

А. С. Казимиров¹, А. Г. Исаев¹, С. М. Иевлев¹, Е. В. Чорный¹, В. Р. Евсеев²,
А. Г. Третьяк³, В. М. Антропов³, А. И. Хабрика³

¹ ООО Научно-производственное предприятие «АтомКомплексПрибор», Киев

² Национальный научный центр «Институт метрологии», Харьков

³ ГСП «Централизованное предприятие по обращению с радиоактивными отходами», Чернобыль

КОСВЕННЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ИЗОТОПОВ ПЛУТОНИЯ В ОБРАЗЦАХ ПОЧВ ЗОНЫ ОТЧУЖДЕНИЯ ЧАЭС

Описана методика косвенного определения удельной активности радиоизотопов ²³⁸Pu и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в пробах объектов окружающей среды зоны отчуждения ЧАЭС на основании измеренных значений удельной активности реперных радионуклидов ⁹⁰Sr и ¹⁵⁴Eu и установленных для реперных радионуклидов весовых коэффициентов. Удельные активности реперных радионуклидов определяют с помощью сцинтилляционных спектрометров энергий бета-гамма-излучений типа СЕБ-01 и СЕГ-001 с программным обеспечением AkWin производства НПП «АтомКомплексПрибор (Киев). Весовые коэффициенты определяются при калибровочных измерениях с применением радиохимических процедур по определению плутония. Диапазон косвенных измерений удельной активности радиоизотопов ²³⁸Pu и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu находится в пределах от 1 Бк/кг до 30000 Бк/кг. Методика аттестована в установленном порядке ННЦ «Институт метрологии» (Харьков).

Ключевые слова:

Косвенные измерения, удельная активность, плутоний, радиоактивные материалы, радиоактивные отходы, спектрометр, подготовка образцов, бета-активность, гамма-активность.

Метод измерения

Метод косвенного определения содержания радиоизотопов ²³⁸Pu и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в пробах объектов окружающей среды зоны отчуждения ЧАЭС основан на предварительных спектрометрических измерениях удельных активностей радионуклидов ⁹⁰Sr, ¹⁵⁴Eu, радиохимических измерениях содержания изотопов плутония и последующем вычислении содержания изотопов плутония по формулам с использованием весовых коэффициентов.

Формула для косвенного определения удельных активностей изотопов плутония имеет следующий вид [2]:

$$\tilde{A} = \sum_{i=1}^m \tilde{b}_i \cdot a_i, \quad (1)$$

где $\tilde{A} = A(^{238}\text{Pu})$ либо $A(^{239+240}\text{Pu})$ – расчетные удельные активности изотопов ²³⁸Pu и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в пробе соответственно, Бк/кг; m – число аргументов функции (1), количество экспериментально определяемых реперных радионуклидов, $m = 2$; a_i – удельные активности (⁹⁰Sr, ¹⁵⁴Eu), Бк/кг; \tilde{b}_i – весовые коэффициенты линейного разложения по удельным активностям реперных радионуклидов.

Весовые коэффициенты определяются методом наименьших квадратов на основании данных об измеренных удельных активностях радионуклидов и радиоизотопов плутония в типизированных радиоактивных материалах. Измерение содержания изотопов плутония осуществляется на альфа-спектрометре (или другом спектрометрическом оборудовании) с применением процедур радиохимического отделения.

© А. С. Казимиров, А. Г. Исаев, С. М. Иевлев, Е. В. Чорный,
В. Р. Евсеев, А. Г. Третьяк, В. М. Антропов, А. И. Хабрика, 2012

Выбор радионуклидов

Принимая во внимание информацию о наработке трансурановых элементов и продуктов активации в процессе работы реактора [1], в качестве радионуклидов использовались ^{90}Sr и ^{154}Eu . Этот выбор был проверен рядом оценочных расчетов с использованием в качестве радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu и ^{241}Am в различных сочетаниях. Выбор исходных радионуклидов определялся как литературными данными, так и практическими возможностями сцинтилляционных спектрометров. В связи со значительным фоном в низкоэнергетической части спектра гамма-излучения пришлось отказаться от использования в качестве одного из радионуклидов ^{241}Am , широко применяемого для косвенных измерений. Проведенные оценки на основе реальных результатов измерений спектрометрами типа СЕБ-01 и СЕГ-001 показали наилучшие результаты именно для ^{90}Sr и ^{154}Eu . Добавление в список РН ^{137}Cs ухудшает результаты. Вероятно, этот нуклид сильно мигрировал в течение 25 лет после аварии на ЧАЭС и слабо связан с топливной матрицей, в которой содержатся изотопы плутония.

Для калибровки использовались значения активности радионуклидов, полученные с помощью спектрометров типа СЕГ-001 и СЕБ-01 (для альфа-излучателей использованы данные радиохимического определения).

Подготовка образцов радиоактивных материалов

Счетные образцы готовились из представительной пробы почвы.

Из отобранной пробы удаляли органические вещества и влагу путем сушки при температуре от 105 до 110 °С до воздушно-сухого состояния. Высушенную пробу тщательно перемешивали и делили на несколько частей (аликвот), из которых затем готовились счетные образцы для спектрометрических измерений.

Измерения удельной активности радионуклидов

Предварительно спектрометры были прокалиброваны и метрологически аттестованы с использованием стандартных объемных образцов для геометрии «дента» закрытыми крышками с окнами для обеспечения выполнения измерений бета – излучения. Существенным моментом является то, что после пробоподготовки один и тот же образец измерялся как на бета-, так на гамма-активность. Наличие в крышке «дента» отверстия, закрытого тонкой пленкой, позволяло сократить количество операций по обращению с образцом.

Результаты и обсуждение

Проверка методики проводилась на 23 образцах почвы. Активность изотопов ^{90}Sr и ^{154}Eu измерялась спектрометрами СЕГ-001 и СЕБ-01. Активность плутония определялась радиохимическим методом и сравнивалась с полученной с помощью косвенных измерений. Для проведения проверки методики были отобраны образцы, по возможности представляющие весь диапазон возможных концентраций изотопов плутония.

На рис. 1 в логарифмическом масштабе показано сравнение результатов косвенного определения ^{238}Pu по двум радионуклидам с экспериментальными данными. Среднее отклонение экспериментального значения от расчетного составляет 29 %, максимальное отклонения – 67 %.

На рис. 2 в логарифмическом масштабе показано сравнение результатов косвенного определения $^{239+240}\text{Pu}$ по двум радионуклидам с экспериментальными данными. Среднее отклонение экспериментального значения от расчетного составляет 28 %, максимальное отклонение – 51 %.

На обоих рисунках приведены погрешности косвенного определения изотопов плутония. Они составляют 20 – 30 % для доверительной вероятности 95 %.

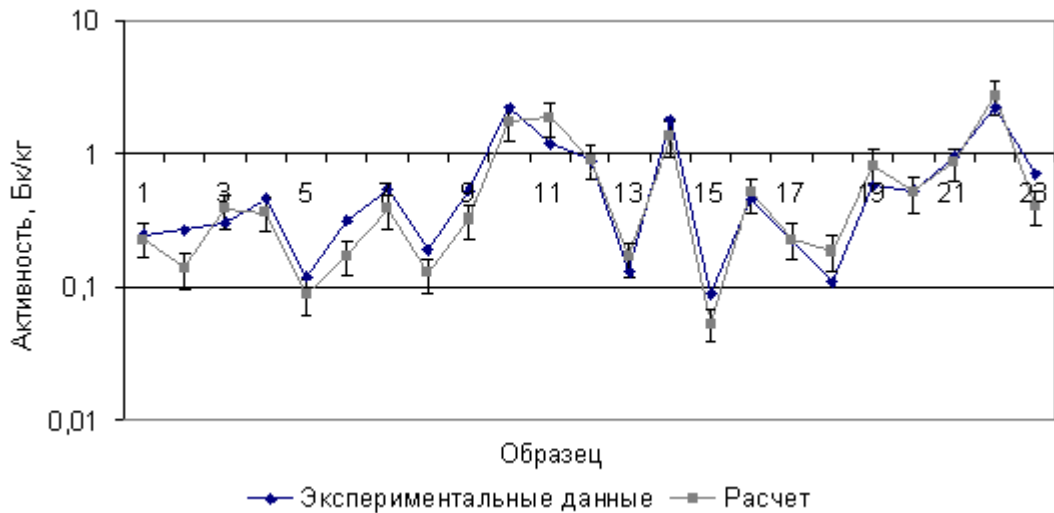


Рис. 1

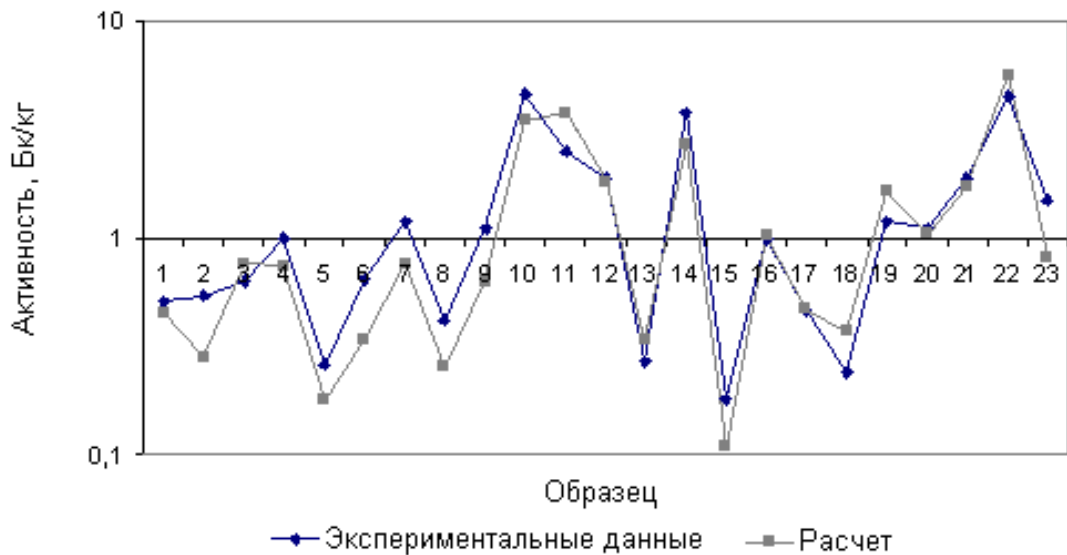


Рис.2

Полученные значения отклонений для изотопов плутония укладываются в допустимые пределы относительной погрешности определения радионуклидов согласно утвержденной МВИ 06-03/11, аттестованной ННЦ «Институт метрологии», равной 65 % для доверительной вероятности 95 %.

Разработанная методика может использоваться для классификации радиоактивных отходов зоны отчуждения и, возможно, для определения критериев приемлемости для хранения в приповерхностных хранилищах

Для определения ее применимости для освобождения от регулирующего контроля по критерию удельной альфа-активности следует провести дополнительные исследования для представительной выборки образцов с суммарной удельной альфа-активностью в диапазоне $1 \div 200$ Бк/кг.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials*. NUREG/CR – 5550 LA-UR-90-732, 1991.
2. *ГСИ. Измерения косвенные. Определение результатов измерений и оценивание их погрешностей*. МИ 2083-90. - М.: Комитет стандартизации и метрологии СССР, 1991.

**О. С. Казимиров, А. Г. Исаев, С. М. Ієвлєв, Є. В. Чорний, В. Р. Євсєєв,
А. Г. Третьяк, В. М. Антропов, А. І. Хабріка**

НЕПРЯМІ ВИМІРЮВАННЯ ВМІСТУ ІЗОТОПІВ ПЛУТОНІЯ У ЗРАЗКАХ ҐРУНТІВ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ ЧАЕС

Надано опис методики непрямого визначення питомої активності радіоізоотопів ^{238}Pu та $^{239+240}\text{Pu}$ у пробах об'єктів навколишнього середовища зони відчуження ЧАЕС на підставі значень питомої активності реперних радіонуклідів ^{90}Sr і ^{154}Eu , що були виміряні, та встановлених для реперних радіонуклідів вагових коефіцієнтів. Питомі активності реперних радіонуклідів визначаються за допомогою сцинтиляційних спектрометрів енергій бета-гамма-випромінення типу СЕБ-01 та СЕГ-001 із програмним забезпеченням AkWin виробництва НВП "АтомКомплексПрилад" (Київ). Вагові коефіцієнти визначаються при калібрувальних вимірюваннях із застосуванням радіохімічних процедур по відділенню плутонію. Діапазон непрямих вимірювань питомої активності радіоізоотопів ^{238}Pu та $^{239+240}\text{Pu}$ знаходиться в межах від 1 до 30000 Бк/кг. Методика атестована у встановленому порядку ННЦ «Інститут метрології» (Харків).

Ключові слова: непрямі вимірювання, питома активність, плутоній, радіоактивні матеріали, радіоактивні відходи, спектрометр, підготовка зразків, бета-активність, гамма-активність.

**A. S. Kasimirov, A. G. Isaev, S. M. Ievliev, E. V. Chorny, V. R. Yevseyev,
A. G. Tretiak, V. M. Antropov, A. I. Habrika**

THE INDIRECT PLUTONIUM ISOTOPES' CONTENT IN THE CHNPP RESTRICTED ZONE SOIL SAMPLES

There is presented the procedure of indirect specific activity determination of radioisotopes ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ in the samples of Chernobyl nuclear power plant exclusion zone objects and environmental based on the measured specific activity values of reference radionuclides ^{90}Sr and ^{154}Eu , and determined reference radionuclides weighting factors. Reference radionuclides specific activities are determined by scintillation spectrometers of beta-, gamma-radiation energies type SEB-01 and SEG-001 with software AkWin Production Enterprise "AtomKompleksPrylad" (Kyiv). Weighting factors are determined by calibration measurements using radiochemical procedures of plutonium determination. The indirect measurements of specific activity radioisotopes ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ range is within 1 to 30000 Bq/kg. The procedure is certified by the National Science Center "Institute of Metrology" (Kharkiv) in accordance with established procedure.

Keywords: indirect measurements, specific activity, plutonium, radioactive materials, radioactive wastes, spectrometer, preparation of the samples, beta-activity, gamma-activity.

Надійшла 28.02.2012
Received 28.02.2012