

Спектроскопия ^{90}Sr в образцах с высоким удельным содержанием продуктов деления

М. В. Желтоножская,* А. П. Черняев

Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет
Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2

(Статья поступила 22.01.2018; Подписана в печать 26.03.2018)

Разработана новая методика по измерению активности ^{90}Sr без радиохимического исследования в образцах с высоким удельным содержанием продуктов деления. Проведены измерения содержания ^{90}Sr в топливосодержащих материалах различного типа. Измерена вероятность образования Кх-излучения при радиоактивном распаде с испусканием электронов ^{90}Sr и ^{90}Y . Проведено сравнение с радиохимическими исследованиями.

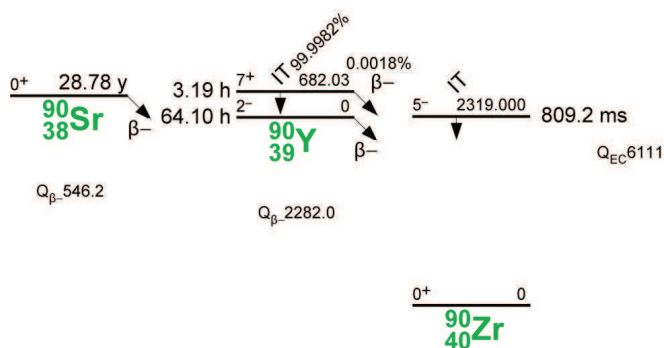
PACS: 29.30.-h, 23.40.-s

УДК: 539.163

Ключевые слова: спектроскопия, стронций, автоионизация, топливосодержащие материалы.

ВВЕДЕНИЕ

Радиоактивный ^{90}Sr распадается чистым β^- -переходом на основное состояние ^{90}Y , который также распадается чистым β^- -переходом на стабильный ^{90}Zr . Граничные энергии ($E_{\text{гр}}$) этих β^- -переходов 0.55 и 2.3 МэВ соответственно (рис. 1).

Рис. 1: Схема распада ^{90}Sr

Для оценки его содержания в жидких, газообразных и твердых средах существует множество стандартных и давно внедренных в практику методических подходов. Для этого применяют различные методы радиохимического выделения радионуклида с последующим измерением на бета-радиометрах, реже применяются прямые методы радиометрии, когда оценку осуществляют косвенно по дочернему ^{90}Y при отсекании с помощью фильтров бета-частиц ^{90}Sr , ^{137}Cs и ^{40}K , имеющих меньшую энергию [1]. Погрешность таких измерений не может быть меньше 30%, так как на любых радиометрах интегрируется весь спектр электронов по энергии, а эффективность регистрации имеет нелинейную энергетическую зависимость. Кроме того, спектр электронов при радиоактивном распаде имеет непрерывное максвеллоподобное распределение по энергии

от нуля до $E_{\text{гр}}$. Именно это и приводит к большим погрешностям при измерениях радиометрическими методами. Химически же этот изотоп является аналогом кальция, поэтому он наиболее эффективно откладывается в костной ткани и представляет собой высокую радиологическую опасность для человека. Поэтому актуальными являются разработка оперативных методов контроля содержания ^{90}Sr , наработанного при работе АЭС, в различных образцах.

Нами предлагается определять активность ^{90}Sr по характеристическому излучению. Как известно, радиоактивный ^{90}Sr распадается чистым β^- -переходом на основное состояние ^{90}Y , который также распадается чистым β^- -переходом на стабильный ^{90}Zr . Граничные энергии этих β^- -переходов $E_{\text{гр}} = 0.55$ и 2.3 МэВ соответственно.

Для этих исследований было использовано такое редкое явление, как автоионизация атомов при β^- -распаде [2]. Этот процесс происходит по причине того, что в процессе β^- -распада заряд ядра меняется скачкообразно, а значит и точно так же меняется и кулоновское поле. Это приводит к «стряхиванию» электронов с различных атомных оболочек, в том числе и с К-оболочки. При этом на К-оболочке образуется «дырка», заполнение которой приводит к появлению характеристического К_x-излучения. Измерение этого К_x-излучения может позволить определять активность ^{90}Sr – ^{90}Y . Сам по себе этот процесс имеет вероятность 10^{-3} – 10^{-4} на акт распада, т.е. его можно использовать при изучении образцов с высокой удельной активностью ^{90}Sr . Образование именно с такой удельной активностью ^{90}Sr наблюдаются в местах временного хранения отработанного ядерного топлива или радиоактивных материалов. Поэтому нами в данной работе для разработки новой методики по измерению активности ^{90}Sr проведены исследования вероятности образования характеристического излучения при распаде ^{90}Sr и характеристических спектров топливосодержащих материалов, отобранных в аварийном 4-м энергоблоке ЧАЭС.

*E-mail: zhelton@yandex.ru

МЕТОДЫ И РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Нами выполнены измерения выхода K_x -излучения стандартного калибровочного образца ^{90}Sr - ^{90}Y на полупроводниковом Ge-детекторе объемом 1 см^3 с тонким входным бериллиевым окном. На измеренном γ -спектре (рис. 2) надежно наблюдаются K_α - и K_β -группы образца ^{90}Y и ^{90}Zr с энергиями 15.0, 15.8, 16.8 и 17.7 кэВ соответственно. Для абсолютной калибровки использовался образцовый источник ^{241}Am , который имеет L_α - и L_β -группы с энергиями 13.9 и 17.7 кэВ. В результате было получено, что вероятность автоионизации К-оболочки ^{90}Sr и ^{90}Y на распад равна:

$$P_K(^{90}\text{Y}) = 3.21(16) \times 10^{-4}, P_K(^{90}\text{Zr}) = 4.19(21) \times 10^{-4}.$$

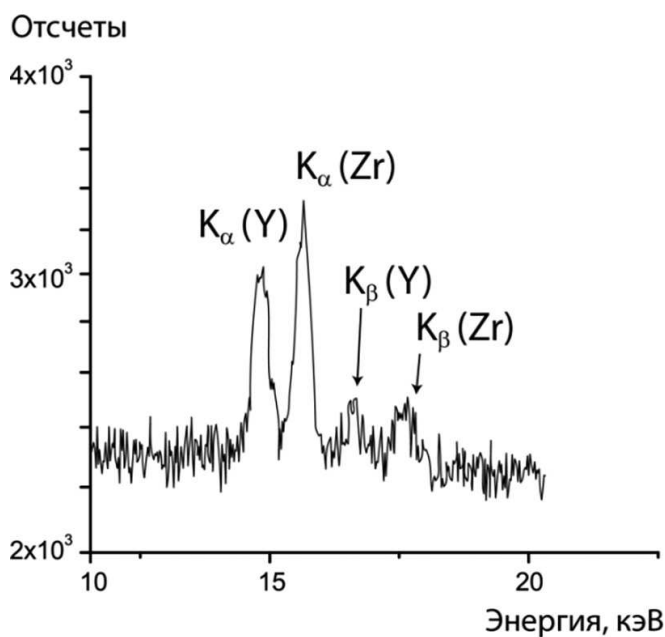


Рис. 2: γ -спектр стандартного калибровочного образца ^{90}Sr - ^{90}Y , измеренного на полупроводниковом Ge-детекторе

На этом же спектрометре были проведены измерения образцов топливных частиц разного происхождения:

1. частица из 4-го энергоблока ЧАЭС с высоким содержанием урана;
2. частица из 4-го энергоблока ЧАЭС, идентифицированная нами, как фрагмент чернобылита;
3. фрагмент неповрежденного ТВЭЛа.

На рис. 3–5 приведены фрагменты спектров этих образцов в области энергий 10–60 кэВ. В этой области находятся γ -переходы характеристического излучения

всех основных радионуклидов, входящих в состав изучаемого образца. Изучение γ -переходов именно в этой области энергий важно для уменьшения систематических ошибок при наших исследованиях. (см. ниже).

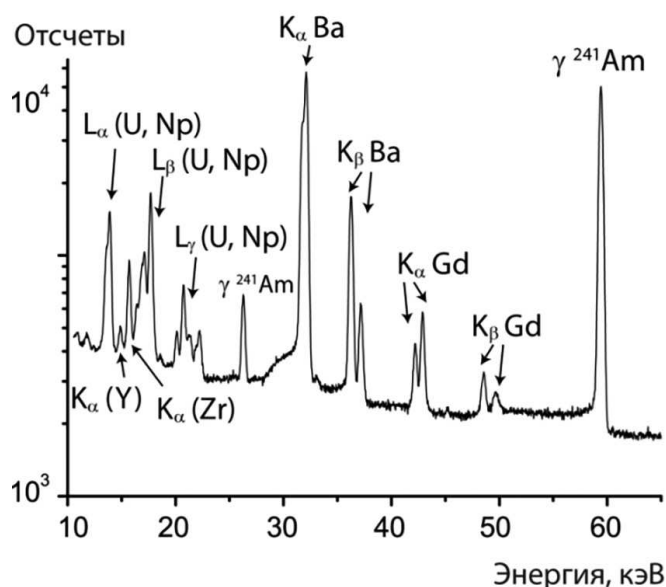


Рис. 3: γ -спектр фрагмента чернобылита, отобранного в середине 4-го энергоблока ЧАЭС, измеренного на полупроводниковом Ge-детекторе

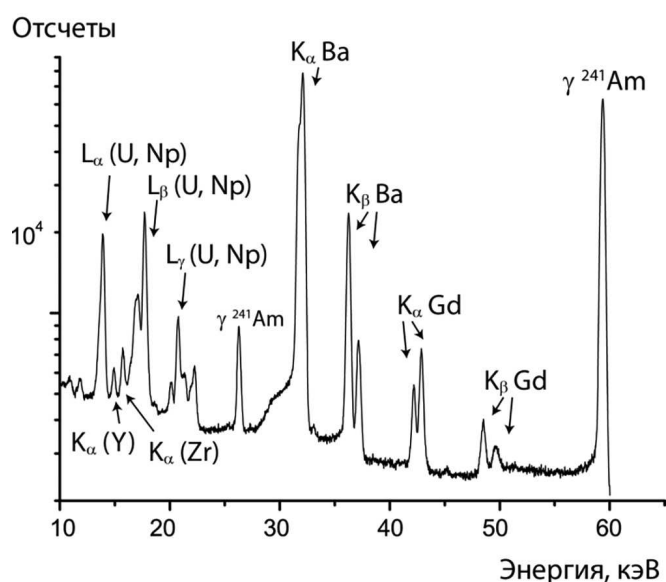


Рис. 4: γ -спектр фрагмента неповрежденного ТВЭЛа, измеренного на полупроводниковом Ge-детекторе

Как видно из полученных спектров во всех образцах надежно выделяется K_α -группа ^{90}Y , причем ее интенсивность составляет несколько процентов от интенсивности L_α -группы ^{241}Am . Соотношение пик/фон также достаточно благоприятное и позволяет легко регистрировать K_α -группу ^{90}Y на комптоновском фоне от

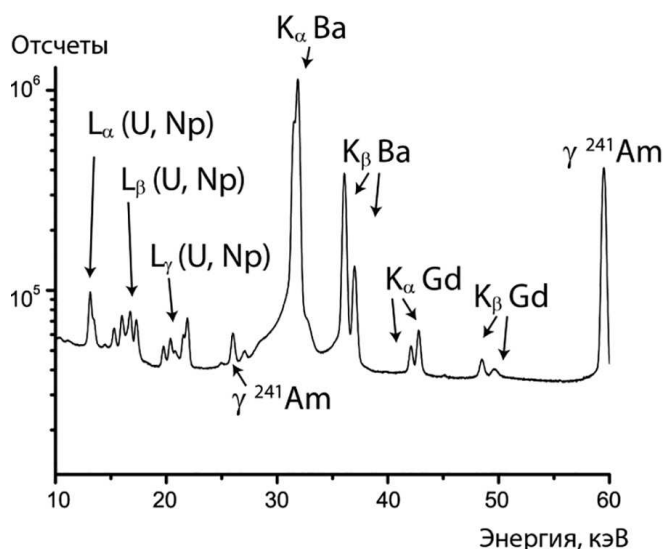


Рис. 5: γ -спектр фрагмента урановой частицы, измеренного на полупроводниковом Ge-детекторе

K_x -излучения бария, сопровождающего распад ^{137}Cs через конверсионный переход γ -перехода с энергией 661 кэВ. Сложнее ситуация с K_α -группа ^{90}Zr . Цирконий является одним из основных конструкционных материалов в середине 4-го энергоблока ЧАЭС и поэтому после аварии его находят в составе многих образований ТСМ в середине объекта «Укрытие». В тех частицах, где присутствует значительная примесь циркония происходит образование «дырок» в К-оболочке Zr за счет процессов ионизации электронами из радиоактивного распада того же ^{90}Sr и ^{137}Cs , а также фотоионизации за счет фотоэффекта от γ -переходов. При этом, как и в случае с автоионизацией при β -распаде ^{90}Y образуется такое же K_x -излучение Zr. Разделить пики от этих излучений невозможно, поэтому K_x -излучение Zr данным методом при исследовании ТСМ из 4-го энергоблока ЧАЭС может использоваться только как подтверждающий фактор. Все основные измерения необходимо проводить через K_α -группу ^{90}Y .

В таблице приведены полученные результаты по содержанию ^{90}Sr для различных частиц. Там же приведены для сравнения данные об активности ^{137}Cs и ^{241}Am .

Для верификации полученных результатов были проведены и радиохимические исследования содержания ^{90}Sr в изучавшихся образцах частиц.

Был получен коэффициент К:

$$K = \frac{A(\text{Sr}(K_x))A(\text{Cs}^*)}{A(\text{Sr}^*)A(\text{Cs}(K_x))}, \quad (1)$$

где $A(\text{Sr}^*)$ — активность стронция, полученная радиохимическим методом, а $A(\text{Cs}^*)$ — активность цезия в образце, из которого стронций выделили радиохимическим методом.

При этом, коэффициент К составил для:

1. фрагмента ТВЭЛа — 0.95;
2. фрагмента чернобылита — 1.1;
3. фрагмента урановой частицы — 1.2.

В частности при радиохимическом выделении ^{90}Sr из фрагмента ТВЭЛа активность его составила 3.25×10^3 Бк, а при наших измерениях этого же фрагмента ТВЭЛа — $3.07(9) \times 10^3$ Бк. Как обсуждалось выше, погрешность при радиохимических исследованиях составляет около 30%. Как видно, в пределах этих 30% наблюдается хорошее согласие полученных данных.

Статистическая погрешность наших измерений составила не более 2–3%. Учет методической погрешности проводился с использованием специального программного обеспечения.

Основным источником ошибок при измерениях в низкой области является погрешность в калибровке спектрометра по абсолютной эффективности регистрации γ -лучей. Калибровка детектора по эффективности регистрации $\epsilon(E)$ проводится по формуле:

$$\ln \epsilon(E) = \sum_{j=0}^m a_j (\ln E)^j \quad [3], \quad (2)$$

где энергия E задается в кэВ.

Для вычисления параметров калибровки можно использовать несколько изотопов, даже если их массовое соотношение в калибровочном образце неизвестно. Нами использовались такие стандартные источники как ^{241}Am и ^{137}Cs , чтобы можно было связать полученные результаты с выходами этих радионуклидов. При этом минимизируется функция:

$$S(a, b) = \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^{n_i} w_{ik} (f(E_{ik}) - b_i \varphi_{ik})^2, \quad (3)$$

где N — число изотопов, n_i — число линий i -го изотопа, b_i — весовой коэффициент i -го изотопа, E_{ik} — энергия k -й линии i -го изотопа, f — одна из функций калибровки, φ_{ik} — логарифм отношения измеренной и табличной интенсивностей k -й линии i -го изотопа, коэффициенты w_{ik} обратно пропорциональны сумме квадратов относительных погрешностей измеренной и табличной интенсивностей линии. Весовой коэффициент первого изотопа b_1 полагается равным единице.

Дифференцируя по a , b и приравнявая производные 0, получаем систему линейных уравнений:

$$M \begin{pmatrix} a \\ b \end{pmatrix} = Y, \quad (4)$$

из которой определяются параметры калибровки a_j и относительные активности изотопов b_i . Зная абсолютную активность одного из изотопов, можно получить абсолютную кривую калибровки.

Таблица I:

Изотоп	Активность, Бк $\times 10^3$		
	Фрагмент ТВЭЛа	Фрагмент чернобылита	Фрагмент урановой частицы
^{90}Sr	50.7	15.8	42
^{137}Cs	16.5	5.0	173
^{241}Am	1.48	0.48	1.29

Здесь особо стоит упомянуть об одном важном моменте. Определение ^{90}Sr предлагается проводить, сравнивая интенсивность K_α ^{90}Y и L_α ^{241}Am , а абсолютная активность определяется сравнением с активностью ^{241}Am , которую можно получить по выходу γ 59 кэВ. Таким образом, нас интересует отношение эффективности регистрации $\eta = \epsilon_k/\epsilon_l$ для двух различных близких по величине энергий, E_k и E_l . Погрешность этого отношения существенно ниже погрешностей отдельно взятых коэффициентов эффективности. При использовании для калибровки по эффективности функции относительная погрешность $\delta\eta$ будет равна абсолютной погрешности $\Delta(\ln \eta)$:

$$\Delta \ln \frac{\epsilon_k}{\epsilon_l} = \sqrt{S_0 \cdot \sum_{i,j=0}^m M_{ij}^{-1} \cdot [(\ln E_k)^i - (\ln E_l)^i] \cdot [(\ln E_k)^j - (\ln E_l)^j]}, \quad (5)$$

где S_0 — минимизированное значение, M_{ij}^{-1} — элементы матрицы, обратной матрице M , определяющие вариации и ковариации параметров калибровки a . Легко видеть, что погрешность отношения η будет тем меньше, чем ближе друг к другу находятся энергии E_k и E_l . Эта погрешность также существенно уменьшается из-за взаимной корреляции параметров калибровки a . Учитывая, что погрешность измерений выхода L_α - и L_β -групп ^{241}Am составляет около 1% [3] и кривая эффективности в этой области имеет сглаженную форму это позволяет проводить интерполяцию коэффициентов эффективности для наших переходов с точностью $\leq 0.5\%$. Фактически мы можем исключить вклад методических ошибок и использовать статистические погрешности.

Таким образом, измерив абсолютную активность ^{241}Am по γ -линии 59 кэВ (в этом случае значительно минимизируется погрешность от неоднородности образцов и их различной плотности) активность ^{90}Sr определяется по формуле:

$$A(^{90}\text{Sr}) = 404A(^{241}\text{Am}) \frac{I(K_\alpha \text{Y})}{I(L_\alpha \text{Am})}. \quad (6)$$

Как видно в данных измерениях достаточно легко достигается погрешность измерений 4–5%. На наш взгляд это открывает новые возможности при изучении поведения ^{90}Sr внутри 4-го энергоблока ЧАЭС.

При проведении исследований, где активность ^{241}Am не является доминирующей, измерения проводятся путем сравнения выходов L_α -групп ^{90}Y и ^{90}Zr с выходом K_α Ba по формулам:

$$A(^{90}\text{Sr}) = 190A(^{137}\text{Cs}) \frac{I(K_\alpha \text{Y})}{I(K_\alpha \text{Ba})}, \quad (7)$$

$$A(^{90}\text{Sr}) = 146A(^{137}\text{Cs}) \frac{I(K_\alpha \text{Zr})}{I(K_\alpha \text{Ba})}. \quad (8)$$

Используя выражение (5) для энергии 15 кэВ (L_α -групп ^{90}Y и ^{90}Zr) и 33 кэВ (L_α Ba), можно получить, что ошибки в погрешностях для эффективности регистрации для этих энергий не более 1.5 %, т.е. фактически их можно не учитывать и погрешность при измерениях ^{90}Sr этим методом будет состоять из статистической погрешности и ошибке в данных о вероятности автоионизации (5%).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Отметим также, что этот метод позволяет значительно уменьшить стоимость таких исследований (в 2–3 раза) по сравнению с радиохимическими исследованиями.

- [1] Bondarkov M. D., Maximenko A. M., Zheltonozhsky V. A. The Radioecology-Ecotoxicology of Continental and Estuarine Environments. ECORAD 2001 : intern. cong., 3–7 sept. 2001. : proc. cong. — Aix-en-Provence, France, 2002. Radioprotection-colloques. **37**, C1. P. 927.
[2] Желтоножский В. А., Стрильчук Н. В. Изв. РАН. Сер.

физ. 2002. **66**, № 10. С. 1450.

- [3] Хоменков В. П. Исследования атомно-ядерных эффектов в процессе внутренней конверсии гамма-лучей. Автореферат канд. дисс. Киев, 2003. .

Spectroscopic technique of registration of ^{90}Sr in samples with a high specific activity**M. V. Zheltonozhskaya^a, A. P. Chernyaev***Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University**Moscow 119991, Russia**E-mail: ^azhelton@yandex.ru*

The new technique is developed to measure ^{90}Sr in samples with a high specific activity and based on using characteristic K_x -radiation. The probability of K_x -radiation during the radioactive decay with the emission of electrons of ^{90}Sr and ^{90}Y was measured. The method for determination of ^{90}Sr in the fuel-containing materials was proposed from the data on the probability of ionization of atoms in β^- -decay. Measurements of ^{90}Sr were executed in fuel fragments of various types. Obtained results was compared and verified with the radiochemical research of these samples. The proposed method allows to execute the measurement of ^{90}Sr with an accuracy of 3–5% in the samples with high specific activity. These results open up new possibilities in the study of radioactive materials produced as a result of nuclear fission.

PACS: 29.30.-h, 23.40.-s

Keywords: spectroscopy, strontium, autoionization, fuel-containing materials.*Received 22 January 2018.***Сведения об авторах**

1. Желтоножская Марина Викторовна — канд. техн. наук, ст.науч.сотрудник; e-mail: zhelton@yandex.ru.
 2. Черняев Александр Петрович — доктор физ.-мат. наук, профессор, зав. кафедрой физики ускорителей и радиационной медицины.
-