

На правах рукописи

ВОЛКОВИЧ АНАТОЛИЙ ГРИГОРЬЕВИЧ

**РАЗРАБОТКА ПРИБОРНЫХ СРЕДСТВ И МЕТОДОВ
ИЗМЕРЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ЗАГРЯЗНЕНИЙ И
ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ДЛЯ РАБОТ
ПО ВЫВОДУ ИЗ ЭКСПЛУАТАЦИИ ЯДЕРНЫХ
УСТАНОВОК**

Специальность 01.04.01 – Приборы и методы экспериментальной физики

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва–2010

Работа выполнена в Федеральном государственном учреждении
Российский научный центр «Курчатовский институт».

Научный руководитель: кандидат физико-математических наук, доцент
Потапов Виктор Николаевич

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук, профессор
Недорезов Владимир Георгиевич
доктор физико-математических наук, профессор
Недосеев Сергей Леонидович

Ведущая организация: Государственный Научный Центр Российской Федерации Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований, г. Троицк, Московская область

Защита состоится « ____ » _____ 2010 г. в ____ часов на заседании диссертационного совета Д 002.119.01 Учреждения Российской академии наук Института ядерных исследований РАН по адресу: г. Москва, проспект 60-летия Октября, 7а.

С диссертаций можно ознакомиться в библиотеке Учреждения Российской академии наук Института ядерных исследований РАН

Автореферат разослан « ____ » _____ 2010 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета Д 002.119.01

к. ф.-м. н.,

Б.А. Тулупов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Анализ потребления энергии в мире показывает, что в ближайшие десятилетия глобальное производство энергии может быть увеличено в 2 – 3 раза, поэтому на первое место выходит вопрос о сырьевом ресурсе топлива. Ядерная энергетика способна к расширенному воспроизводству топлива, что обеспечивает ее неисчерпаемыми ресурсами при замкнутости топливного цикла и, по-видимому, приведет к крупномасштабному использованию атомной энергии в будущем. Нарращивание ядерных мощностей требует обеспечения ядерной и радиационной безопасности на всех этапах жизненного цикла ядерных установок. Это относится и к конечной стадии жизненного цикла ядерных установок – их выводу из эксплуатации и обращению с радиоактивными отходами, образующимися в процессе работы ядерных объектов.

Цель и задачи исследования. Для проведения широкомасштабного обследования загрязненных территорий, повышения эффективности реабилитационных работ на объектах использования атомной энергии, для подготовки к вывозу отработавшего ядерного топлива, при выводе из эксплуатации ядерного реактора и ликвидации, накопленных в процессе его работы, твердых радиоактивных отходов, потребовалась разработка приборов, систем и новых методов измерений. Такие средства и методы должны обеспечить эффективное и безопасное проведение работ по реабилитации, а также сделать обследование загрязненных территорий оперативным, дешевым, т.е. экономически целесообразным. Совершенствование и обновление технологий, используемых при выполнении работ по выводу из эксплуатации ядерного реактора, требует развития новых технических решений с применением более совершенных методов и средств радиационных измерений.

Объект и предмет исследования. РНЦ «Курчатовский институт» является одним из крупнейших научно-исследовательских центров страны, обладающий комплексом ядерно-физических установок. Экспериментальная база РНЦ «Курчатовский институт» состояла из 12 исследовательских установок с реакторами различного типа, 19 критических стендов и других радиационно опасных объектов, включая горячие лаборатории, облучательные установки, временные хранилища ядерного топлива и радиоактивных отходов. В результате многолетней производственной деятельности на его территории накопилось значительное количество радиоактивных отходов, которые направлялись во временные хранилища, расположенные на территории центра. Эти временные хранилища отходов образовались на начальном этапе работ института и по современным меркам они не соответствовали нормам и правилам радиационной безопасности. С развитием Москвы территория института оказалась со всех сторон окруженной жилой застройкой и площадки с размещением хранилищ

оказались расположенными в нескольких десятках метров от жилых домов. В рамках проекта «Реабилитация» в 2002-2007 годах были проведены работы по ликвидации временных хранилищ радиоактивных отходов на территории института.

В настоящее время в РНЦ «Курчатовский институт» продолжают эксплуатироваться шесть из двенадцати реакторных установок. Остальные шесть остановлены для вывода из эксплуатации и частично или полностью демонтированы. В рамках работ по Федеральной целевой программе «Обеспечение ядерной и радиационной безопасности России на 2008 год и на период до 2015г.» осуществляется вывод из эксплуатации многоцелевого петлевого материаловедческого реактора МР, одного из наиболее сложных ядерных объектов. Другой важной и актуальной задачей является радиационное обследование объектов топливного цикла. В 2007-2008 гг. специалистами РНЦ «Курчатовский институт» были проведены обследования радиоактивно загрязненных объектов и территория Кирово-Чепецкого химического комбината (КЧХК), на котором осуществлялась переработка уранового сырья. Загрязнение территории и производственных объектов происходило на ранних стадиях отработки технологии переработки гекса- и тетрафторида урана. Радионуклидное загрязнение любого объекта или территории проще всего обнаружить по регистрации гамма-излучения. Трудности обследования объектов и территории КЧХК заключались в том, что их загрязнение было обусловлено, в основном, мелкодисперсной фракцией неравновесного урана. Уран и его ближайшие дочерние радионуклиды (торий и протактиний), находящиеся с ним в равновесии, либо не являются гамма-излучающими, либо выход гамма-квантов на распад у них очень мал. Поэтому в этих ситуациях требуется развитие новых методов и подходов при радиационном обследовании подобных объектов.

Методы исследований. Традиционные методы обследования загрязненных радионуклидами территорий включают в себя три этапа: 1 – отбор проб на местности; 2 – радиохимическое выделение и концентрирование определяемого радионуклида (при необходимости); 3 – спектрометрический анализ образцов и определение активности радионуклида. Такой подход является достаточно трудоемким, требующим длительного времени и дорогостоящим. Наиболее ярким примером этого может быть определение ^{90}Sr , являющегося β -излучающим радионуклидом, требующим радиохимического выделения из исследуемых образцов. В то же время ^{90}Sr занимает особое место из-за своей высокой подвижности в водной и почвенных средах. Являясь химическим аналогом стабильного кальция, ^{90}Sr может через пищевые цепочки попадать в организм человека и накапливаться в костных тканях (^{90}Sr – остеотропный радионуклид), что делает его достаточно опасным с радиологической точки зрения. Это обстоятельство требует постоянного контроля над содержанием ^{90}Sr в почве и воде на загрязненных территориях.

Методологический подход. Альтернативой традиционным радиохимическим методам может служить спектрометрический метод определения содержания ^{90}Sr , основным недостатком которого, как правило, является низкая чувствительность. Однако спектрометрический метод является оперативным и дешевым, что делает его вполне конкурентно способным, если измеряемые уровни активности ^{90}Sr выше предела его чувствительности. Поэтому разработка спектрометрических методик, обеспечивающих непосредственное измерение удельной активности ^{90}Sr в почве и воде, в том числе в полевых условиях, в присутствии других техногенных γ - и β -излучателей (в частности ^{137}Cs , ^{60}Co и др.), является актуальной задачей.

В процессе развернутых в последние годы на объектах использования атомной энергии реабилитационных работ возникла проблема выявления среди твердых радиоактивных отходов (ТРО) материалов и конструкций, содержащих ОЯТ. При выводе из эксплуатации ядерных реакторов, ликвидации хранилищ с ТРО, в которых хранилось или могло храниться ОЯТ, необходимо проводить контроль и сортировку радиоактивных отходов на предмет наличия в них образцов, содержащих уран. Поскольку ураносодержащие твердые радиоактивные отходы являются, как правило, высокоактивными, то применение радиохимических методов выделения урана крайне затруднительно. Сортировка ТРО с использованием методов спектрометрии, также является непростой задачей, требующей разработки специальных методик, позволяющих определять уран в присутствии высокоактивных продуктов его деления.

При эксплуатации различных ядерных реакторов возникает необходимость определения радиационных характеристик ОЯТ, как в процессе пребывания его в реакторе, так и в процессе хранения после выгрузки. Знание радиационных характеристик ОЯТ, также важно при его транспортировке и утилизации, при радиохимической и металлургической переработке ТВЭЛов. Поскольку ОЯТ представляет собой, как правило, высокоактивный материал, обращение с которым не позволяет проводить какие-либо операции по оценке его характеристик разрушающими методами, перспективным представляется применение спектрометрического метода, относящегося к методам неразрушающего анализа. Основой спектрометрического метода является измерение аппаратного спектра излучения, как материалов самого ядерного топлива, так и продуктов деления. Для этих целей необходимо использовать спектрометрическую аппаратуру высокого разрешения, т.к. в облученном топливе могут содержаться радионуклиды со сложным спектром излучения, требующие предварительной идентификации для количественной оценки. Однако получение аппаратного спектра является необходимым, но не достаточным условием для определения характеристик топлива. Как правило, нужна дополнительная информация (значения различных калибровочных констант,

необходимых зависимостей и т.д.), позволяющая по результатам спектрометрических измерений получать количественную оценку основных характеристик облученного топлива (глубины выгорания, времени выдержки, величины обогащения и т.д.). Такая дополнительная информация может быть получена расчетным путем с использованием метода Монте-Карло для условий реальной геометрии спектрометрического измерения. Метод Монте-Карло порой является единственным способом получения дополнительной информации, т.к. создание эквивалентного калибровочного источника либо не представляется возможным, либо не является универсальным в силу постоянно изменяющейся геометрии измерения (изменение формы, размера, структуры источника излучения). Поэтому использование метода Монте-Карло позволяет существенно расширить возможности спектрометрического способа оценки характеристик ОЯТ.

Таким образом можно утверждать, что применение спектрометрического метода в процессах обследования и рекультивации загрязненных радионуклидами территорий и реабилитации объектов использования атомной энергии, в частности при подготовке ОЯТ к утилизации, открывает новые возможности на пути оптимизации указанных процессов.

Положения, выносимые на защиту:

1. Разработка методики определения активности ^{90}Sr в присутствии техногенных радионуклидов ^{137}Cs и ^{60}Co в полевых условиях.

2. Создание переносного бета - радиометра, реализующего методику измерения ^{90}Sr в счетных образцах при измерениях в лабораторных и полевых условиях при проведении реабилитационных работ на объектах использования атомной энергии.

3. Разработка и экспериментальная проверка спектрометрического способа оценки характеристик отработавшего ядерного топлива для идентификации ТВС по типу ТВЭЛов, реализуемого с помощью мобильной спектрометрической системы с полупроводниковым детектором.

4. Разработка способа обнаружения урана в твердых радиоактивных отходах основанного на использовании спектрометрических сцинтилляционных детекторов.

Личный вклад в работу, выполненную в соавторстве, состоит в непосредственном участии в разработке методик, проведении экспериментов и расчетов, анализе полученных результатов.

Практическая ценность и полезность работы заключается в следующем:

1. Разработанный бета-радиометр СДБИ для определения характеристик загрязнения ^{90}Sr использовался при выполнении реабилитационных работ по

ликвидации временных хранилищ радиоактивных отходов на территории РНЦ «Курчатовский институт» в 2005-2007 годах в рамках проекта «Реабилитация». С помощью бета-радиометра проводилось систематическое обследование загрязнения почвы, бетонных конструкций хранилищ, измерялась активность ^{90}Sr в воде и аэрозольных фильтрах.

2. В 2007-2008 гг. при обследовании радиоактивного загрязнения объектов и территории Кирово-Чепецкого химического комбината, на котором осуществлялась переработка гекса- и тетрафторида урана, бета-радиометр использовался для определения поверхностной и удельной активности ^{238}U по регистрации бета-излучения равновесного $^{234\text{m}}\text{Pa}$.

3. В рамках выполнения работ по Федеральной целевой программе «Обеспечение ядерной и радиационной безопасности России на 2008 год и на период до 2015г.» при выводе из эксплуатации материаловедческого реактора МР, ликвидации хранилищ с ТРО проводился контроль и сортировка радиоактивных отходов на предмет наличия в них образцов, содержащих уран. Сортировка ТРО осуществлялась с помощью специально разработанных методов спектрометрии, позволяющих определять уран в присутствии его высокоактивных продуктов деления.

4. При подготовке к вывозу на переработку в ПО «Маяк» отработавшего ядерного топлива из комплекса исследовательских реакторов и критических стенов (комплекс «Газовый завод») осуществлялась идентификация ОТВС по типу ТВЭЛов разработанным спектрометрическим способом (методом неразрушающего анализа).

Апробация работы. Основные положения диссертационной работы докладывались на следующих конференциях и семинарах: Международная конференция «двадцать лет Чернобыльской катастрофы. Взгляд в будущее» 24-26 апреля 2006, Киев, Украина, Международный ядерный форум, 22-26 сентября 2008 г., Санкт-Петербург, Международная конференция «Безопасность ядерных технологий: Экономика и обращение с источниками ионизирующих излучений. (26 сентября – 30 сентября 2005 г., Санкт-Петербург, Россия, Radioecology&Environmental Radioactivity, 15-20 June 2008, Bergen, Norway, Международная конференция Waste Management '06, February 26 - March 2, 2006, Tucson, USA, рабочая встреча РНЦ-КИ – КАЭ, Кадараш, Франция, сентябрь 2009, семинар проф. С.М. Зарицкого «Физика ядерных реакторов» 06.11.2009, РНЦ «Курчатовский институт».

Публикации. По теме диссертации опубликовано 9 работ, 3 из них в реферированном журнале.

Структура и объем работы. Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения, списка используемых источников из 67 наименований. Общий объем работы 104 страницы, включая 52 рисунка, 6 таблиц.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении содержится обоснование и актуальность темы диссертационной работы, сформулирована цель и показаны основные направления исследований, приведены сведения, характеризующие научную новизну и практическую значимость работы, приведены основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе описывается разработанный спектрометрический прибор и метод измерения активности радионуклидов ^{90}Sr , используемые при проведении реабилитационных работ.

В процессе выполнения работ по ликвидации временных хранилищ радиоактивных отходов, расположенных на территории РНЦ «Курчатовский институт», помимо основных долгоживущих γ -излучающих радионуклидов ^{60}Co и ^{137}Cs , содержались радионуклиды ^{90}Sr , которые вместе с дочерними радионуклидами ^{90}Y являются чистыми β -излучателями.

Традиционным способом определения ^{90}Sr в этих ситуациях является радиохимический анализ, использующий методы выделения и концентрирования радионуклидов с последующим измерением их активности. Этот подход определения активности ^{90}Sr является достаточно трудоемким, долговременным и дорогостоящим. Альтернативой методам радиохимии могут служить радиометрические способы определения содержания ^{90}Sr . Недостатком радиометрического метода, как правило, является их низкая чувствительность по сравнению с методами радиохимии. Однако радиометрические способы измерения являются оперативными, дешевыми, что делает их вполне конкурентно способными, если измеряемые уровни активности ^{90}Sr выше предела их чувствительности.

Проблема определения удельной активности ^{90}Sr и его равновесного дочернего радионуклида ^{90}Y по результатам β -спектрометрических измерений заключается в выделении полезного сигнала, обусловленного регистрацией β -частиц ^{90}Y , на фоне сигнала детектора, связанного с регистрацией γ - и β -излучений ЕРН и техногенных радионуклидов.

Проведение измерений основано на получении двух последовательных аппаратурных спектров спектрометрического детектора - с открытым входным окном и окном, закрытым алюминиевым фильтром. Такая схема измерений позволяет работать при значительном гамма и бета фоне от ^{60}Co , ^{137}Cs и естественных радионуклидов. Их влияние на измерения устраняется специальным выбором рабочей области спектра, сигнал в которой используется для определения активности ^{90}Sr . Положение этой области спектра определялось математическим моделированием и проверялось в модельных экспериментах.

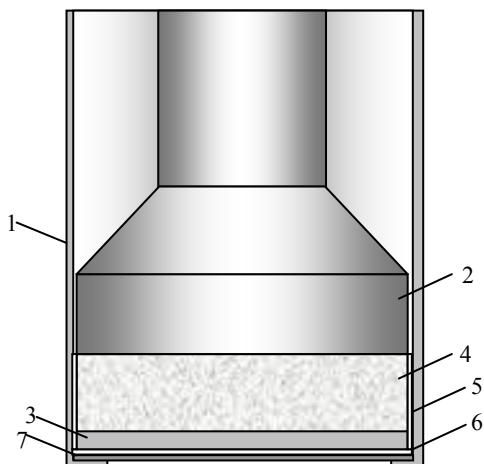


Рис. 1. Схема устройства спектрометрического детектора для регистрации β -излучения. 1 – корпус детектора; 2 – ФЭУ-56; 3 – сцинтиллятор (полистирол – $3,5 \times \varnothing 80 \text{ мм}$); 4 – оптическая шайба (оргстекло); 5 – светоотражающее тефлоновое покрытие; 6 – отражатель на основе бумажного фильтра (Millipore GSWP 304FQ); 7 – защитная титановая фольга (50 мкм).

Для реализации метода измерений был разработан спектрометрический детектор бета излучения (СБДИ). В детекторе используется ФЭУ с большой площадью фотокатода, тонким сцинтиллятором из полистирола и световодом между сцинтиллятором и ФЭУ. Пластиковый сцинтиллятор из-за низкой плотности вещества ($\sim 1 \text{ г/см}^3$) и атомного номера материала имеет низкую эффективность регистрации фонового γ -излучения техногенных и естественных радионуклидов. Оптимальные геометрические размеры компонентов определялись моделированием, схема детектора представлена на рис. 1.

Калибровка энергетической шкалы спектрометра осуществлялась с помощью γ -излучения источника ^{22}Na . Из-за отсутствия процесса фотопоглощения аппаратурный спектр не содержал пиков линий 511 и 1275 кэВ, а имел только комптоновские части спектра, соответствующие этим линиям, с положением на энергетической шкале их краев с энергиями 341 и 1062 кэВ. Так как детектор имеет энергетическое разрешение не менее 20%, то комптоновские края размыты, но их положение можно определять по точкам перегиба. На рис. 2. показан спектр излучения ^{22}Na , по которому осуществлялась калибровка энергетической шкалы спектрометра.

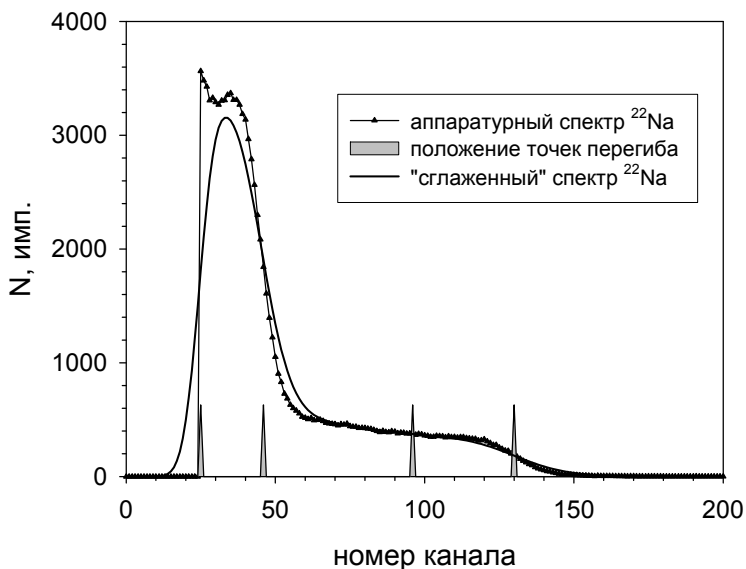


Рис. 2. Аппаратурный спектр излучения ^{22}Na , используемый для калибровки энергетической шкалы спектрометра, и результаты его обработки.

Калибровка чувствительности СДБИ проводится с помощью раствора ^{90}Sr в воде с известной удельной активностью. Предварительно значения калибровочных констант были рассчитаны по методу Монте-Карло. Значения этих констант (экспериментальные и расчетные) отличались на 10%, что, с учетом точности определения активности калибровочного источника (14%), показывает точность математической модели реального спектрометрического детектора. Чувствительность СДБИ для β -излучения в рабочем энергетическом диапазоне, которая была определена в экспериментах на объемном калибровочном источнике водного раствора ^{90}Sr ($1395 \pm 194 \text{ Бк/л}$), составила $\sim 1,1 \times 10^{-3}$ (имп/с)/(Бк/кг)

Для обработки и хранения спектрометрической информации использовался - переносной спектрометр «Колибри». При проведении полевых измерений спектрометрическая информация архивируется с помощью внутренней программы спектрометра «Колибри», а затем передается через последовательный канал связи RS-232 в персональный компьютер (ПК) для дальнейшей обработки. При проведении лабораторных измерений обеспечение режима обслуживания спектрометра «Колибри» производится по последовательному интерфейсу (RS-232) персональным

компьютером, в котором с помощью специальной управляющей программы осуществляется реализация части сервисных функций спектрометра. В частности, осуществляется процедура накопления спектров, их архивация и т.д.

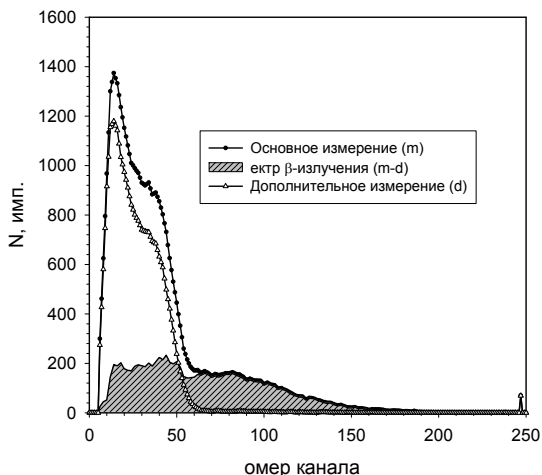


Рис. 3. Аппаратурные спектры γ - и β -излучений, полученные при измерении дна хранилища №6. Основное измерение (m) - без фильтра, дополнительное (d) – с фильтром (Al – 3мм). Разностный спектр (m-d) – спектр β -излучения ^{90}Sr (^{90}Y)

Величина минимальной измеряемой активности (МИА) стронция предложенным методом составляет не менее 60Бк/кг в отсутствии других техногенных радионуклидов и ~75 Бк/кг при наличии в почве только радионуклидов ^{137}Cs с удельной активностью до 100кБк/кг. Присутствие радионуклидов ^{60}Co большой активности в почве (что является редким, но возможным событием) приводит к изменению значения МИА примерно в 2 раза и составляет ~160Бк/кг. Для случая измерения в лабораторных условиях общей активности тонких проб (при отсутствии самопоглощения в ней β -частиц) значение МИА составляет величину не менее 0,5 Бк. Для оценки вклада бета-излучения ЕНР в основной спектр используется корреляционная зависимость гамма-излучения ЕНР дополнительного спектра (измеренным с тонким алюминиевым фильтром, задерживающим бета-частицы).

Спектрометр применялся в лабораторных условиях для измерения общей активности ^{90}Sr исследуемых образцов, в полевых условиях для измерения профилей загрязнения почвы по глубине в поймах рек, измерения

загрязнения грунта после выгрузки хранилищ радиоактивных отходов. Характерные спектры, получаемые при измерении загрязненной почвы приведены на рис. 3

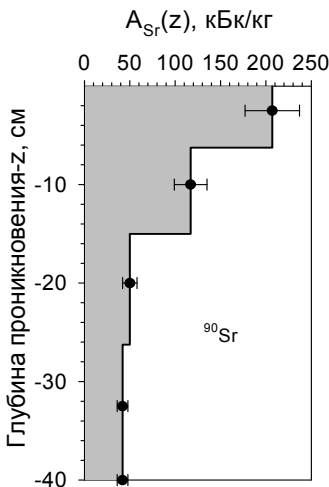


Рис. 4 Распределения удельной активности ^{90}Sr по глубине в точке ландшафтного профиля измерений (р-н Метлино)

В полевых условиях проводились измерения удельной активности почвы пойменных участков реки Течи. В точках измерений (расположенных на ландшафтных профилях) создавались скважины, из которых извлекался почвенный керн. Измеренные активности слоев керна давали информацию о распределении стронция по глубине почвы. На рис. 4 приведены данные о распределении удельной активности ^{90}Sr по глубине в одной из ландшафтных точек в районе Метлино (санитарно-защитная зона ПО «Маяк»).

На начальной стадии отработки технологии по переработке гекса- и тетрафторида урана на Кирово-Чепецком химическом комбинате (КЧХК) часть технологического оборудования и его территории были загрязнены мелкодисперсной фракцией неравновесного ^{238}U . С помощью разработанного спектрометра на этом комбинате были проведены обследования части его территории для определения активности ^{238}U по данным β -спектрометрических измерений дочерних продуктов распада, а именно $^{234\text{m}}\text{Pa}$. За короткий промежуток времени (3÷4 месяца) радионуклиды ^{238}U приходят в равновесие с дочерними продуктами распада ^{234}Th и $^{234\text{m}}\text{Pa}$. Последний из них $^{234\text{m}}\text{Pa}$ по своим характеристикам, как β -излучатель, практически полностью идентичен ^{90}Y , который находится в равновесии со ^{90}Sr .

Вторая глава посвящена разработке способа оценки характеристик облученного ядерного топлива (ОЯТ) спектрометрическим методом, который относится к методам неразрушающего анализа.

ОЯТ представляет собой, как правило, высокоактивный материал, обращение с которым порой не позволяет проводить какие-либо операции по оценке его характеристик разрушающим способом. Основой такого спектрометрического способа является измерение аппаратурного спектра излучения как материалов самого ядерного топлива, так и продуктов деления.

Основой такого спектрометрического способа является измерение аппаратурного спектра излучения как материалов самого ядерного топлива, так и продуктов деления. Однако получение аппаратурного спектра является необходимым, но не достаточным условием для определения характеристик топлива. Как правило, в этих случаях нужна дополнительная информация, позволяющая по результатам спектрометрических измерений получать количественную оценку основных характеристик облученного топлива. Такая дополнительная информация (значения различных калибровочных констант, необходимых зависимостей и т.п.) может быть получена расчетным путем с использованием метода Монте-Карло для условий реальной геометрии эксперимента (спектрометрического измерения).

На примере решения ряда конкретных задач, показаны возможности такого подхода определения характеристик ОЯТ. Типичными задачами такого рода являются задачи оценки глубины выгорания топлива, времени выдержки, величины обогащения и ряд других.

В качестве количественной меры выгорания топлива может быть использовано образование продуктов деления. Интенсивность γ -излучения определенного продукта деления зависит от числа делений тяжелых ядер, что может являться косвенной характеристикой величины выгорания. Такой подход возможен, если выполняются следующие условия:

1. Продукт деления должен иметь равные выходы на деление основных делящихся изотопов урана и плутония.

2. Сечение захвата нейтронов продуктом деления должно быть достаточно малым, чтобы количество исследуемого продукта деления было обусловлено только делением тяжелого элемента, а не вторичными реакциями захвата нейтронов.

3. Период распада продукта деления должен быть длительным по сравнению со временем облучения топлива, чтобы количество образованного продукта деления было приблизительно пропорционально числу делений.

4. Гамма – кванты продуктов деления должны обладать относительно высокой энергией, чтобы они могли покидать топливный образец.

В большей степени этим требованиям удовлетворяют ядра изотопа ^{137}Cs , т.к. выходы на деление ^{235}U и ^{239}Pu для них примерно одинаковы ($Y_{\text{U}235}=6,22\%$, $Y_{\text{Pu}239}=6,69\%$), энергия γ - квантов достаточно высока (~662кэВ), а период полураспада составляет 30,2 года.

Количество продукта деления ^{137}Cs может быть определено по результатам спектрометрических измерений, т.е. по скорости счета n_{Cs} в пике полного поглощения линии 662 кэВ по формуле:

$$N_{0\text{Cs}} = N_{\text{Cs}} \cdot \exp(\lambda \cdot t_g) = \frac{n_{\text{Cs}} \cdot T_{1/2}^{\text{Cs}}}{C_k \cdot \ln 2} \cdot \exp(\lambda \cdot t_g) = \frac{n_{\text{Cs}}}{C_k \cdot \lambda} \cdot \exp(\lambda \cdot t_g) \text{ Здесь}$$

$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}^{\text{Cs}}}$ - постоянная распада ^{137}Cs . t_g - время выдержки образца ОЯТ после облучения.

По количеству атомов цезия и значению их выхода на деление можно оценивать массу продуктов деления:

$$m_g = \frac{N_{0\text{Cs}} \cdot 235}{Y \cdot N_A} [\text{г}],$$

где N_A - число Авогадро, $Y = 0,0622$ - выход ^{137}Cs на деление ^{235}U , а значит и величину выгорания:

$$v_{\%} = \left(\frac{m_g}{M_U} \right) \times 100\% = \frac{n_{\text{Cs}} \cdot 235 \cdot \exp(\lambda \cdot t_g)}{C_k \cdot \lambda \cdot Y \cdot N_A \cdot M_U} \times 100\%.$$

Наиболее важной с практической точки зрения оказалась задача по идентификации типов ТВЭЛов отработавшего ядерного топлива. При подготовке к вывозу на переработку отработавшего ядерного топлива с территории комплекса исследовательских реакторов и критических стенов РНЦ «Курчатовский институт» возникла необходимость идентификации отработавших тепловыделяющих сборок (ТВС) исследовательских реакторов ВВР-2 и ОР. При эксплуатации этих реакторов использовались ТВС с ТВЭЛами двух типов С-36 и ЭК-10, которые находились в бассейне выдержки более 25 лет. По внешнему виду отработавших ТВС и ТВЭЛов определить тип ТВЭЛов в конкретной сборке не представлялось возможным, т.к. ТВС и ТВЭЛы не имели никакой маркировки. В то же время требования отраслевого стандарта исключали возможность смешанной загрузки

отработавших ТВС с ТВЭЛами разного типа в одну транспортную упаковку. По этой причине для идентификации ТВС по типу ТВЭЛов были разработаны две методики идентификации ТВЭЛов.

Одна из методик основана на разнице веса ТВЭЛов, однако процедура взвешивания не всегда реализуема, так как из некоторых отработавших ТВС твэлы не извлекаются. Это может быть связано как с разбуханием алюминиевой оболочки ТВЭЛов при их облучении, так и с длительностью их хранения. Кроме того, из-за конструктивных особенностей ТВС их алюминиевые каркасы не всегда имеют одинаковый вес, поэтому процедура взвешивания сборки может не дать достоверного результата.

Вторая методика основана на анализе спектральных характеристик облученного топлива ТВЭЛов и относится к методам неразрушающего анализа. Применение такой методики целесообразно, поскольку отработавшее ядерное топливо является высокоактивным материалом, т.к. активность некоторых отработавших ТВС превышает $2,6 \times 10^{12}$ Бк (~ 70 Ки) по ^{137}Cs .

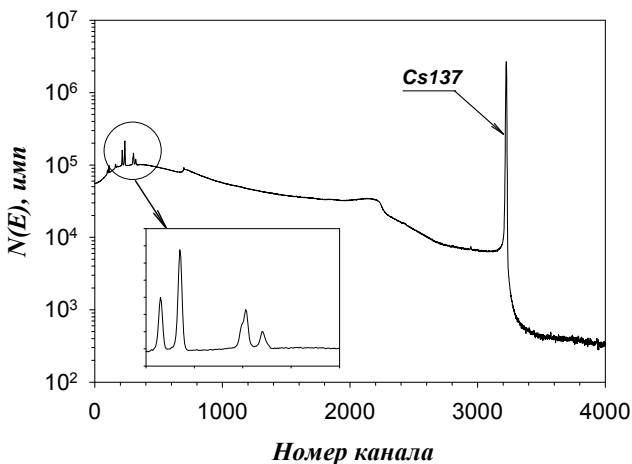


Рис. 5 Спектр излучения ОЯТ, полученный с помощью спектрометрической системы ISO-CART с полупроводниковым германиевым детектором. В нижней части показаны пики характеристического излучения урана.

Разработанная методика предполагает спектрометрические измерения на аппаратуре высокого разрешения и последующий анализ характеристического излучения облученного топлива и продуктов деления. Типичный аппаратурный спектр излучения ТВС показан на рис.5.

Возбуждение линий характеристического излучения облученного топлива происходит за счет процесса фотопоглощения атомами урана собственного излучения продуктов деления – ^{137}Cs . Собственное излучение ^{137}Cs при спектрометрических измерениях облученного топлива можно легко контролировать по скорости счета в пике полного поглощения с энергией 661,6 кэВ так же, как и характеристическое излучение урана.

Отношение скоростей счета в пиках полного поглощения ^{137}Cs и характеристического излучения урана не будет зависеть от интенсивности излучения продуктов деления, а будет определяться только количеством урана в образце, а значит, его глубиной выгорания V и типом ТВЭЛа. Для каждого типа ТВЭЛа это отношение определяется своей идентификационной

функцией: $f_i(V) = \frac{n_{K\alpha}}{n_{Cs}}$, где $n_{K\alpha}$ и n_{Cs} – скорости счета в пиках

характеристического излучения К-слоя атомов урана и собственного излучения ^{137}Cs ТВЭЛа i -го типа. Типичные результаты идентификации типа ТВЭЛов показаны на рис.6, где приведены рассчитанные соответствующие идентификационные функции и экспериментальные данные, полученные по результатам спектрометрических измерений ТВЭЛов и сборок. Поскольку ТВС содержит несколько ТВЭЛов, характеристическое излучение урана возбуждается не только собственным излучением ^{137}Cs измеряемого ТВЭЛа, но и излучением соседних ТВЭЛов. В работе дана оценка влияния излучения соседних ТВЭЛов сборки и указан способ его учета.

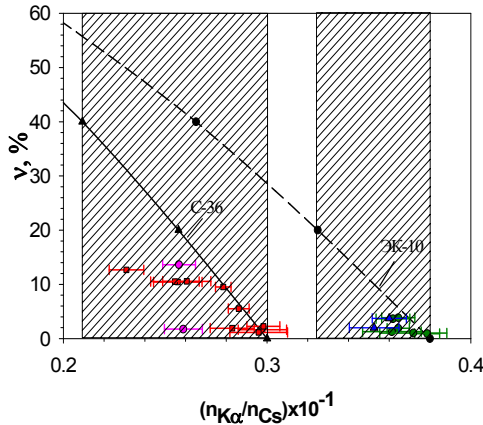


Рис.6 Идентификационные функции для ТВЭЛов С-36 (—) и ЭК-10(-----) для линии характеристического излучения 98,4 кэВ и экспериментальные данные, полученные по результатам спектрометрических измерений ТВЭЛов и ТВС с ТВЭЛами С-36, ЭК-10

Третья глава посвящена разработке способа индикации облученного ядерного топлива.

При выводе из эксплуатации ядерных реакторов, ликвидации хранилищ с ТРО, в которых хранилось или могло храниться ОЯТ, необходимо проводить контроль и сортировку радиоактивных отходов на предмет наличия в них компонентов, содержащих уран. Наиболее просто эта задача может быть решена путем использования переносных спектрометрических приборов со сцинтилляционными детекторами. Однако такие мобильные приборы имеют и свои недостатки, одним из которых является невысокое энергетическое разрешение сцинтилляционных детекторов.

Чтобы использовать сцинтилляционные детекторы для обнаружения урана в ТРО по его характеристическому излучению, необходимо разработать способ, позволяющую выделять полезный сигнал (линии характеристического излучения урана) в области низких энергий ($E \approx 100 \text{кэВ}$). Трудности выделения полезного сигнала в низкоэнергетической области заключаются во влиянии мягкого рассеянного излучения, которое создает в аппаратурном спектре большую подложку, на фоне которой регистрируется излучение характеристических линий урана. Помимо того, что фоновая подложка является большой, она еще имеет наклонный характер, что искажает форму пиков линий характеристического излучения урана, визуально определить которые становится трудно или невозможно.

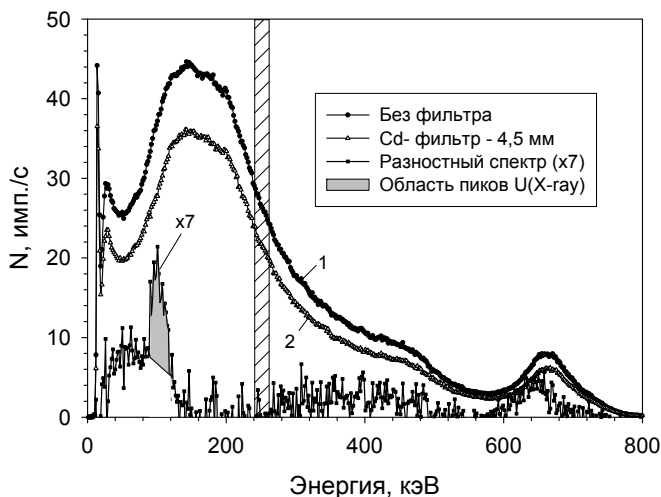


Рис. 7. Результаты измерения образца ТРО, содержащего уран. Разностный спектр изображен увеличенным в 7 раз. Областью серого цвета выделены пики характеристического излучения урана.

Суть предлагаемой методики заключается в определении фоновой подложки и ее вычитании из аппаратурного спектра. Способ выделения фоновой подложки основан на использовании дополнительного измерения с тонким фильтром. Использование тонкого фильтра обусловлено тем, что он незначительно искажает форму спектра вблизи области интереса. Так как область интереса находится в низкоэнергетической части спектра, то даже тонкий фильтр заметным образом ослабляет падающее на детектор излучение. На рис.7 приведены два аппаратурных спектра, полученные при регистрации излучения с фильтром (кривая 2) и без (кривая 1). Форма спектров с фильтром и без по форме близка друг другу, но по абсолютной величине они заметно отличаются. Скорректировать эту разницу нужно по некоторой энергетической области, расположенной вблизи области интереса. Этот энергетический интервал на рис.7 отмечен заштрихованной областью.

Для реализации описанной выше методики обнаружения урана использовались два типа детекторов. В первой схеме измерения использовался детектор, имеющий свинцовый коллиматор и защиту сферической формы (см. рис. 8).

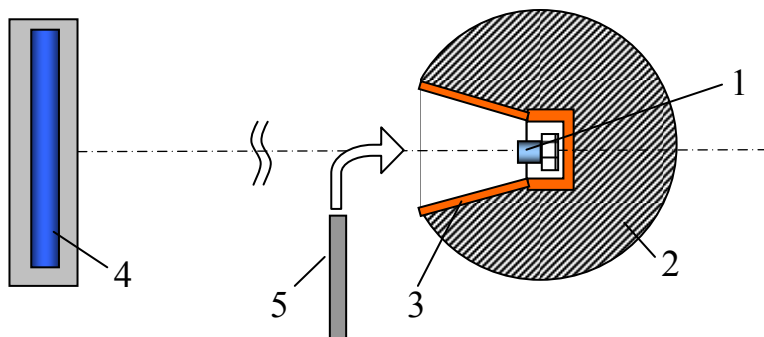


Рис. 8. Условная схема измерений с коллимированным детектором, созданным на основе сцинтилляционного кристалла CsI(Tl) (1) и кремниевого твердотельного фотоумножителя. 2 – свинцовая защита и коллиматор детектора, 3 – латунная вставка, 4 – образец ТРО, 5 – кадмиевый фильтр.

В качестве спектрометрического детектора излучения применялся сцинтилляционный детектор на основе кристалла CsI(Tl) размером $\text{Ø}3 \times 4$ мм и кремниевого твердотельного фотоумножителя с фоточувствительной площадью $1 \times 1 \text{ мм}^2$. Внутренняя поверхность коллиматора и защиты имела латунное покрытие, предохраняющее детектор от характеристического излучения свинца, которое возникает в нем при облучении исследуемым образцом. В качестве фильтра использовалась кадмиевая пластина толщиной 4,5 мм. Такой компактный спектрометрический детектор позволял проводить

измерения в полях с высоким уровнем мощности дозы (~ до 20 Р/ч (0,2 Зв/ч)). Как правило, такой детектор располагался на расстояниях 6 - 20 м от объекта исследования.

Во втором варианте (рис. 9) в качестве сцинтилляционного детектора применялся детектор на основе кристалла LGSO и ФЭУ-85. Кристаллы LGSO ($\text{Lu}_{2x}\text{Gd}_{2-2x}\text{SiO}_5$) являются быстрыми сцинтилляторами (постоянная времени высвечивания $\tau_s = 40$ нс), имеют высокую плотность ($\rho = 6,3 \text{ г/см}^3$) и достаточно высокий световой выход ($L_y \approx 15000 \div 25000$ фотонов/МэВ).

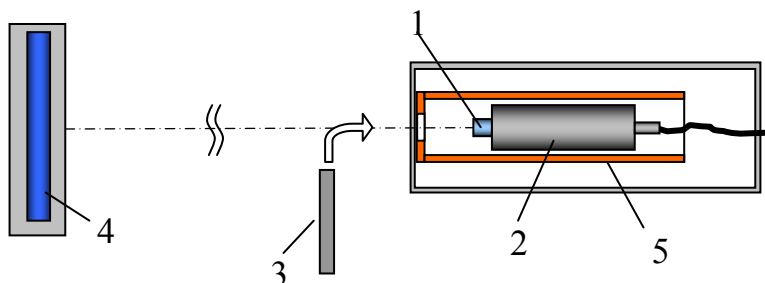


Рис. 9. Схема измерения ТРО спектрометрическим детектором на основе кристалла LGSO и ФЭУ. 1 – кристалл LGSO размером $\varnothing 15 \times 5$ мм, 2 – ФЭУ-85, 3 – кадмиевый фильтр, 4 – образец ТРО, 5 – кадмиевый защитный кожух.

Эти характеристики кристалла обеспечивают детектору высокую загрузку, что является важным моментом для измерений ТРО, и хорошее энергетическое разрешение, позволяющее реализовать описанную выше методику. Детектор, для снижения загрузки, также имел внешнюю защиту в виде свинцового цилиндра и кадмиевый кожух, защищающий детектор от характеристического излучения свинца.

Такой способ обнаружения облученного ядерного топлива использовался при выполнении работ по выводу из эксплуатации материаловедческого реактора РНЦ «Курчатовский институт». При извлечении ТРО из хранилища РФТ проводились измерения спектров каждого образца на предмет наличия в нем урана. Первоначально обследование проводилось с помощью детектора первой схемы измерения, т.е. коллимированного сцинтилляционного детектора на основе кристалла CsI(Tl) (рис. 10а). Затем измерения были продолжены с помощью детектора со сцинтиллятором LGSO (рис.10б), имеющим лучшее энергетическое разрешение.



а)



б)

Рис. 10. Внешний вид спектрометрических детекторов, созданных на основе сцинтиллятора CsI(Tl) и твердотельного ФЭУ с защитой сферической формы (а) и сцинтиллятора LGSO и ФЭУ-85 с цилиндрической защитой (б). Защита детекторов имеет внутреннюю латунную или кадмиевую вставку для поглощения характеристического излучения свинца

Были сформулированы три критерия (признака), по которым осуществлялось обнаружение урана в ТРО указанным способом. Если эти признаки (или некоторые из них) не выполнялись, то объект контроля подвергался дополнительной проверке, осуществляемой с помощью спектрометрической системы высокого разрешения, т.е. с полупроводниковым детектором. Эта процедура является более рутинной и менее оперативной и производительной, но осуществлялась она для меньшего числа контролируемых образцов. На рис. 7 приведены типичные результаты измерений детектором с кристаллом LGSO контролируемого образца.

В этой главе также рассмотрены вопросы перспективы развития метода индикации путем разработки новых средств детектирования с улучшенными характеристиками. Для этих целей был испытан детектор, созданный на основе кристалла LaBr_3 , размером ($\text{Ø}25 \times 4$) мм. Сцинтилляционный блок был изготовлен и упакован в Институте физики твердого тела РАН (г. Черноголовка, Московская обл.). В качестве фотоприемника для такого сцинтиллятора использовались ФЭУ-85 и ФЭУ-184. Сцинтилляторы LaBr_3 обладают самым высоким световым выходом, величина которого варьируется от 50×10^3 до 65×10^3 фотонов/МэВ. Длина волны, на которую приходится максимум эмиссионной характеристики сцинтиллятора, равна 380 нм, а постоянная времени высвечивания равна 16 нс.

Энергетическое разрешение детектора по линии 662 кэВ составило 3,5 %. Очевидно, что детекторы такого типа можно использовать и для обнаружения урана при извлечении радиоактивных отходов из хранилищ

РФТ, СУЗ, камеры резки и т.п. Пробное измерение спектра контролируемого образца, для которого заведомо было известно о содержании в нем урана, было произведено детектором со сцинтиллятором LaBr_3 ($\text{Ø}25 \times 4$) мм и ФЭУ-184. Аппаратурный спектр излучения контролируемого образца показан на рис. 11. При этих измерениях детектор не имел защитного кожуха, предохраняющего детектор от характеристического излучения свинца, который использовался в качестве коллиматора и защиты от боковой подсветки рассеянного излучения. Несмотря на это, линии характеристического излучения свинца и урана хорошо разделяются уже на стадии получения основного спектра (без кадмиевого фильтра).

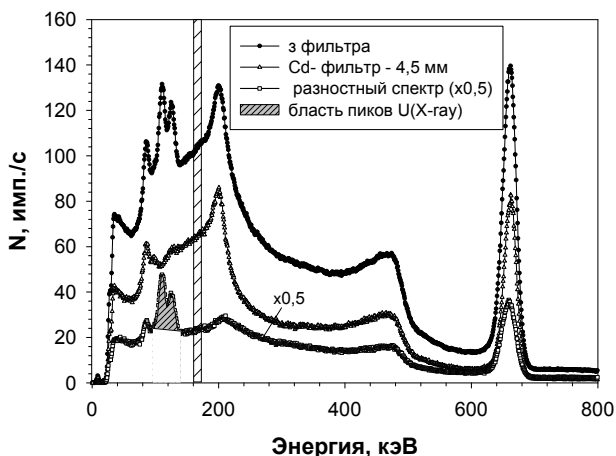


Рис. 11. Результаты измерения образца ТРО, содержащего уран, детектором LaBr_3 . Разностный спектр изображен квадратными символами, а серой заштрихованной областью выделены пики характеристического излучения урана.

Использование фильтра при измерении дополнительного спектра и получение разностного спектра усиливает эффект выделения пиков характеристического излучения урана, что повышает чувствительность метода и делает его вполне конкурентным с методом прямых измерений с помощью спектрометрической аппаратуры высокого разрешения с использованием полупроводникового детектора

В заключении сформулированы основные результаты диссертационной работы.

Основные результаты и выводы по диссертационной работе сводятся к следующему:

В результате выполненных экспериментальных и теоретических исследований были получены следующие результаты:

1. Разработана методика измерения удельной активности ^{90}Sr в почве, как в лабораторных, так и в полевых условиях, с использованием спектрометрических измерений фотонного и бета-излучений.

2. Создан прототип бета-радиометра со сцинтилляционным блоком детектирования СДБИ для реализации разработанной методики измерений. Показано, что наличие гамма- и бета-излучающих техногенных и естественных радионуклидов ограничивает минимально измеряемую удельную активность ^{90}Sr и ее значение составляет не менее 60 Бк/кг. Установлено, что для тонких проб (например, фильтров) при определении общей активности ^{90}Sr значение минимально измеряемой активности составляет не менее 0,5Бк.

3. Разработана методика определения типа ТВЭЛов в облученных тепловыделяющих сборках, основанная на использовании спектрометрических систем высокого разрешения.

4. Разработана методика обнаружения урана в ТРО основанная на регистрации характеристического излучения сцинтилляционным детектором, позволяющая выделять полезный сигнал (линии характеристического излучения урана) в области низких энергий ($E \approx 100$ кэВ). Сформулированы критерии наличия урана в исследуемых образцах, позволяющие с высокой степенью достоверности выявлять наличие в РАО урансодержащих материалов.

Основные результаты диссертационной работы представлены в следующих публикациях:

1. V. N. Potapov, A. G. Volkovich, O. P. Ivanov, V. E. Stepanov, S. V. Smirnov, V. G. Volkov. Development of Portable Beta Spectrometer for Sr-90 Activity Measurements in Field Conditions and Its Application in Rehabilitation Activities at RRC Kurchatov Institute. In Proc. of WM'06 Conference, February 26 - March 2, 2006, Tucson, AZ, USA.

2. Волков В.Г., Семенов С.Г., Зверков Ю.А. и др. Исследование и разработка полевого метода измерений удельной активности Sr-90 и изготовление опытного образца спектрометра для проведения измерений. Отчет РНЦ «Курчатовский институт», инв. №240-11/80,2005.

3. Штромбах Я.И., Зверков Ю.А., Иванов О.П. и др. Разработка и опытно-экспериментальная проверка технологий, оборудования, средств измерений, контроля для проведения радиационного обследования и

4. Штромбах Я.И., Семенов С.Г., Чесноков А.В. и др. Исследование изотопного состава загрязнения конструкций ХОЯТ и прилегающей территории после удаления некондиционного топлива на примере одного из хранилищ объекта «Газовый завод». Отчет РНЦ «Курчатовский институт», инв. № 240-18/60, декабрь 2007.
5. Волков В.Г., Зверков Ю.А., Волкович А.Г. и др. Радиационное обследование радиоактивно загрязненных объектов и территорий Кирово-Чепецкого химического комбината. Сборник докладов III Международного ядерного форума, 22-26 сентября 2008 г., Санкт-Петербург, стр. 62-69
6. Зверков Ю.А., Волков В.Г., Волкович А.Г., Радиационное обследование радиоактивно загрязненных объектов и территорий Кирово-Чепецкого химического комбината, Тематический сборник «Ядерная и радиационная безопасность России», вып. 4, часть 3, Москва, 2008, стр. 17-36.
7. Волков В.Г., Волкович А.Г., Иванов О.П., Потапов В.Н. и др. Радиационное обследование радиоактивных объектов Кирово-Чепецкого химического комбината. Атомная энергия, т.107, вып. 2, август 2009, с. 75-81.
8. Волков В.Г., Волкович А.Г., Данилович А.С., Дроздов А.А., Зверков Ю.А., Евстигнеев В.П., Музрукова В.Д., Потапов В.Н., Семенов С.Г., Романов В.И., Шиша А.Д., Подготовка и вывоз на переработку отработавшего ядерного топлива ВВР-2 и ОР РНЦ «Курчатовский институт», Атомная энергия, т. 106, вып. 4, апрель 2009, стр. 201-209.
9. Потапов В.Н., Волкович А.Г., Смирский Ю.Н. Спектрометрический способ оценки характеристик отработавшего ядерного топлива. – Атомная энергия, 2009, т. 106, вып. 5, с. 273-277.