

Определение активности ^{10}Be в конструкционных материалах АЭС активационным методом

М. В. Желтоножская^{1,*}, В. А. Желтоножский², Д. Е. Мызников², А. П. Черняев¹, П. Г. Шустов¹

¹Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова,
физический факультет, кафедра физики ускорителей и радиационной медицины
Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2

²Институт ядерных исследований НАН Украины
Украина, 03680, Киев, Проспект науки, 47

(Статья поступила 21.03.2019; Подписана в печать 24.03.2019)

В конструкционных материалах реакторов образуется высокотоксичный ^{10}Be с периодом полураспада $T_{1/2} = 1.6 \times 10^6$ лет, который распадается с испусканием только электронов с граничной энергией 555 кэВ. Для его выявления и контроля необходимы длительные и дорогостоящие радиохимические процедуры. Нами предлагается использовать активационный метод определения концентрации ^9Be и ^{10}B в образцах с последующим перерасчетом в них активности ^{10}Be . Для реализации предложенного метода и определения вклада ^{10}Be в массу образцов конструкционных материалов были облучены образцы массой 50 мг потоком тормозных γ -квантов с граничной энергией 37 МэВ и определена активность ^7Be . Используя полученные данные было получено, что активность ^{10}Be в образце с максимальным выходом ^7Be оказалась равной 0.09 Бк/г.

PACS: 29.20.Ej, 25.20.Lj

УДК: 621.039.7

Ключевые слова: конструкционные материалы АЭС, бериллий, бор, фотоядерные реакции, гамма-спектрометрия.

ВВЕДЕНИЕ

В процессе эксплуатации энергоблоков АЭС образуются газоаэрозольные, жидкие и твердые радиоактивные отходы (РАО). РАО на станции образуются при делении трансурановых нуклидов в топливосодержащих материалах, а также в результате активации нейтронами конструкционных материалов активной зоны реактора. В среднем, в зависимости от мощности и типа реакторной установки, за год образуется от 0.15 до 0.35 м³ жидких и от 0.1 до 0.3 м³ твердых РАО на 1 МВт. Поэтому проблемы обращения с радиоактивными отходами в отрасли ядерной энергетики занимает сегодня одно из центральных мест. Для передачи отходов на последующую переработку и захоронение необходима их характеристика, включающая соответствующее описание, классификацию и декларирование.

После длительной эксплуатации станции в конструкционных материалах активной зоны реактора и прилегающих помещениях обнаруживается ^{10}Be , с периодом полураспада $T_{1/2} = 1.6 \times 10^6$ лет. Как известно, бериллий обладает уникальным сочетанием двух ядерных характеристик: наименьшее эффективное поперечное сечение захвата тепловых нейтронов и высокий коэффициент рассеяния нейтронов, кроме того оксид бериллия выдерживает очень высокие температуры, химически инертен. Благодаря этим свойствам и с учетом его высокой жаростойкости и теплоемкости стабильный бериллий ^9Be используется и в конструкционных материалах отражателей, и в оболочках ТВЭ-

Лов на атомных электростанциях. Однако, после длительной эксплуатации станции в конструкционных материалах активной зоны реактора и прилегающих помещениях обнаруживается ^{10}Be , с периодом полураспада $T_{1/2} = 1.6 \times 10^6$ лет. Ввиду его токсичности, ярко выраженного канцерогенного действия (для воздуха ПДК в пересчете на бериллий составляет 1×10^{-6} г/м³) и высокой радиобиологической опасности (при таком длительном периоде полураспада, попадая в организм бериллий отлагается либо в почках, либо в костях, где замещает магний) необходим тщательный оперативный контроль за его содержанием в отходах, конструкционных материалах и помещениях атомных станций. Этот изотоп является чистым бета-излучателем с испусканием только электронов с граничной энергией 555 кэВ, поэтому традиционными методами обнаружения и измерения его концентрации являются методически сложные и дорогостоящие радиохимические процедуры выделения ^{10}Be . Нами для решения этой проблемы предлагается активационная методика, основанная на определении в РАО концентрации ^9Be и ^{10}B с последующим перерасчетом активности ^{10}Be , образующегося в (n,g) и (n,p)-реакциях при работе реактора.

1. МЕТОДИКА И РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Учитывая огромный объем нарабатываемых РАО на атомных станциях, физические и химические процессы, протекающие при такой наработке, различные уровни загрязненности РАО и, соответственно, различные требования к обращению с ними, для их выявления и контроля, согласно рекомендациям МАГАТЭ, используются непрямые методы, основанные, как прави-

*E-mail: zhelton@yandex.ru

ло, на существовании корреляций между содержанием определенных изотопов-маркеров в РАО [1].

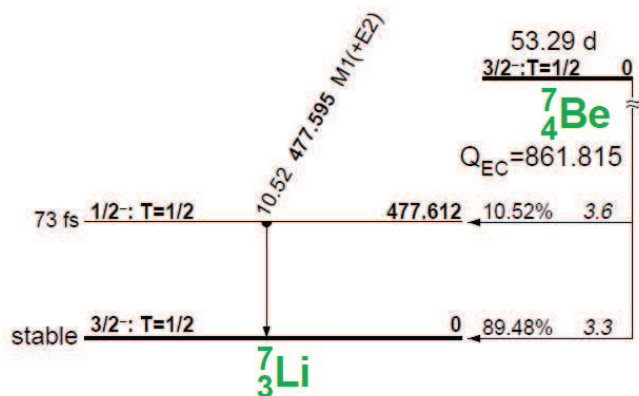


Рис. 1: Схема распада ${}^7\text{Be}$ [3]

Нами для определения концентрации ${}^9\text{Be}$ и ${}^{10}\text{B}$ в образцах предлагается провести их активацию путем облучения линейным ускорителем электронов и исследовать реакции $(g, 2n)$ и $(g, 2np)$, приводящие к образованию легко регистрируемого гамма-спектрометрами ${}^7\text{Be}$ с периодом полураспада $T_{1/2} = 53$ дня (рис. 1).

Анализ сечения фотоядерных реакций [2] на ${}^9\text{Be}$ и ${}^{10}\text{B}$ показал, что при граничной энергии тормозного излучения равной 37 МэВ интегральные сечения $(\gamma, 2n)$ -реакции на ${}^9\text{Be}$ и $(\gamma, 2np)$ на ${}^{10}\text{B}$ примерно одинаковы. Погрешность интегральных сечений для ${}^{10}\text{B}$ составляет 20–30% и имеет величину 220 мкбн, а для

${}^9\text{Be}$ — 160 ± 18 мкбн. С учетом таких погрешностей для расчетов использовалось общее интегральное сечение $\sigma_{\text{инт}} = 200 \pm 25$ мкбн. Сечение ${}^9\text{Be} (n, \gamma)$ -реакции равно 7.6 ± 0.8 мбн, а сечение ${}^{10}\text{B} (n, p)$ -реакции равно 6.4 ± 0.5 мбн и для расчетов нами использовалось общее сечение $\sigma = 7 \pm 1$ мбн.

Активность нарабатываемого ${}^7\text{Be}$ можно рассчитать по формуле:

$$A({}^7\text{Be}) = N(\text{Be}) \left(1 - e^{-\lambda(\text{Be})t_{\text{обл}}}\right) \int_{E_{\text{порог}}}^{E_{\gamma\text{max}}} \sigma(E) \cdot \Phi(E) \cdot dE \quad (1)$$

где N — число атомов ${}^9\text{Be}$ в облучаемом образце, $\Phi(E)$ — плотность потока γ -квантов, $\sigma(E)$ — интегральное сечение реакции, $\lambda(\text{Be})$ — постоянная радиоактивного распада ${}^7\text{Be}$, $t_{\text{обл}}$ — время облучения мишени. Количество наработанного ${}^7\text{Be}$ определяется из выражения:

$$N({}^7\text{Be}) = \frac{A({}^7\text{Be}) (1 - e^{-\lambda(\text{Be})t_{\text{изм}}})}{\lambda(\text{Be})}, \quad (2)$$

где $t_{\text{изм}}$ — время измерения, $\lambda(\text{Be})$ — постоянная радиоактивного распада ${}^7\text{Be}$.

В конструкционных материалах основным распространенным химическим элементом является железо, его часто используют как изотоп-маркер, поэтому для исключения методических погрешностей проводятся относительные измерения, сравнивая выход g -линий ${}^7\text{Be}$ и ${}^{54}\text{Mn}$ (реакция ${}^{56}\text{Fe} (g, pn)$). Отношение числа атомов Be и ${}^{54}\text{Fe}$ будет равно:

$$\frac{N(\text{Be})}{N(\text{Fe})} = \frac{N_{\gamma}(\text{Be}) (1 - e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{обл}}}) (1 - e^{-\lambda(\text{Mn})t_{\text{изм}}}) e^{\lambda(\text{Mn})t_{\text{п}} \sigma(\text{Mn}) \lambda(\text{Be})}}{N_{\gamma}(\text{Mn}) (1 - e^{-\lambda(\text{Be})t_{\text{обл}}}) (1 - e^{-\lambda(\text{Be})t_{\text{изм}}}) e^{\lambda(\text{Be})t_{\text{п}} \sigma(\text{Be}) \lambda(\text{Mn})}}, \quad (3)$$

где $N(\text{Be})$ — число атомов ${}^9\text{Be}$, $N(\text{Fe})$ — число атомов ${}^{56}\text{Fe}$, $t_{\text{обл}}$ — время облучения мишени на линейном ускорителе, $t_{\text{п}}$ — время выдержки облученной мишени до начала измерений, $t_{\text{изм}}$ — время измерения облученной мишени на спектрометре, $\lambda(\text{Mn})$ — постоянная радиоактивного распада ${}^{54}\text{Mn}$, $\lambda(\text{Be})$ — постоянная радиоактивного распада ${}^7\text{Be}$.

Для наработки достаточного количества радионуклидов необходимо облучать 10–15 мкг·час. Так как $T_{1/2}$ нарабатываемых нуклидов $\gg t_{\text{обл}}$, то мы можем разложить это выражение в ряд Тейлора и получить, что $1 - e^{-\lambda t} \approx \lambda t$. Подставив это в предыдущее выражение (3), получим:

$$\frac{N(\text{Be})}{N(\text{Fe})} = \frac{N_{\gamma}(\text{Be}) e^{\lambda(\text{Mn})t_{\text{п}} \lambda(\text{Be})}}{N_{\gamma}(\text{Mn}) e^{\lambda(\text{Be})t_{\text{п}} \lambda(\text{Mn})}}. \quad (4)$$

Интегральное сечение (γ, pn) -реакции на Fe равно

230 ± 30 мкбн. Таким образом для граничных энергий γ -квантов 37 МэВ, с учетом теоретических выходов для гамма-линии 477 кэВ (${}^7\text{Be}$) — 10.52% и для гамма-линии 835 кэВ (${}^{54}\text{Mn}$) — 99.98

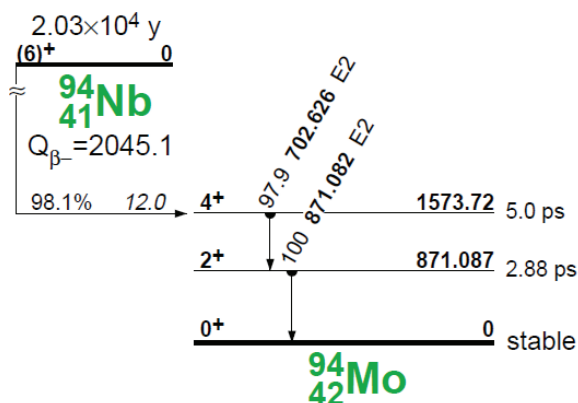
$$\frac{N(\text{Be})}{N(\text{Fe})} = 10 \frac{N_{\gamma}(477 \text{ кэВ}) e^{\lambda(\text{Mn})t_{\text{п}} \sigma(\text{Mn}) \lambda(\text{Be})}}{N_{\gamma}(834 \text{ кэВ}) e^{\lambda(\text{Be})t_{\text{п}} \sigma(\text{Be}) \lambda(\text{Mn})}}, \quad (5)$$

где 10 — отношение теоретических выходов для гамма-линий 477 кэВ и 835 кэВ, $N_{\gamma}(834 \text{ кэВ})$ — число отсчетов в пике с энергией 834 кэВ с учетом эффективности регистрации спектрометра (в данном случае — $5.0 N_{\gamma}(477 \text{ кэВ})$ — число отсчетов в пике с энергией 477 кэВ с учетом эффективности регистрации спектрометра (в данном случае — 8.1), $t_{\text{п}}$ — время выдержки облученной мишени до начала измерений, $\lambda(\text{Mn})$ — постоянная радиоактивного распада ${}^{54}\text{Mn}$, $\lambda(\text{Be})$ — постоянная радиоактивного распада ${}^7\text{Be}$.

Таблица I: Активности ^{10}Be (Бк/г) в некоторых исследованных образцах конструкционных материалов и РАО АЭС

Образец конструкционных материалов	Образец (ТРАО) 1	Образец (ТРАО) 2	Образец (ТРАО) 3
0.03	<0.01	0.04	0.09
Погрешность измерений составила 20%			

Для дальнейших перерасчетов содержания ^{10}Be в образцах конструкционных материалов необходимо определить количество атомов ^9Be и ^{10}B . Для чего нужны достоверные данные о флюенсе нейтронов, который существовал при работе этого реактора и привел к наработке ^{10}Be . Как правило максимальный флюенс нейтронов реактора для консервативной оценки активности радионуклидов известен и используется при расчетах дозовых нагрузок персонала станции. Однако для оценки реального флюенса нейтронов для наших перерасчетов содержания ^{10}Be в образцах можно использовать ^{94}Nb с $T_{1/2} = 2.03 \times 10^4$ лет. Этот элемент используется в легировании уранового топлива для улучшения его механических и коррозионных свойств, а также предотвращения радиационного распухания. При ранее проводившихся исследованиях была обнаружена его достаточно широкая распространенность в конструкционных материалах и различных типах РАО, отобранных на АЭС [4]. Схема распада ^{94}Nb представлена на рис. 2.

Рис. 2: Схема распада ^{94}Nb [3]

Как видно, этот изотоп распадается с испусканием двух гамма-квантов, которые можно легко зарегистрировать на гамма-спектрометрах. В тоже время, как и в случае с ^{10}Be , также можно с помощью активационного метода определить ^{94}Nb через исследование (g, n) -реакции на ^{93}Nb с последующим перерасчетом активности ^{94}Nb . Полученные данные о флюенсе нейтронов реактора используются в последующих перерасчетах образцов конструкционных материалов и РАО этого реактора.

Таким образом, для определения и последующего расчета активности ^{10}Be и ^{94}Nb нами были проведено облучение четырех образцов различного состава и консистенции конструкционных материалов и некоторых видов РАО из 2-го энергоблока ЧАЭС. Образцы твердых отходов (ТРАО) представляли собой фрагменты ветоши и средств индивидуальной защиты (перчатки), были отобраны в полиэтиленовые пакеты, доставлены в лабораторию, взвешены, а затем озолены в муфельной печи при температуре 450°C для подготовки к измерениям.

Облучение проводилось на линейном ускорителе электронов. Облучались все образцы одновременно в течение 3.5 ч. Измерения проводились на полупроводниковом спектрометре с детектором из сверхчистого германия большого объема с эффективностью регистрации 1.5 кэВ по линии ^{60}Co . В спектрах надежно выделены гамма-переходы, сопровождающие распад ^7Be , ^{54}Mn , ^{92m}Nb и ^{94}Nb (рис. 3). Из полученных данных об активности ^{94}Nb было получено, что флюенс нейтронов составил 7.5×10^{20} . Максимальная примесь ^9Be и ^{10}B составляла 5×10^{-4} от полной массы. С учетом всего вышеизложенного была рассчитана активность ^{10}Be в исследуемых образцах (таблица).

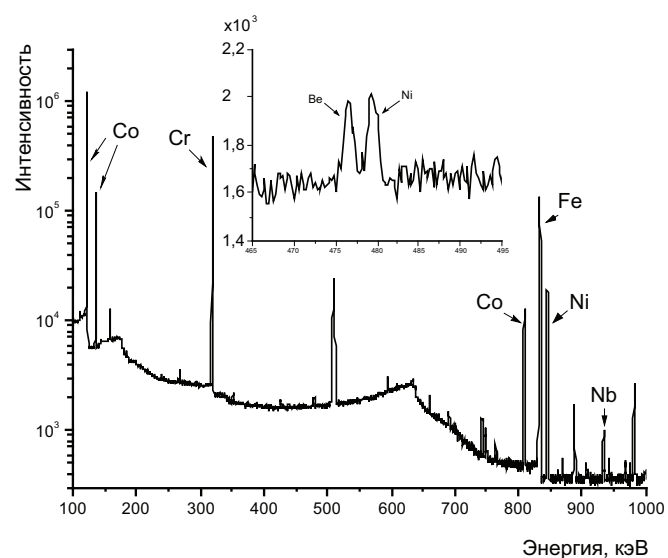


Рис. 3: Фрагменты гамма-спектра образца (3), облученного тормозными гамма-квантами с граничной энергией 37 МэВ

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Активационная методика определения ^{10}Be может упростить процедуры выявления, контроля и паспортизации этого изотопа в конструкционных материалах и радиоактивных отходов различных типов, а с уче-

том огромного объема нарабатываемых РАО на атомных станциях предлагаемый метод является более оперативным по сравнению с традиционными радиохимическими методами. Расчётная погрешность метода составляет около 20%, чувствительность метода — 10^{-2} Бк/г.

-
- [1] IAEA. Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization IAEA-TECDOC-1537. 2007. Vienna: IAEA.
- [2] Varlamov A. V., Varlamov V. V., Rudenko D. S., Stepanov M. E. Atlas of Giant Dipole Resonances // IAEA nuclear data section. 1999. Wagramerstrasse 5, A-1400 Vienna.
- [3] Firestone R. B., Shirlev V. S., Baglin C. M. et al. The 8th edition of the Table of Isotopes. CD-ROM. 1996. Ver.1.
- [4] Bondar'kov M. D., Maksimenko A. M., Vishnevskii I. N. et al. Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics. 2009. **73**, N 2. P. 266.

Detection of ^{10}Be concentration in nuclear power plant construction materials with activation method

M. V. Zheltonozhskaya^{1,a}, V. A. Zheltonozhskiy¹, D. E. Myznikov², A. P. Chernyaev¹, P. G. Shustov¹

¹Lomonosov Moscow State University, Faculty of Physics, Department of Accelerator Physics and Radiation Medicine
Moscow, 119991, Russia

²Kiev Institute for Nuclear Research National Academy of Science of Ukraine
Kiev, 03680, Ukraine

E-mail: ^azhelton@yandex.ru

The highly toxic ^{10}Be with a half-life $T_{1/2} = 1.6 \times 10^6$ years is formed in reactors structural materials. During the process of radioactive decay ^{10}Be emits only electrons with a 555 keV boundary energy. Long-term and expensive radiochemical procedures are required for its detection and control. We propose to use the activation method for determining the ^9Be and ^{10}B concentrations in samples with subsequent recalculation of ^{10}Be activity. To implement the proposed method and determine the contribution of ^{10}Be to the structural materials samples, radioactive wastes samples (50 mg) were irradiated with γ -quanta with a 37 MeV boundary energy and ^7Be activity in these samples was determined. The activity of ^{10}Be in the sample with a maximum yield of ^7Be was 0.09 Bq/g.

PACS: 29.20.Ej, 25.20.Lj.

Keywords: NPP construction materials, beryllium, boron, photonuclear reactions, gamma spectrometry.

Received 21 March 2019.

Сведения об авторах

1. Желтоножская Марина Викторовна — канд. техн. наук, ст. науч. сотрудник, вед. инженер лаборатории пучковых технологий и медицинской физики НИИЯФ МГУ имени Д. В. Скобелевича, тел. (495) 939-49-46, e-mail: zhelton@yandex.ru.
2. Желтоножский Виктор Александрович — вед. науч. сотрудник Института ядерных исследований НАН Украины; тел. +38(050) 641-38-97, e-mail: vzhelton@yandex.ru.
3. Мызников Дмитрий Евгеньевич — аспирант Института ядерных исследований НАН Украины; тел. +38(063) 475-69-75, e-mail: cinqroupies@gmail.com
4. Черняев Александр Петрович — доктор. физ.-мат. наук, профессор, зав. кафедрой, зав. лаб.; тел. (495) 939-13-44, e-mail: a.p.chernyaev@yandex.ru.
5. Павел Шустов — студент; тел. (495) 939-49-46, e-mail: shustovpg@gmail.com.