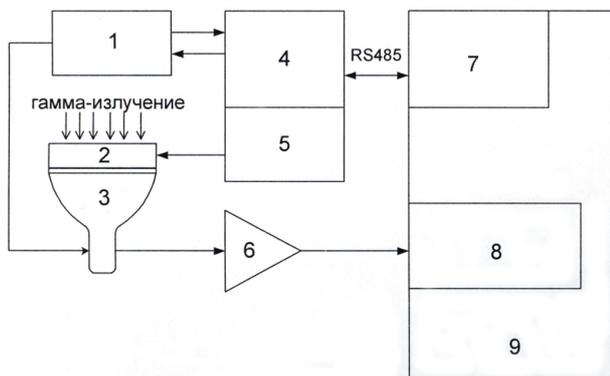


Рис. 2. Структурная схема системы стабилизации энергетической шкалы гамма-спектрометра: 1 – источник питания фотоэлектронного умножителя; 2 – сцинтилляционный детектор NaI(Tl); 3 – фотоэлектронный умножитель; 4 – контроллер системы стабилизации; 5 – генератор световых импульсов; 6 – усилитель спектрометрический (УС); 7 – адаптер интерфейса RS-485; 8 – многоканальный анализатор; 9 – промышленный компьютер, в состав которого входят плата адаптера интерфейса RS-485 7 и плата многоканального анализатора 8 АЦП-8К-2М фирмы “Аспект-Дубна”

последовательность импульсов стабильной длительности и частоты. Сформированный по длительности сигнал усиливается по мощности в усилителе тока 4 и поступает на $In_xGa_{1-x}N$ светодиод HLMP-CB15 7. Часть излучения светодиода 7 ответвляется по оптоволокну на вход канала оптической обратной связи 3. Другая часть излучения светодиода по оптоволокну поступает на входное окно ФЭУ. В качестве фотоприемника канала обратной оптической связи используется *pin*-фотодиод 3 HAMAMATSU S3590-02. Токовый сигнал с *pin*-фотодиода 3 усиливается и преобразуется

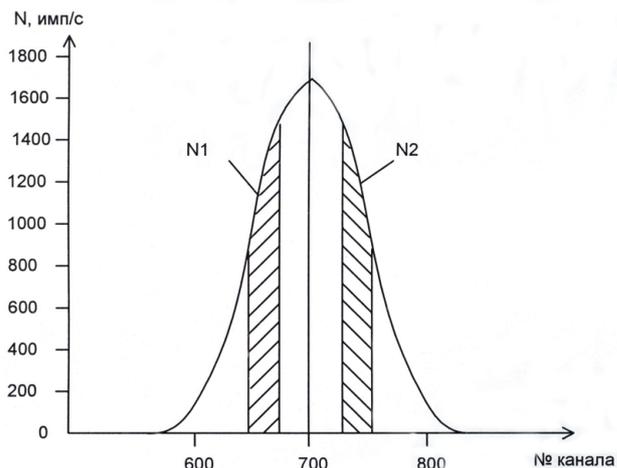


Рис. 3. Аппаратный спектр гамма-спектрометра в области опорного светового пика (зависимость скорости счета импульсов регистрируемого гамма-излучения в канале многоканального анализатора от номера канала многоканального анализатора): N1 – левый подканал системы стабилизации; N2 – правый подканал системы стабилизации

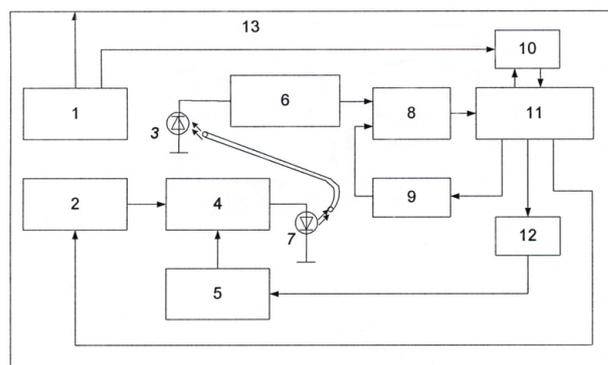


Рис. 4. Структурная схема генератора эталонных световых импульсов: 1 – термостабилизатор; 2 – генератор импульсов; 3 – *pin*-фотодиод; 4 – усилитель тока; 5 – регулируемый источник напряжения; 6 – усилитель/формирователь; 7 – светодиод; 8 – компаратор; 9 – регулируемый источник опорного напряжения $U_{оп}$; 10 – аналого-цифровой преобразователь (АЦП); 11 – микроконтроллер; 12 – цифроаналоговый преобразователь (ЦАП); 13 – термостат

в сигнал напряжения в усилителе/формирователе 6 и поступает на компаратор 8. В компараторе 8 происходит сравнение амплитуды импульса, полученного с *pin*-фотодиода 3, с опорным уровнем 9, величина которого может изменяться по командам микроконтроллера 11, с целью перемещения положения центра опорного оптического фотопики по энергетической шкале гамма-спектрометра. Логический сигнал рассогласования с выхода компаратора 8 поступает на микроконтроллер 11, где анализируется и используется для управления шестнадцатиразрядным ЦАП 12, выходной сигнал которого, управляет регулируемым источником напряжения питания светодиода 5, поддерживая амплитуду светового импульса, а следовательно и энергию фотовспышки на заданном уровне. Для снижения температурной нестабильности генератора световых импульсов, все элементы системы стабилизации помещены в термостат 13, работа которого обеспечивается термостабилизатором 1.

Заключение

Описанный гамма-спектрометр был испытан на технологических потоках цехов по разделению изотопов урана ОАО УЭХК при различных условиях эксплуатации, таких как:

- температура окружающей среды;
- давление гексафторида урана в технологических потоках;

- значение обогащения гексафторида урана ураном-235.

Прибор зарекомендовал себя как надежный, имеющий высокие и стабильные метрологические характеристики. Примененные технические и программные решения позволили обеспечить непрерывное круглосуточное измерение обогащения ураном-235 гексафторида урана без участия оператора, автоматический учет фона мешающего гамма-излучения, полную автоматизацию процесса измерения и настройки гамма-спектрометра.

ЛИТЕРАТУРА

1. Способ контроля массовой доли изотопа уран-235 в газовой фазе гексафторида урана и система измерения для его реализации. Пат. 2330308 Рос. Федерация. № 2006138927/28 ; заявл. 03.11.2006; опубл. 27.07.2008. Бюл. № 21. 12 с.
2. Методы расчета обогащения гексафторида урана ураном-235 с использованием сцинтилляционных детекторов: Отчет о НИР (промежуточ.) / ООО "Уралприбор"; Инв. № 17/39. Руководитель Гусев В.П. Новоуральск, 2007. 58 с.
3. Разработка гамма-спектрометра для контроля обогащения гексафторида урана ураном-235: Отчет о НИР (заключительный) / ООО "Уралприбор"; Инв. № 17/196. Руководитель Гусев В.П. Новоуральск, 2007. 106 с.

GAMMA-RAY SPECTROMETER FOR THE MONITORING OF THE URANIUM-235 ENRICHMENT OF THE URANIUM HEXAFLUORIDE

V.P. Gusev, S.V. Tkachev, V.A. Pavlikov

Novoural'sk Instrumental Factory

The results of the gamma-ray spectrometer for the monitoring of the uranium-235 enrichment of the uranium hexafluoride development are considered. The control principles of the uranium hexafluoride enrichment, methods of perturbing radiation accounting and energy scale stabilization are described. The technical and software solutions underlying in device allowed to develop functional and multipurpose gamma-ray spectrometer.

Keywords: *gamma-ray spectrometer, enrichment, uranium hexafluoride, perturbing radiation, energy scale.*