

## РАДИОХИМИЧЕСКИЙ ДЕТЕКТОР ПРОСТРАНСТВЕННОГО РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПЛОТНОСТИ ПОТОКА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНОВ В ЯДЕРНОМ РЕАКТОРЕ

**С.Г. Лебедев**, ст. научн. сотр., рук. группы ФГУН Институт ядерных исследований РАН, канд. физ.-мат. наук, *serleb@yandex.ru*

**В.Э. Янц**, научн. сотр. ФГУН Институт ядерных исследований РАН, *serleb@yandex.ru*

*В работе приводится описание устройства для измерения пространственного распределения плотности потока быстрых нейтронов в ядерном реакторе, основанного на опыте работы проточного газового монитора нейтронного потока. Устройство представляет собой цилиндрическую трубку, разделенную на домены с порошкообразным активным веществом – оксалатом кальция, в котором происходят ядерные реакции с образованием инертного радиоактивного газа  $^{37}\text{Ar}$ , который транспортируется газом – носителем в пропорциональный счетчик, где производится измерение скорости распадов  $^{37}\text{Ar}$ , однозначно связанной с потоком нейтронов в активной зоне. Устройство позволяет в реальном масштабе времени получать информацию о распределении нейтронных потоков по высоте активной зоны. Преимуществами устройства является отсутствие механических элементов, радиационная стойкость и широкий температурный диапазон.*

**Ключевые слова:** нейтроны, ядерный реактор, радиохимический детектор, оксалат кальция, инертный радиоактивный газ.

## RADIOCHEMICAL DETECTOR FOR SPATIAL DISTRIBUTION OF THE FAST NEUTRONS FLUX DENSITY IN A NUCLEAR REACTOR

**S.G. Lebedev**, Senior Researcher, Head of Department, Federal State Budgetary Research Institution of the Institute for Nuclear Research of the Russian Academy of Sciences, Doctor of Physics and Mathematics, *serleb@yandex.ru*

**V.E. Yants**, Research Associate, Federal State Budgetary Institution of Science of the Institute for Nuclear Research of the Russian Academy of Sciences, *serleb@yandex.ru*

*The paper describes a device for measuring the spatial distribution of the fast neutron flux density in a nuclear reactor based on the experience of a flow gas monitor of a neutron flux. The device is a cylindrical tube divided into domains with a powdered active substance – calcium oxalate, in which nuclear reactions take place to form an inert radioactive gas  $^{37}\text{Ar}$ , which is transported by a carrier gas to a proportional counter, where the  $^{37}\text{Ar}$  decay rate is measured, which is uniquely related to the neutron flux in the core. The device allows obtaining real-time information about the distribution of neutron fluxes along the height of the core. Advantages of the device are the absence of mechanical elements, radiation resistance and a wide temperature range.*

**Keywords:** neutrons, nuclear reactor, radiochemical detector, calcium oxalate, inert radioactive gas.

### Введение

Для регистрации ионизирующего излучения в режиме реального времени (мониторинга) был предложен [1–4] проточный газовый радиохимический метод. Похожий метод ранее применялся для регистрации распадов с участием нейтрино в хлор-аргоновом детекторе [5], а также для измерения фона быстрых нейтронов с потоками  $\sim 10^{-2}$  н/см<sup>2</sup>/сутки в

галлий-германиевом детекторе [6, 7]. Особенностью указанных измерений являлась экспозиция больших (100–1000 кг.) масс активного вещества в потоках нейтрино и нейтронов с конденсацией наработанного инертного газа при низких температурах. Для определения количества наработанного газа конденсат помещался в пропорциональный стационарный счетчик.

В работах [8–10] нами был предложен и испытан в работе радиохимический детектор быстрых нейтронов, основанный на реакции  $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$  с эффективным порогом  $E_n = 1,5$  Мев.  $^{37}\text{Ar}$  является инертным радиоактивным газом с периодом полураспада  $T_{1/2} = 35$  дней, не вступающим в какое-либо взаимодействие с конструкционными материалами по пути следования.

Измерение распределения плотности потока быстрых нейтронов (ППБН) по длине тепловыделяющего элемента (ТВЭЛ) в режиме работы реактора на полной мощности позволяет оценить соответствующее распределение степени выгорания топлива. Такого рода информация дает возможность более эффективно использовать ядерное топливо. Однако оперативное измерение ППБН в энергетических реакторах при работе на полной мощности крайне затруднительно, прежде всего, по причине отсутствия адекватных средств измерения ППБН величиной  $F_n \sim 10^{13}$  н/(см<sup>2</sup>сек) в режиме быстрого сканирования по длине ТВЭЛ. В качестве мишенного материала в детекторе [8–10] использовался обезвоженный порошок оксалата кальция  $\text{CaC}_2\text{O}_4$ , главной особенностью которого является то, что  $^{37}\text{Ar}$ , образованный в реакции  $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$ , при комнатной температуре легко выходит из микрокристаллов оксалата кальция в межкристаллическое пространство. Порошок оксалата кальция обладает высокой термостойкостью и обнаруживает признаки разложения при температуре  $T > 380$  °С. Ампула с порошком оксалата кальция помещалась в нейтронный поток и продувалась постоянным током газа-носителя гелия. Образовавшийся  $^{37}\text{Ar}$  выходил из кристалла оксалата кальция в межкристаллитный объем, увлекался током газа-носителя в проточный пропорциональный счетчик, где и производилась регистрация его распадов. Поскольку чистый гелий непригоден для работы счетчика в пропорциональном счетном режиме, в счетчик дополнительно вводилась гасящая добавка  $\text{CH}_4$  или  $\text{CO}_2$  в количестве 5 % от объемного расхода гелия.

При стационарных условиях, когда поток нейтронов и расход гелия постоянны, между скоростью распада  $^{37}\text{Ar}$  в счетчике  $I_{\text{count}}$  и плотностью потока нейтронов  $F_n$  существует простая связь:

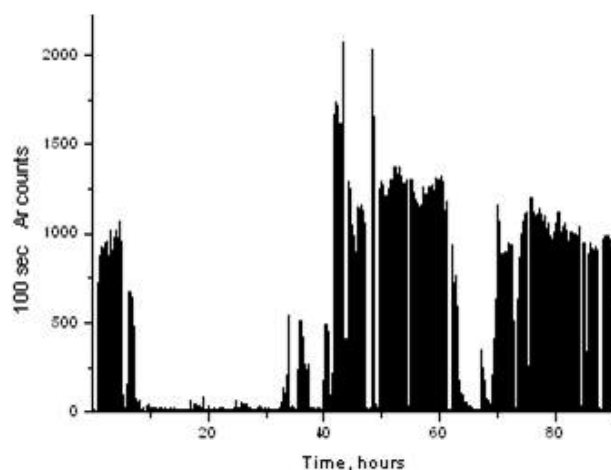
$$I_{\text{count}} = N_{\text{Ca}} F_n \sigma_{n,\alpha} \lambda_{37} V_{\text{count}} / L_{\text{He}}, \quad (1)$$

где  $N_{\text{Ca}}$  – число атомов Ca в мишени,  $\sigma_{n,\alpha}$  – усредненное по спектру сечение реакции  $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$ ,  $\lambda_{37}$  – постоянная распада  $^{37}\text{Ar}$ ,  $V_{\text{count}}$  – объем He в счетчике при нормальных условиях,  $L_{\text{He}}$  – объемный расход гелия при нормальных условиях. Постоянную времени реакции детектора на изменение потока нейтронов можно оценить выражением  $V_{\text{count}} / L_{\text{He}}$ .

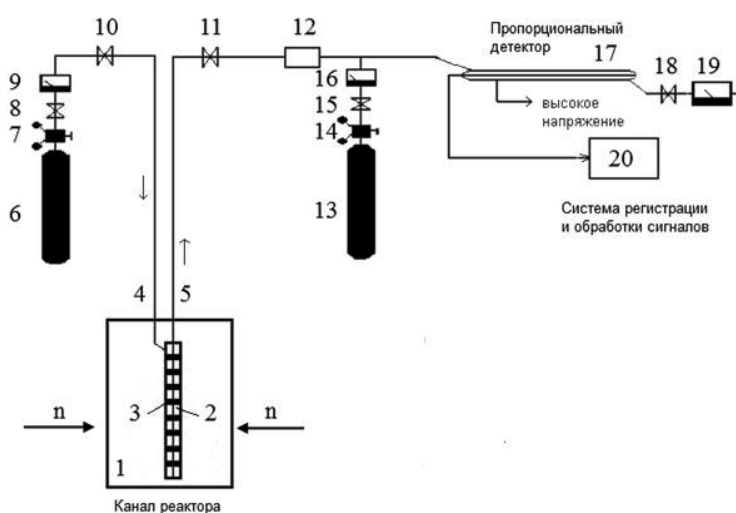
Детектор, основанный на данном принципе, был использован нами для мониторинга нейтронного потока [8–10] на установке РАДЭКС Института ядерных исследований РАН [11–13]. На рис. 1 представлена зависимость счета распадов радиоактивного  $^{37}\text{Ar}$  от времени облучения нейтронами в установке РАДЭКС. Описанный «точечный» радиохимический детектор на основе оксалата кальция применялся для измерения локальной плотности потока быстрых нейтронов при величине плотности потока  $F_n = 10^8$  н/см<sup>2</sup>сек.

При переходе к  $F_n \geq 10^{11}$  н/см<sup>2</sup>сек появляется возможность применения протяженной мишени в виде хроматографической колонки, помещенной, к примеру, в технологический канал ТВЭЛ ядерного реактора и заполненной гелием [14]. Принципиальная схема предлагаемого устройства представлена на рис. 2. В ампуле 1, выполненной протяженной в виде колонки и помещенной в нейтронный поток, находится порошкообразное активное веще-

ство, микрокристаллический порошок обезвоженного оксалата кальция  $\text{CaC}_2\text{O}_4$ . Активное вещество разбито на домены 2, разделенные равными промежутками, в которых размещены протяженные пористые вставки 3 из инертного материала. Вход 4 ампулы подключен к резервуару 6 с газом-носителем, а выход 5 – к входу проточного детектора 17 с системой 20 регистрации и обработки сигналов. Газ-носитель из резервуара (баллона) 6 через редуктор 7, регулятор 8 расхода, расходомер 9 и клапан 10 проходит через ампулу 1, увлекая с собой инертный радиоактивный газ  $^{37}\text{Ar}$ , образованный в реакции  $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$ , и далее через клапан 11 и геттер 12 проходит в проточный детектор 17. После детектора 17 газ проходит через клапан 18 и расходомер 19 и выходит из системы регистрации. Проточным детектором 17 может служить пропорциональный детектор. Газ-носитель доставляет в счетчик радиоактивный газ  $^{37}\text{Ar}$ , атомы которого распадаются в объеме счетчика с испусканием оже-электронов.



**Рис. 1. Иллюстрация мониторинга нейтронного потока с помощью проточного радиохимического детектора на установке РАДЭКС ИЯИ РАН**



**Рис. 2. Схема радиохимического детектора пространственного распределения плотности потока нейтронов в ядерном реакторе**

Как и в случае «точечного» детектора, при выборе газа-носителя в радиохимическом детекторе плотности потока быстрых нейтронов с газовым проточным пропорциональным детектором распадов следует учитывать, что газ является рабочей средой пропорционального детектора и не должен активироваться нейтронами. Этим требованиям удовлетворяет, например, водород, однако он пожароопасен. Гелий не активируется нейтронами, однако при его использовании в качестве рабочей среды пропорционального детектора к гелию на входе в детектор примешивают гасящую добавку (например,  $\text{CH}_4$ ). В этом случае в газовую систему дополнительно включают резервуар (баллон) 13 с газом, являющимся гасящей добавкой для пропорционального детектора, через редуктор 14, клапан 15 и расходомер 16.

Активность  $^{37}\text{Ar}$ , накопленная за время экспозиции  $T_3$ , в домене на данном участке колонки, пропорциональна локальной плотности потока быстрых нейтронов. Во время экспозиции колонка заполнена газом-носителем. Если, после накопления активности, подачей газа-носителя достаточно быстро (за транспортное время  $T_{\text{тр}} \ll T_3$ ) и равномерно прогнать газовую фазу колонки через проточный детектор, то продольное координатное распределение активности изотопов аргона вдоль колонки преобразуется во временное распределение скорости счета детектора. Для восстановления однозначного и точного соответствия между координатным и временным распределением по длине колонки размещены протяженные пористые вставки из инертного материала (например, порошок  $\text{SiO}_2$ ) одинаковой длины. По завершении экспозиции газ-носитель, заполняющий эти вставки, будет сильно обеднен активным аргоном и при прохождении его через проточный детектор, будет наблюдаться резкий спад скорости счета. Такие ритмичные провалы счета могут являться координатными метками своеобразного «штрих-кода».

Клапаны 10, 11, 15 и 18 обеспечивают правильный цикл расхода газа-носителя в ампуле и гасящей добавки (если используется) в проточном детекторе. Одним из условий правильности цикла является поддержание постоянства состава и давления газовой смеси в проточном детекторе с целью обеспечения постоянства коэффициента газового усиления (порядка  $10^3$ ). Поэтому клапаны 10, 11, 15 и 18 являются управляемыми с задержкой в цикле срабатывания для обеспечения постоянства состава и давления газовой смеси в детекторе, величина которой определяется эмпирически, на полностью собранной системе.

Из-за сложной пористой структуры  $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$  диффузия  $^{37}\text{Ar}$  между вставками сильно затруднена, поэтому перемешивания между соседними доменами не происходит. Поскольку движется лишь газовая фаза, то важной особенностью предложенного метода является его радиационная безопасность. Она обусловлена отсутствием какого-либо механического перемещения активированных конструктивных элементов детектора на крышке реактора во время его работы на полной мощности, что было бы неизбежным при механическом сканировании по длине канала. За пределы биологической защиты выходит лишь неактивируемый гелий, а также радиоактивный  $^{37}\text{Ar}$ , активность которого составляет  $I \sim 10^4 \text{ сек}^{-1}$  в каждом цикле измерений.  $^{37}\text{Ar}$  может быть уловлен на выходе из счетчика фильтром из охлажденного угля. Колонка может быть извлечена из канала ТВЭЛ во время перегрузки и переставлена в другой канал. Ниже мы более детально рассмотрим физические и технические аспекты реализации предложенного метода.

#### Расчет активности $^{37}\text{Ar}$ в колонке

Рассматриваем накопление активности от реакции  $^{40}\text{Ca}(n, \alpha)^{37}\text{Ar}$ . При расчете за основу принимаем следующие величины параметров. Поток нейтронов постоянен по длине колонки и составляет  $F_n = 10^{13} \text{ н/см}^2 \text{ сек}$ ,  $\lambda_{37} = 2,3 \cdot 10^{-7} \text{ сек}^{-1}$ ,  $\sigma_{n, \alpha} = 2,0 \cdot 10^{-26} \text{ см}^2$ , насыпная плотность  $\text{CaC}_2\text{O}_4$  в колонке  $\rho_n = 1 \text{ г/см}^3$ , плотность монокристалла оксалата  $\rho_k = 2,2 \text{ г/см}^3$ , молекулярный вес оксалата кальция  $M_{\text{CaC}_2\text{O}_4} = 128$ , длина колонки  $l = 5$  метров, сечение  $s = 0,1 \text{ см}^2$ , рабочий объем колонки  $V_c = 50 \text{ см}^3$ , полная масса оксалата кальция в колонке составит  $50 \text{ г}$ , рабочий объем проточного счетчика  $V_{\text{count}} = 1 \text{ см}^3$ . Тогда в одном  $\text{см}^3$  внутреннего объема колонки

за время экспозиции  $T_э$  будет образовываться активность  $^{37}\text{Ag}$ , величина которой составляет:

$$I_{37} = \rho_k N_A F_n \sigma_{n,\alpha} \lambda_{37} T_э / M_{\text{CaC}_2\text{O}_4} = 4,3 \cdot 10^{-11} F_n T_э = 4,3 \cdot 10^2 \cdot T_э. \quad (2)$$

Вся нарабатанная активность будет растворена в гелии, которым заполнена колонка.

### Измерение

После экспозиции газовое содержимое колонки потоком гелия за время  $T_{\text{пр}}$  прогоняется через проточный счетчик с объемом  $V_{\text{count}} = 1 \text{ см}^3$  и производится запись сигналов от счетчика. Величина объема  $V_{\text{count}}$  выбрана для определенности, выбор оптимального объема счетчика – отдельный вопрос. На выходе счетчика измеряется расход гелия за вычетом газа добавкой  $L_{\text{He}}$  ( $\text{см}^3/\text{сек}$ ), причем запись расхода синхронизирована с записью сигналов от счетчика, гидравлическое сопротивление на выходе счетчика мало, а давление в счетчике равно атмосферному давлению.

### Обработка

Выше указывалось, что набивка колонки оксалатом кальция разбита на домены, разделенные промежутками с инертным наполнителем. При прохождении через счетчик газового содержимого этих промежутков в скорости счета будут наблюдаться провалы. Моменты провалов являются  $i$ -ми метками координатных границ доменов. При обработке записанной информации предварительно должны быть выделены эти метки и установлено соответствие между метками и координатами доменов в колонке. Допустим, что мы имеем файл с записью сигналов от счетчика и расходомера при прохождении через счетчик в течение времени  $^i T_{\text{пр}}$  газовой фазы  $i$ -того домена. Для определения потока  $F_n$  в месте нахождения  $i$ -того домена необходимо проделать следующее. В амплитудном спектре сигналов от счетчика выделяется область  $K$ -пика от распадов  $^{37}\text{Ag}$ , определяется скорость счета под  $K$ -пиком, вводится поправка на эффективность регистрации под  $K$ -пиком и определяется истинная скорость распадов  $^{37}\text{Ag}$  в  $i$ -том домене  $^i I_{37} (\text{см}^{-3} \text{сек}^{-1})$ . Тогда полная активность, накопленная в  $i$ -том домене за время экспозиции  $T_э$ , составит:

$$^i A_{37} = ^i I_{37} ^i L_{\text{He}} ^i T_{\text{пр}}. \quad (3)$$

Тогда, учитывая (2), получим выражение для нейтронного потока в  $i$ -том домене:

$$^i F_n = ^i A_{37} M_{\text{CaC}_2\text{O}_4} N_A F_n \sigma_{n,\alpha} \lambda_{37} T_э / m_i, \quad (4)$$

где  $m_i$  – масса оксалата кальция в  $i$ -том домене.

### Обсуждение

Описываемое в данной статье устройство работает на том же принципе, что и его прототип, поэтому его работоспособность не вызывает сомнений. Новизна предложения обусловлена важной новой областью приложения – измерением распределения плотности потока нейтронов по высоте активной зоны ядерного реактора. Таким образом, вместо измерения потока нейтронов в одной точке прототипа в рассматриваемом устройстве производится одновременное измерение потока нейтронов в нескольких точках вдоль вертикальной оси активной зоны ядерного реактора. В рассматриваемом случае соблюдены все необходимые для работы устройства условия: плотность потока нейтронов значительно выше величины, при которой уверенно работал прототип, что обеспечивает уверенную регистрацию. Охлаждение устройства обеспечивается потоком газа-носителя, а также штатной системой охлаждения кассеты с ТВЭЛ, что позволяет обеспечить работоспособность устройства в рабочей области температур  $T < 380^\circ \text{C}$ .

### Заключение

В данной статье описано устройство для измерения пространственного распределения плотности потока быстрых нейтронов в ядерном реакторе, основанного на опыте работы проточного газового монитора нейтронного потока. Основным элементом устройства является цилиндрическая трубка, разделенная на домены с порошкообразным активным веществом – оксалатом кальция, в котором происходят ядерные реакции с образованием инертного радиоактивного газа  $^{37}\text{Ar}$ , который транспортируется газом-носителем в пропорциональный счетчик, где производится измерение скорости распадов  $^{37}\text{Ar}$ , однозначно связанной с потоком нейтронов в активной зоне. Указанная конструкция производит модуляцию скорости распадов в пропорциональном счетчике, которые можно рассматривать в качестве координатных меток своеобразного «штрих-кода». Преимуществами устройства является отсутствие механических элементов, радиационная стойкость и широкий температурный диапазон.

### Список литературы

1. Лебедев С.Г., Янц В.Э. Препринт ИЯИ РАН – 1057/2001. Москва. 2001.
2. Koptelov E.A., Lebedev S.G., Yants V.E. Gaseous Radiochemical Method for Neutron Monitoring. Proc. of the 16 th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources. May 12–15, 2003, Dusseldorf-Neuss, Germany.
3. Lebedev S.G., Yants V.E. Gaseous Radiochemical Method for Registration of Neutron and Other Particle Irradiation. Proc. of 11th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei. May 28–31, 2003, Dubna, Russia.
4. Лебедев С.Г., Янц В.Э. Газовый радиохимический монитор для регистрации быстрых нейтронов, а также ионов. Труды Всероссийской научно-технической конференции «Стойкость-2003». Будет опубликовано в сборнике «Вопросы Атомной Науки и Техники, серия: Физика радиационного воздействия на радиоэлектронную аппаратуру» в 2003 г.
5. Барабанов И.Р., Гаврин В.Н., Зацепин Г.Т. // Атомная энергия. 1974. Т. 37. вып. 6. С. 503.
6. Барабанов И.Р., Гаврин В.Н., Зацепин Г.Т. // Атомная энергия. 1979. Т. 47, вып. 4. С. 273.
7. Гаврин В.Н., Корноухов В.Н., Янц В.Э. Препринт ИЯИ АН СССР, П-703, Москва, 1991.
8. Абдурашитов Д.Н., Коптелов Э.А., Лебедев С.Г., Янц В.Э. Газовый радиохимический монитор нейтронов // Приборы и техника эксперимента. 2004. № 1, С. 1–7.
9. Abdurashitov D.N., Koptelov E.A., Lebedev S.G., Yants V.E. Gaseous Radiochemical Neutron Monitor // Instruments and Experimental Techniques. 2004. Т. 47. № 3. С. 294–299.
10. Lebedev S.G., Akulinichev S.V., Iljinov A.S., Yants V.E. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 2006. V. A561. P. 90.
11. Koptelov E.A., Lebedev S.G., Sobolevsky N.M. // J. Nucl. Mater. 1996. V. 233–237. P. 1552.
12. Koptelov E.A., Lebedev S.G., Matveev V.A. // Nucl. Instr. Meth. 2002. V. A480. Pp. 137–155.
13. Koptelov E.A., Lebedev S.G., Sobolevsky N.M. // J. Nucl. Mater. 2002. V. 307–311. Pp. 1042–1046.
14. Лебедев С.Г., Янц В.Э. Патент РФ № 2620196. 2016.

### References

1. Lebedev S.G., Yanz V.E. (2001) *Preprint IYaI RAN – 1057/2001* [Preprint of INR RAS – 1057/2001]. Moscow.
2. Koptelov E.A., Lebedev S.G., Yants V.E. (2003) Gaseous Radiochemical Method for Neutron Monitoring. Proc. of the 16th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources. May 12–15. Dusseldorf-Neuss. Germany.
3. Lebedev S.G., Yants V.E. (2003) Gaseous Radiochemical Method for the Registration of the Neutron and Other Particle Irradiation. Proc. of 11th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei. May 28–31. Dubna. Russia.

4. Lebedev S.G., Yantz V.E. (2003) *Gazovyy radiokhimicheskiy monitor dlya registratsii bystrykh neytronov, a takzhe ionov* [Gas radiochemical monitor for registration of fast neutrons, as well as ions] *Trudy Vserossiyskoy nauchno-tekhnicheskoy konferentsii «Stoykost'-2003». Budet opublikovano v sbornike «Voprosy Atomnoy Nauki i Tekhniki, seriya: Fizika radiatsionnogo vozdeystviya na radioelektronnyuyu apparaturu» v 2003 g.* [Proceedings of the All-Russian scientific and technical conference «Fortitude-2003». It will be published in the collection «Questions of Atomic Science and Technology, series: The physics of radiation effects on radio-electronic equipment» in 2003].
5. Barabanov I.R., Gavrin V.N., Zatsepin G.T. (1974) *Atomnaya energiya* [Atomic Energy]. T. 37. Vol. 6. P. 503.
6. Barabanov I.R., Gavrin V.N., Zatsepin G.T. (1979) *Atomnaya energiya* [Atomic Energy]. T. 47. No. 4. C. 273.
7. Gavrin V.N., Kornoukhov V.N., Yantz V.E. (1991) *Preprint IYaI AN SSSR, P-703* [Preprint of the INR of the USSR AS, P-703]. Moscow.
8. Abdurashitov D.N., Koptelov E.A., Lebedev S.G., Yantz V.E. (2004) *Gazovyy radiokhimicheskiy monitor neytronov* [Gas Radiochemical Monitor of Neutrons] *Pribory i tekhnika eksperimenta* [Instruments and Experimental Technique]. No. 1, Pp. 1–7.
9. Abdurashitov D.N., Koptelov E.A., Lebedev S.G., Yantz V.E. (2004) Gaseous Radiochemical Neutron Monitor. *Instruments and Experimental Techniques*. T. 47. No. 3. Pp. 294–299.
10. Lebedev S.G., Akulinichev S.V., Iljinov A.S., Yantz V.E. (2006) Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. V. A561. P. 90.
11. Koptelov E.A., Lebedev S.G., Sobolevsky N.M. (1996) *J. Nucl. Mater.* V. 233–237. P. 1552.
12. Koptelov E.A., Lebedev S.G., Matveev V.A. (2002) *Nucl. Instr. Meth.* V. A480. Pp. 137–155.
13. Koptelov E.A., Lebedev S.G., Sobolevsky N.M. (2002) *J. Nucl. Mater.* V. 307–311. Pp. 1042–1046.
14. Lebedev S.G., Yantz V.E. (2016) *Patent RF No. 2620196* [The Patent of the Russian Federation No. 2620196].