

**ОБЕСПЕЧЕНИЕ ДОСТОВЕРНОСТИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ДАННЫХ,
ПОЛУЧАЕМЫХ ПРИ ДОЗИМЕТРИЧЕСКИХ ИЗМЕРЕНИЯХ
У ВНЕШНЕЙ ПОВЕРХНОСТИ КОРПУСА ВВЭР**

В. Н. Буканов, Е. Г. Васильева, В. Л. Демехин, А. М. Пугач

Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

Представлены результаты работ по обеспечению достоверности данных, получаемых при спектрометрических измерениях нейтронно-активационных детекторов, которые облучаются у внешней поверхности корпуса ВВЭР. Показано, что значения удельных активностей детекторов могут быть использованы при выполнении процедуры верификации методики мониторинга радиационной нагрузки корпуса реактора.

Введение

Современная методика мониторинга радиационной нагрузки корпуса реактора (КР) включает численные расчеты переноса нейтронов из активной зоны на корпус и дозиметрические измерения у его внешней поверхности [1]. Экспериментальные данные, получаемые в ходе дозиметрических измерений, используются для обоснования достоверности результатов определения функционалов нейтронного потока, воздействующего на КР.

Методика мониторинга радиационной нагрузки КР может быть применена на АЭС, если в достаточной степени обосновано, что она обеспечивает получение данных об условиях облучения корпуса с точностью, необходимой для эффективного функционирования программы управления сроком службы основного оборудования реакторной установки. Обоснование точности достигается путем проведения процедуры верификации как всей методики в целом, так и ее составных частей. Основу верификации составляют данные, получаемые в ходе реперных, макетных и натуральных экспериментов [2]. К натурным экспериментам, которые, как правило, выполняются на действующих энергоблоках, могут

быть отнесены и дозиметрические измерения у внешней поверхности КР при условии, если обеспечена достоверность получаемых данных.

В работе рассмотрено, каким образом обеспечивается достоверность экспериментальных данных, получаемых при определении радиационной нагрузки и условий облучения КР по методике, разработанной и используемой специалистами ИЯИ НАН Украины.

**Дозиметрические измерения
у внешней поверхности КР**

Дозиметрические измерения у внешней поверхности корпуса ВВЭР выполняются нейтронно-активационным методом. Нейтронно-активационные детекторы (НАД) из ниобия, железа, титана и меди, которые облучаются в течение топливной кампании, изготавливаются из материалов, сертифицированных для реакторной нейтронной дозиметрии. Результатами дозиметрических измерений являются удельные активности продуктов реакций активации $^{93}\text{Nb}(n, n')^{93\text{m}}\text{Nb}$, $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$, $^{\text{nat}}\text{Ti}(n, x)^{46}\text{Sc}$ и $^{63}\text{Cu}(n, \alpha)^{60}\text{Co}$. В таблице представлены ядерно-физические характеристики продуктов этих реакций активации, а также их погрешности.

Реакции активации, используемые для дозиметрических измерений у внешней поверхности КР, и ядерно-физические характеристики их продуктов (в скобках приведены погрешности последних знаков)

Реакция	Продукт реакции	Период полураспада, сут	Энергия γ -квантов, кэВ	Квантовый выход, %	Источник
$^{93}\text{Nb}(n, n')$	$^{93\text{m}}\text{Nb}$	5890 (50)	K_{α}	9,3 (3)	[5]
			K_{β}	1,79 (7)	
$^{54}\text{Fe}(n, p)$	^{54}Mn	312,12 (6)	834,848 (3)	99,976 (1)	[6]
$^{\text{nat}}\text{Ti}(n, x)$	^{46}Sc	83,79 (4)	889,277 (3)	99,984 (1)	[7]
			1120,545 (4)	99,987 (1)	
$^{63}\text{Cu}(n, \alpha)$	^{60}Co	1925,3 (3)	1173,228 (3)	99,85 (3)	[8]
			1332,492 (4)	99,9826 (6)	

Перед началом топливной кампании комплекты НАД с помощью специального оборудования устанавливаются у внешней поверхности корпуса ВВЭР. Подробное описание оборудования,

разработанного для реакторов ВВЭР-1000, приведено в работе [3], а для реакторов ВВЭР-440 – в работе [4].

Определение удельных активностей НАД

Измерения активностей облученных НАД выполняются на спектрометрической установке, в состав которой входят полупроводниковые детекторы из сверхчистого германия с преусилителями, источники высокого напряжения, спектроскопические усилители, многоканальный анализатор. Установка обеспечивает измерения γ -спектров в диапазоне от 10 кэВ до 3 МэВ. Энергетическое разрешение составляет 450 эВ для рентгеновских линий 16,6, 18,6 и 2,1 кэВ для γ -линии 1332,5 кэВ.

Для определения удельной активности продукта реакции $^{93}\text{Nb}(n, n')^{93\text{m}}\text{Nb}$ используется специально разработанная методика. Согласно этой методике измерению активности $^{93\text{m}}\text{Nb}$ предшествует радиохимическое отделение ниобия от тантала, основанное на методе ионообменной хроматографии на анионитах из сильноосновных смол. Образец, полученный в результате радиохимического разделения, представляет собой тонкий слой мелкодисперсного осадка ниобиевой кислоты и не содержит примеси тантала. Химический выход определяется посредством измерения активности ^{94}Nb в исходном и конечном образцах.

По результатам спектрометрических измерений удельные активности продуктов реакций активации на момент конца облучения могут быть рассчитаны по точной формуле

$$A^{\text{exp}} = \frac{e^{\lambda t_w}}{m} \times \frac{S(E_\gamma) \cdot C_t \cdot C_d \cdot C_s \cdot C_{\text{sa}}(E_\gamma) \cdot C_v}{n(E_\gamma) \cdot \varepsilon(E_\gamma) \cdot t_m}, \quad (1)$$

где λ – постоянная распада продукта реакции активации; t_w – время выдержки, т.е. время между окончанием облучения (кампании) и началом измерения; m – масса НАД; $S(E_\gamma)$ – число импульсов в пике полного поглощения γ -квантов с энергией E_γ , попадающих в детектор; C_t – поправка, учитывающая распад во время измерения, C_d – поправка, учитывающая просчеты за счет "мертвого" времени установки, C_s – поправка, учитывающая суммирование каскадных γ -квантов, $C_{\text{sa}}(E_\gamma)$ – поправка, учитывающая самопоглощение γ -квантов с энергией E_γ в материале НАД, C_v – поправка, учитывающая отличие размеров НАД от размеров калибровочного источника, $n(E_\gamma)$ – квантовый выход γ -квантов с энергией E_γ ; $\varepsilon(E_\gamma)$ – эффективность регистрации

γ -квантов с энергией E_γ ; t_m – время измерения.

Масса детекторов m определяется с помощью электронных аналитических весов ANALYTICAL Plus AP 250D производства фирмы OHAUS (Швейцария). Эти весы согласно результатам государственной метрологической аттестации имеют следующие метрологические характеристики:

дискретность отсчета 0,01 мг;

границы допустимой абсолютной погрешности $\pm 0,15$ мг;

первый класс весов согласно ГОСТ 24104-88 "Весы лабораторные общего назначения и образцовые. Общие технические условия".

Поправка C_t , учитывающая распад радионуклида во время измерения, точно рассчитывается программой обработки результатов для каждого измерения НАД по формуле

$$C_t = \lambda t_m / (1 - \exp(-\lambda t_m)). \quad (2)$$

Общая формула для вычисления поправки, учитывающей просчеты за счет "мертвого" времени, имеет вид

$$C_d = \frac{\int_0^t dt' I(E_\gamma, t') / (1 - I_{\text{tot}}(t') \cdot \tau_d)}{\int_0^t dt' I(E_\gamma, t')}, \quad (3)$$

где $I(E_\gamma, t')$ и $I_{\text{tot}}(t')$ – интенсивности регистрации импульсов в момент времени t' в пике полного поглощения γ -квантов с энергией E_γ и во всем спектре соответственно; τ_d – "мертвое" время спектрометрической установки.

Так как периоды полураспада продуктов используемых реакций активации существенно больше времен измерений НАД, то можно считать, что $I(E_\gamma, t')$ и $I_{\text{tot}}(t')$ в течение спектрометрических измерений не являются функциями времени. Поэтому формула (3) принимает вид

$$C_d = 1 / (1 - I_{\text{tot}} \cdot \tau_d) = 1 / (1 - t_d / t_m) = t_m / t_1, \quad (4)$$

где t_d и t_1 – "мертвое" и "живое" время измерения соответственно.

Строгий расчет поправки на самопоглощение γ -квантов в материале НАД C_{sa} может быть проведен только для каждого конкретного измерения. Однако в случае небольших величин самопоглощения (до 0,1), что выполняется для толщин НАД из железа, титана и меди, можно использовать приближенную формулу [9]

$$C_{sa} = \mu^* \rho \Delta / (1 - \exp(-\mu^* \rho \Delta)), \quad (5)$$

где ρ – плотность вещества НАД, Δ – толщина НАД,

$$\mu^* = \mu_m \cdot \ln(\cos \alpha) / (\cos \alpha - 1), \quad (6)$$

где μ_m – массовый коэффициент ослабления γ -квантов с энергией E_γ веществом НАД (учитываются все виды взаимодействия, кроме когерентного рассеяния).

Рассчитанные с учетом данных, приведенных в работе [10], с точностью 0.05 % величины C_{sa} равны: 1,002 – для НАД из железа, 1,007 – для НАД из титана, 1,024 – для НАД из меди.

Величины поправок C_{sa} в образцах ниобия определяются экспериментально по ослаблению рентгеновского излучения источника ^{93m}Nb , не содержащего радиоактивного тантала, и учитываются отдельно для каждого образца.

Определение величин поправок C_v для каждого НАД не представляется возможным в силу своей сложности. Поэтому геометрия измерений выбирается таким образом, чтобы эти поправки незначительно отличались от 1. Это обеспечивается тем, что размеры НАД гораздо меньше диаметра спектрометрического детектора и расстояния до него. Тем не менее, для уверенного подтверждения данного факта необходимо экспериментальное доказательство отсутствия влияния отличия геометрических размеров образцовых калибровочных источников и НАД на результаты измерений. Такое доказательство является составной частью процедуры метрологического обеспечения спектрометрических измерений.

Процедура метрологического обеспечения спектрометрических измерений

Выполнение указанной процедуры обусловлено необходимостью обеспечения достоверности получаемых результатов и тем, что эффективность регистрации γ -квантов, излучаемых НАД, может отличаться от эффективности регистрации, полученной по результатам измерений образцовых калибровочных источников, из-за различных условий измерений. Эта процедура была выполнена в соответствии, прежде всего, с требованиями, приведенными в нормативном документе, действующем в США [11]. Такой выбор обусловлен тремя основными причинами: во-первых, американская система стандартизации на сегодняшний день является наиболее структурированной и полной; во-вторых, эти требования относятся к обеспечению не просто

дозиметрических измерений, а именно тех, которые связаны с определением условий облучения КР; в-третьих, эти требования являются, пожалуй, наиболее жесткими из всех существующих.

Процедура метрологического обеспечения спектрометрических измерений НАД, облучавшихся у внешней поверхности КР, включала в себя следующие операции:

1. Доказательство независимости регистрируемой скорости счета в пике полного поглощения γ -квантов от загрузки детектора. С этой целью за одно и то же "живое" время измерения определялись площади пиков полного поглощения γ -квантов изотопа ^{60}Co с энергиями 1173,2 и 1332,5 кэВ при относительных величинах "мертвого" времени до 15 %. Изменение величины "мертвого" времени производилось путем изменения расстояния до детектора дополнительного источника ^{137}Cs , излучающего γ -кванты со значительно меньшей энергией.

2. Доказательство независимости регистрируемой скорости счета в пике полного поглощения γ -квантов от скорости счета подставки под ним. С этой целью за одно и то же "живое" время измерения определялись площади пиков полного поглощения γ -квантов изотопа ^{137}Cs с энергией 661,66 кэВ при различных скоростях счета подставки, изменение которых производилось путем изменения расстояния до детектора дополнительного источника ^{60}Co , излучающего γ -кванты со значительно большей энергией.

3. Доказательство отсутствия влияния отличия геометрических размеров ОСГИ и НАД на результаты измерений. С этой целью проверялась скорость счета в пике полного поглощения γ -квантов 661,66 кэВ ^{137}Cs при различных положениях источника относительно центральной оси детектора. При сравнении скоростей счета для источника, расположенного на оси и смещенного в сторону на 2 мм, что соответствует половине ширины НАД, каких-либо отличий в пределах статистической погрешности измерений, которая составляла приблизительно 0,1 %, выявлено не было. Это соответствует расчетным данным, согласно которым для расстояний 10 и 25 см между источником и детектором такое отличие не превышает 0,04 и 0,01 % соответственно.

4. Специальный комплекс работ по определению величины поправки на суммирование каскадных γ -квантов. Для этого вычислялась полная эффективность регистрации, т.е. отношение общего количества зарегистрированных γ -квантов, включая комптоновское рассеяние, к количеству испущенных. Учитывая, что полная эффективность регистрации очень слабо зависит от энер-

гии γ -квантов, вычислялись ее средние значения для γ -квантов 1173,2 и 1332,5 кэВ ^{60}Co . Для расстояний 10 и 25 см между источником и детектором были получены значения 1,48 и 0,39 % соответственно. Следовательно, поправка на суммирование для γ -линий ^{60}Co составляет 1,015 и 1,004 соответственно.

Важнейшей частью процедуры метрологического обеспечения спектрометрических измерений является оценивание эффективностей регистрации $\varepsilon(E_\gamma)$ и их ковариационной матрицы для точечного источника.

С целью решения этой задачи были измерены источники ^{241}Am , ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu из комплекта ОСГИ. При получении первоначальных данных для построения кривой "энергия - эффективность" использовались периоды полураспада, энергии γ -квантов и их квантовые выходы, рекомендованные МАГАТЭ для калибровки γ -спектрометров [12].

Калибровка производилась в рентгеновском диапазоне и в диапазоне 240 - 1410 кэВ, где согласно данным публикаций [11, 13] зависимость эффективности регистрации ε от энергии γ -квантов E достаточно хорошо описывается степенной функцией. Однако, учитывая необходимость получения точных результатов, включающих ковариационную матрицу, была рассмотрена возможность более сложной зависимости. В общем случае предполагалось, что такая зависимость может быть представлена в виде

$$\ln \varepsilon = \sum_{j=0}^n b_{j+1} (\ln E)^j, \quad (7)$$

где n – максимальная степень полинома; b_j – неизвестные коэффициенты, являющиеся элементами вектора \mathbf{b} .

В таком случае нахождение оптимального решения эквивалентно нахождению минимума функционала

$$(\mathbf{y} - \mathbf{Xb})' \mathbf{C}^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{Xb}), \quad (8)$$

где элементы векторов и матриц определяются выражениями

$$y_i = \ln \varepsilon'_i, \quad i = \overline{1, k}, \quad (9)$$

$$x_{ij} = (\ln E_i)^{j-1}, \quad i = \overline{1, k}, j = \overline{1, n+1}, \quad (10)$$

$$c_{i_1 i_2} = \frac{\text{cov}(\varepsilon'_{i_1}, \varepsilon'_{i_2})}{\varepsilon'_{i_1} \cdot \varepsilon'_{i_2}}, \quad i_1, i_2 = \overline{1, k}, \quad (11)$$

где ε'_i – экспериментальное значение эффектив-

ности регистрации γ -квантов с энергией E_i ; k – количество экспериментальных точек, по которым производится калибровка.

Поставленная задача имеет единственное решение:

$$\mathbf{b} = \mathbf{B} \mathbf{y}, \quad (12)$$

где матрица \mathbf{B} определяется выражением

$$\mathbf{B} = (\mathbf{X}' \mathbf{C}^{-1} \mathbf{X})^{-1} \mathbf{X}' \mathbf{C}^{-1}. \quad (13)$$

Ковариационная матрица элементов вектора \mathbf{b} может быть вычислена по формуле

$$\mathbf{D}_b = \mathbf{B} \mathbf{C} \mathbf{B}'. \quad (14)$$

Анализ полученных результатов показал, что оптимальная сходимость построенной кривой с экспериментальными результатами достигается при $n = 2$.

Значения эффективностей регистрации для представляющих интерес энергий γ -квантов E_k и нормированные элементы соответствующей ковариационной матрицы вычисляются по формулам

$$\varepsilon_k = \exp \left(\sum_{j=0}^n b_{j+1} (\ln E_k)^j \right), \quad (15)$$

$$\frac{\text{cov}(\varepsilon_{k_1}, \varepsilon_{k_2})}{\varepsilon_{k_1} \varepsilon_{k_2}} =$$

$$= \sum_{j_1=0}^n \sum_{j_2=0}^n (\ln E_{k_1})^{j_1} (\ln E_{k_2})^{j_2} \text{cov}(b_{j_1}, b_{j_2}). \quad (16)$$

В результате проведенной калибровки были получены требуемые значения. Погрешности калибровки спектрометрической аппаратуры по эффективности составили 3 - 5 % в зависимости от энергии γ -квантов.

Закключение

Таким образом, проведенный комплекс исследований показывает, что методика получения экспериментальных данных у внешней поверхности КР действующего энергоблока обеспечивает достоверность экспериментальных значений удельных активностей НАД и их погрешностей. Следовательно, эти данные могут быть использованы и при выполнении процедуры верификации методики мониторинга радиационной нагрузки корпуса ВВЭР, и, тем более, обосновании достоверности результатов определения функционалов нейтронного потока, воздействующего на КР.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Minutes of WGRD-VVER Workshop on RPV Neutron Dosimetry*. Sandanski, Bulgaria, 29 Sept. - 3 Oct. 1997. - 4 p.
2. Буканов В. Н., Демехин В. Л., Липский И. И. Основные положения процедуры верификации программных средств, используемых при дозиметрии корпуса реактора. (В печати.)
3. Буканов В. Н., Васильева Е. Г., Демехин В. Л., Пугач А. М. Оборудование для дозиметрических измерений у внешней поверхности корпуса ВВЭР-1000 // 36. наук. праць Ін-ту ядерних досл. - 2005. - № 3 (16). - С. 70 - 78.
4. Пугач А. М., Буканов В. Н., Васильева Е. Г. и др. Разработка методических основ системы мониторинга радиационной нагрузки корпуса реактора ВВЭР-440 // Там же. - 2006. - № 2 (18). - С. 64 - 69.
5. *Baglin C. M.* ⁹³Nb: Adopted Levels, Gammas // *Nuclear Data Sheets*. - 1997. - Vol. 80. - P. 1 - 156.
6. *Junde H.* ⁵⁴Cr: Adopted Levels, Gammas // *Ibid.* - 1993. - Vol. 68. - P. 887 - 934.
7. *Wu S.-C.* ⁴⁶Ti: Adopted Levels, Gammas // *Ibid.* - 2000. - Vol. 91. - P. 1 - 116.
8. *King M. M.* ⁶⁰Ni: Adopted Levels, Gammas // *Ibid.* - 1993. - Vol. 69. - P. 1 - 154.
9. *Внутриреакторная дозиметрия: Практическое руководство* / Б. А. Брискман, В. В. Генералов, Е. А. Крамер-Агеев, В. С. Трошин. - М.: Энергоатомиздат, 1985. - 200 с.
10. *Hubbell J. H.* Photon Mass Attenuation and Energy-Absorption Coefficients from 1 keV to 20 MeV // *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* - 1982. - Vol. 33. - P. 1269 - 1290.
11. *E 181-82.* Standard General Methods for Detector Calibration and Analysis of Radionuclides // 1990 Annual Book of ASTM Standards. - ASTM, Easton, MD (USA), 1990. - P. 16 - 31.
12. *X-Ray and Gamma-Ray Standards for Detector Calibration*, IAEA-TECDOC-619 / Ed. Lemmel H. D. - Vienna, Austria: IAEA, 1991. - 157 p.
13. *Detectors & Instruments for Nuclear Spectroscopy*. - EG&G ORTEC, Oak Ridge, TN, USA, 1992.

ЗАБЕЗПЕЧЕННЯ ДОСТОВІРНОСТІ ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНИХ ДАНИХ, ЩО ОТРИМУЮТЬСЯ ПРИ ДОЗИМЕТРИЧНИХ ВИМІРЮВАННЯХ БІЛЯ ЗОВНІШНЬОЇ ПОВЕРХНІ КОРПУСУ ВВЕР

В. М. Буканов, О. Г. Васильєва, В. Л. Дємьохін, О. М. Пугач

Представлено результати робіт по забезпеченню достовірності даних, що отримуються при спектрометричних вимірюваннях нейтроно-активаційних детекторів, які опромінюються біля зовнішньої поверхні корпусу ВВЕР. Показано, що значення питомих активностей детекторів може бути використане при виконанні процедури верифікації методики моніторингування радіаційного навантаження корпусу реактора.

VVER EX-VESSEL DOSIMETRY EXPERIMENTAL DATA RELIABILITY SUPPORT

V. N. Bukanov, E. G. Vasylieva, V. L. Diemokhin, A. M. Pugach

Results to support reliability of the VVER ex-vessel dosimetry neutron-activation detector spectrometric data are presented. It is shown. that detector specific activity values can be used for validation of the reactor pressure vessel radiation exposure methodology.

Поступила в редакцію 21.04.08,
после доработки – 28.07.08.