

УДК 621.039.51

## ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЙ МЕТОД КОНТРОЛЯ АКТИВНОСТИ И НУКЛИДНОГО СОСТАВА ГАЗООБРАЗНЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ, ОБРАЗУЮЩИХСЯ ПРИ ЭКСПЛУАТАЦИИ ЯДЕРНО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ УСТАНОВОК

П.М. Гаврилов, А.Г. Кохомский, К.М. Измestьев, И.Н. Сеелев, М.Е. Силаев\*

ФГУП «Сибирский химический комбинат», ЗАТО Северск Томской обл.

\*Томский политехнический университет

E-mail: silaev@k21.phtd.tpu.ru

*Разработан гамма-спектрометрический метод непрерывного оперативного контроля активности и нуклидного состава инертных радиоактивных газов, радиоактивных аэрозолей и йода в газоаэрозольных выбросах ядерно-энергетических установок. Метод основан на непрерывном представительном отборе газоаэрозольных проб и квазинепрерывной регистрации автоматизированной системой нуклидного состава и количества выбросов радиоактивных веществ. Нижний предел измерения активности радионуклидов составляет 0,1 Бк/м<sup>3</sup>, верхний предел измеряемых объемных активностей радионуклидов из состава инертных радиоактивных газов (Ar-41, изотопы Xe и Kr) – 10<sup>6</sup> Бк/м<sup>3</sup>.*

### Введение

Повышение качества контроля за радиоактивными газоаэрозольными выбросами является одним из ключевых направлений радиационной безопасности при эксплуатации ядерно-энергетических установок (ЯЭУ) [1].

При эксплуатации ЯЭУ основными компонентами газообразных радиоактивных отходов (РАО) являются: инертные радиоактивные газы (Ar-41, изотопы Xe и Kr), радиоактивные аэрозоли и газообразный йод [2].

Применение радиометрических методов для непрерывного контроля газоаэрозольных выбросов ЯЭУ позволяет определять лишь интегральную активность газа, выбрасываемого в атмосферу. В условиях переменного нуклидного состава газоаэрозольных выбросов радиометрический метод не позволяет оценивать вклад отдельных радионуклидов в общую активность [3]. Определение вклада отдельных радионуклидов необходимо для оценки последствий выброса и отчетности перед контролирующими организациями. Радионуклидный состав выброса может быть проанализирован с помощью полупроводниковых гамма-спектрометров [4].

Особенностью использования лабораторных спектрометров для контроля выбросов является то, что измерения проводятся не непосредственно на газовых магистралях, а путем отбора проб. Отбор газоаэрозольной пробы производится в течение длительного периода времени (как правило, одних суток). После этого проба (аэрозольный фильтр, газовая емкость, угольная колонка и т. д.) оператором снимается с линии пробоотбора и помещается на полупроводниковый детектор гамма-спектрометра для измерения. Гамма-спектрометрический анализ позволяет установить активность и нуклидный состав пробы, а также интегральные количественные характеристики газоаэрозольного выброса в целом. Однако, применение лабораторных гамма-спектрометров для контроля активности и нуклидного состава радиоактивных выбросов ЯЭУ со снятием контролируемых проб с линий пробо-

отбора не позволяет осуществлять непрерывный оперативный контроль текущих значений активности и радионуклидного состава газоаэрозольных выбросов. Метод не достаточно оперативен.

В соответствии с новыми нормативными требованиями [1], появилась необходимость в разработке оперативной автоматизированной системы контроля выбросов, позволяющей в кратчайший срок зафиксировать, рассчитать и проанализировать повышение активности газообразных РАО. Практическая ценность результатов оперативного гамма-спектрометрического анализа обусловлена возможностью установления связи результатов определения радионуклидного состава и активности радионуклидов с технологическими процессами, происходящими на ядерной энергетической установке (ЯЭУ). Знание этих связей позволяет определять источник выброса и принимать меры по оптимизации технологических процессов (например, предотвращать развитие аварийных ситуаций, связанных с целостностью трубопроводов первого контура реакторов и осуществлять контроль герметичности оболочек твэлов ЯЭУ).

Целью настоящей работы являлась разработка автоматизированного информационно-измерительного комплекса для оперативного непрерывного контроля активности и нуклидного состава выбросов инертных радиоактивных газов (ИРГ), радиоактивных аэрозолей и йода гамма-спектрометрическим методом, включающего соответствующее методическое и метрологическое обеспечение.

### Гамма-спектрометрический метод оперативного непрерывного контроля активности и нуклидного состава газообразных РАО

Предлагаемый гамма-спектрометрический метод заключается в непрерывном представительном отборе газоаэрозольных проб из вентиляционной трубы ЯЭУ и квазинепрерывной регистрации автоматизированным гамма-спектрометрическим комплексом нуклидного состава и количества выбросов ИРГ, радиоактивных аэрозолей и йода.

Автоматизированный гамма-спектрометрический комплекс состоит из двух гамма-спектрометров производства группы предприятий «Грин Стар» [5], один из которых контролирует выбросов инертных радиоактивных газов (ИРГ), другой – радиоактивных аэрозолей и йода. Комплекс позволяет непрерывно и с высоким разрешением фиксировать, рассчитывать и анализировать уровень активности всех радионуклидов из состава ИРГ, радиоактивных аэрозолей и йода, выбрасываемых ЯЭУ.

На рис. 1 приведена схема установки для измерения активности и нуклидного состава радиоактивных аэрозолей и йода в газоаэрозольных выбросах ЯЭУ.

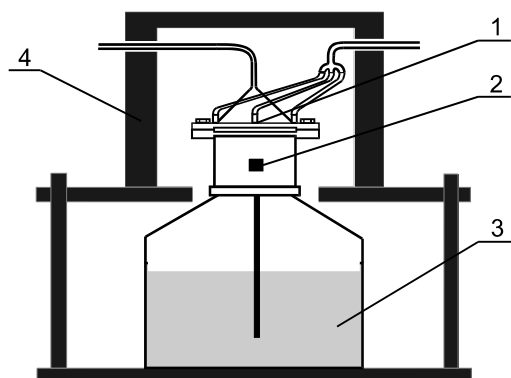


Рис. 1. Схема установки для измерений аэрозолей и йода: 1) пробоотборное устройство; 2) Ge(Li) детектор; 3) сосуд Дьюара; 4) защита

Воздух, содержащий радионуклиды, с постоянным расходом прокачивается через специальное пробоотборное устройство. При этом радиоактивные аэрозоли и йод концентрируются на сложном фильтре, закрепленном внутри пробоотборного устройства (рис. 2). Сложный фильтр состоит из одного аэрозольного фильтра типа АФА (фильтр аэрозольный аналитический), предназначенного для осаждения радиоактивных аэрозолей и одного йодного фильтра типа СФЛ (сорбционно-фильтрующая йодная лента), предназначенного для осаждения радиоактивного йода.

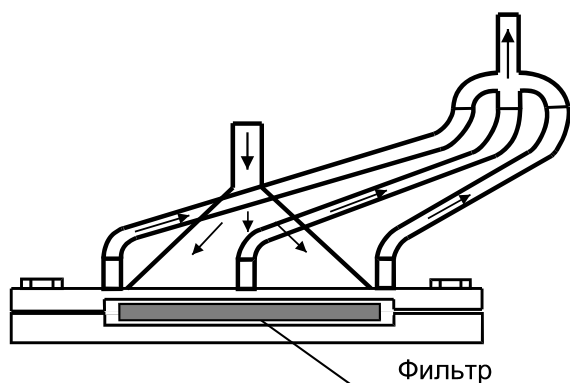


Рис. 2. Пробоотборное устройство для оперативного контроля аэрозолей и йода

Особенностью данного пробоотборного устройства является то, что оно устанавливается непосредственно на детектор гамма-излучения. При этом проба максимально приближена к чувствительной области детектора.

При помощи гамма-спектрометра измеряют скорость счета для дискретных энергий гамма-излучения непрерывно отбираемой газоаэрозольной пробы в установленном энергетическом диапазоне. Идентификацию и расчет объемной активности радионуклидов, находящихся на сложном фильтре, проводят с помощью специального программного обеспечения. Для этого используют измеренные скорости счета в пиках полного поглощения и градуировочную характеристику спектрометра.

Нижний предел измерения объемной активности нуклидов при случайной неопределенности 25 % составляет  $0,1 \text{ Бк/м}^3$ . Верхний предел измеряемых по данному методу объемных активностей гамма-излучающих нуклидов радиоактивных аэрозолей и I-131 составляет  $10^4 \text{ Бк/м}^3$ . Энергетический диапазон регистрации гамма-излучения радионуклидов (I-131, Co-60, Cs-134, Cs-137, Fe-59, Cr-51 и т. д.) составляет от 50 до 3000 кэВ. Расширенная неопределенность (при доверительной вероятности  $P=0,95$ ) расчета объемной активности нуклидов не превышает 60 %.

Для градуировки спектрометра контроля радиоактивных аэрозолей и йода необходимо использовать образцовый источник специального назначения в геометрии сложного фильтра. В комплект образцового источника специального назначения входят радионуклиды Ba-133, Cs-137, Co-60, Eu-152 с активностью 1000 Бк каждый.

Измерения активности и нуклидного состава инертных радиоактивных газов проводятся в геометрии сосуда Маринелли (охватывающая геометрия). Геометрия Маринелли реализуется с помощью специального сосуда объемом 3 л. Схема пробоотборного устройства представлена на рис. 3. Сосуд устанавливается непосредственно на детектор гамма-излучения, окружая его почти со всех сторон. Эффективность процесса измерения при этом повышается, по сравнению с процессом измерения, при котором проба размещается с одной из сторон коаксиального детектора.

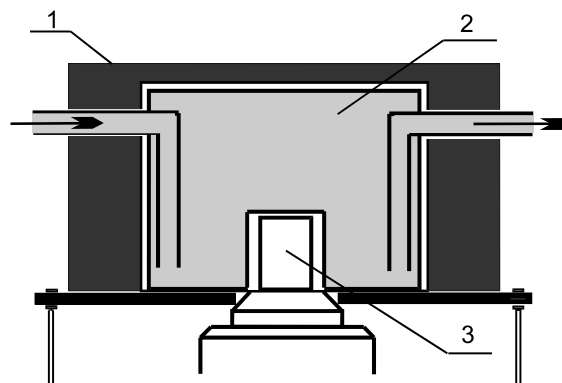


Рис. 3. Пробоотборное устройство для контроля выбросов ИРГ: 1) свинцовая защита; 2) сосуд Маринелли; 3) Ge(Li) детектор

Воздух, содержащий радионуклиды ИРГ и очищенный от радиоактивных аэрозолей и йода, с постоянным расходом прокачивается через сосуд Маринелли. В сосуде Маринелли концентрирование пробы не происходит, и в каждый момент времени на гамма-спектрометре измеряется значение текущей объемной активности и нуклидного состава ИРГ в выбросах ЯЭУ. Идентификацию и расчет объемной активности радионуклидов, находящихся в измерительной емкости, проводят с помощью специального программного обеспечения. Для этого используют измеренные скорости счета в пиках полного поглощения и градуировочную характеристику спектрометра.

Нижний предел измерения объемной активности нуклидов составляет  $0,1 \text{ Бк/м}^3$ . Верхний предел измеряемых по данному методу объемных активностей гамма-излучающих нуклидов из состава ИРГ (Ag-41, изотопы Xe и Kr) —  $10^5 \text{ Бк/м}^3$ . Энергетический диапазон регистрации гамма-излучения радионуклидов составляет от 80 до 1300 кэВ. Расширенная неопределенность (при доверительной вероятности  $P=0,95$ ) расчета объемной активности нуклидов не превышает 60 %.

Для калибровки спектрометра контроля ИРГ необходимо использовать образцовую насыпную меру удельной активности в виде гранул (имитатор газа) на основе радионуклидов Am-241, Co-60, Cs-137, Eu-152 и Ba-133 с насыпной плотностью  $0,01...0,04 \text{ г/см}^3$  и удельной активностью 40 Бк/кг для каждого радионуклида. Насыпным источником заполняется сосуд Маринелли. Таким образом, геометрия калибровки полностью совпадает с геометрией измерений.

Одно из основных условий предлагаемого оперативного непрерывного контроля выбросов ИРГ, радиоактивных аэрозолей и йода — обеспечение цикличности гамма-спектрометрических измерений. Для того, чтобы обеспечить цикличность работы спектрометрического комплекса без участия оператора в программе обработки гамма-спектров реализован режим работы «суточный цикл». В данном режиме перед началом работы оператор вводит необходимые параметры (значения расхода воздуха в вентиляционной системе, расхода воздуха в линии пробоотбора, значение объема сосуда Маринелли и т. д.) и далее спектрометр работает в автоматическом режиме.

В программе обработки спектров дополнительно реализована функция оценки текущей активности контролируемых нуклидов. Оператор может оценить активность любого контролируемого нуклида, не прерывая цикл измерений.

Важным параметром при выполнении измерений выбросов ИРГ, радиоактивных аэрозолей и йода по разработанному гамма-спектрометрическому методу является оптимальная длительность одного цикла измерений, при которой соблюдается баланс между оперативностью контроля и представительностью результатов измерений.

Время экспозиции составляет 2 ч. При этой длительности цикла обеспечивается необходимая статистика даже при невысокой активности выбро-

сов. При меньшем времени экспозиции увеличивается порог минимальной детектируемой активности. Увеличение длительности одного шага неоправданно, так как уменьшается оперативность контроля и хуже просматривается динамика выбросов.

Установленное время экспозиции не является окончательным и может быть пересмотрено при улучшении характеристик тракта, таких как эффективность, энергетическое разрешение.

По окончании каждого цикла набранный спектр обрабатывается, формируется отчет за цикл. По окончании суточного цикла формируется суточный отчет.

Предложенный гамма-спектрометрический метод измерений активности и нуклидного состава инертных радиоактивных газов, радиоактивных аэрозолей и йода внедрен на Реакторном заводе ФГУП «Сибирский химический комбинат» и оформлен в виде аналитических методик выполнения измерений: «Контроль активности гамма-излучающих радиоактивных инертных газов в газоаэрозольных выбросах РЗ СХК» и «Контроль активности аэрозолей и йода в выбросах РЗ СХК». Методики выполнения измерений метрологически аттестованы и согласованы с Госстандартом России ЦМИИ ФГУП «ВНИИФТРИ».

### Заключение

Создан автоматизированный комплекс оперативного контроля активности газозооных выбросов ЯЭУ гамма-спектрометрическим методом на основе полупроводникового детектора, оснащенный соответствующим методическим и метрологическим обеспечением и прошедший опытную эксплуатацию на Реакторном заводе ФГУП СХК.

Комплекс позволяет квазинепрерывно, с высоким разрешением фиксировать, рассчитывать и анализировать уровень активности всех радионуклидов из состава газоаэрозольных выбросов ЯЭУ. Нижний предел измерения активности радионуклидов составляет  $0,1 \text{ Бк/м}^3$ , верхний предел измеряемых объемных активностей радионуклидов из состава ИРГ (Ag-41, изотопы Xe и Kr) —  $10^5 \text{ Бк/м}^3$ .

Показания гамма-спектрометрического комплекса отражают изменения активности и нуклидного состава выбросов вследствие различных технологических операций на ЯЭУ, что позволяет оперативно контролировать состояние оборудования реакторов, в том числе целостность трубопроводов первого контура и герметичность оболочек твэлов, а также давать рекомендации по оптимизации технологического процесса.

Выполненные аппаратно-методические разработки делают возможным организовывать порядок обращения с газообразными РАО в соответствии с требованиями действующих федеральных норм и правил в области использования атомной энергии.

Разработанный комплекс может быть использован для контроля радиоактивных газоаэрозольных воздушных выбросов любого радиационно-опасного предприятия.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. НП-021-2000. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Обращение с газообразными радиоактивными отходами. Требования безопасности». — М.: Госатомнадзор России, 2000. — 10 с.
2. Панов Е.А. Практическая гамма-спектрометрия на атомных станциях. — М.: Энергоатомиздат, 1990. — 75 с.
3. Фертман Д.Е., Ризин А.И., Стась К.Н. Повышение достоверности измерений в радиометрии аэрозолей // Измерительная техника. — 1996. — № 12. — С. 23–30.
4. Гиллярович Э.Л., Грязнов А.Н., Инихов А.Г., Костылева Ю.Г., Мысев И.П., Николаев А.М. Современная практика обеспечения качества измерений ионизирующих излучений. Ядерные измерительно-информационные технологии. — М.: НИЦ «СНИИП», 1997. — 35 с.
5. Одноплатный спектрометр SBS. Руководство пользователя. — М.: Группа предприятий «Грин Стар», 2005. — 27 с.

Поступила 14.12.2006 г.

УДК 535.372

## КИНЕТИЧЕСКИЕ ПАРАМЕТРЫ УРАНОВОГО СВЕЧЕНИЯ В КРИСТАЛЛАХ LiF

Л.А. Лисицына\*, В.И. Олешко, В.М. Лисицын, С.Н. Путинцева

\*Томский государственный архитектурно-строительный университет  
Томский политехнический университет  
E-mail: lisitsyn@tpu.ru

*Представлены результаты исследований с наносекундным временным разрешением кинетических параметров разгорания и затухания свечения в кристаллах LiF(U)-О при 300 К при воздействии на них лазерным импульсом энергией 3,68 эВ и импульсом электронов энергией 300 кэВ. Установлено влияние способа возбуждения на кинетические характеристики процесса разгорания свечения урана и влияние урана на кинетические характеристики свечения кислорода в кристалле.*

## 1. Введение

Благодаря тканеэквивалентности активированные кристаллы LiF широко используются для дозиметрии в радиобиологии и медицине. Несомненный интерес представляют кристаллы LiF, активированные ураном, имеющие высокий квантовый выход свечения.

Несмотря на то, что свечение урана исследуется более 150 лет, до сих пор не ясна ни природа урановых центров свечения (УЦС) в различных матрицах, ни механизм возбуждения свечения урана, ни роль кислорода в процессе его возбуждения. УЦС по [1–4] представляют собой комплекс  $(\text{UO}_2\text{F})^0$ , высокая эффективность создания которого обусловлена его зарядовой нейтральностью. Предполагается, что дискретная структура спектра свечения обусловлена излучательными переходами различной мультипольности на общую систему колебательных уровней основного состояния [1, 3–5].

Альтернативная точка зрения [6–8] заключается в предположении об одновременном присутствии в спектрах свечения излучательных переходов, осуществляемых в УЦС различного состава:  $(\text{UO}_2\text{F}_4)^{3+}$ ,  $(\text{UO}_2\text{F})^0$ ,  $(\text{UO}_4\text{F}_2)^{1+}$ ,  $(\text{UO}_6)^{1-}$ , отличающихся количеством ионов кислорода, замесивших ионы F<sup>–</sup> в экваториальной плоскости линейного уранового комплекса  $(\text{UO}_2)^{2+}$ . (Величина и знак заряда УЦС определяются относительно заряда замещенной группы LiF<sub>6</sub>).

При всем многообразии методов исследований ураносодержащих кристаллов использование спек-

троскопии с высоким временным разрешением дает возможность измерить и сопоставить возбуждаемые излучательные переходы по кинетическим параметрам как на этапе разгорания свечения, так и на этапе его затухания. Наличие такой информации позволит провести сравнительный анализ многочисленных излучательных переходов по кинетическим параметрам процессов свечения.

В настоящей работе с временным разрешением 30 нс исследовалась импульсная катодолюминесценция (ИКЛ) и импульсная фотолюминесценция (ИФЛ) кристаллов LiF-O и LiF(U)-O в спектральном диапазоне 4,0...2,0 эВ и временном интервале  $3 \cdot 10^{-8}$ ... $10^{-1}$  с после окончания действия импульса возбуждения при 300 К. ИКЛ возбуждалась импульсом электронов (ИЭ) с энергией 300 кэВ и флюенсом в импульсе ( $P$ ) в диапазоне  $10^{11}$ ... $10^{13}$  см<sup>–2</sup>. Длительность ИЭ – 20 нс. Толщина исследуемых кристаллов не превышала 0,3 мм, глубина проникновения электронов в кристалл LiF – 0,26 мм. Площадь кристаллов – около 10 мм<sup>2</sup>.

ИФЛ возбуждалась импульсом азотного лазера, излучение которого (3,68 эВ) попадает в одну из полос активаторного поглощения ураносодержащих кристаллов. Длительность импульса возбуждения – 20 нс. Мощность – около 10 мкВт, сечение пучка около 1 см<sup>2</sup>.

Исследовались кристаллы LiF-O и LiF(U)-O – кислородосодержащие кристаллы LiF, не активированные и активированные ураном. Концентрация урана по шихте – 0,01 вес. %. Свечение воз-