

Применение метода динамического анализа излучения низкоактивных отходов для освобождения от регулирующего контроля

Рассмотрены методологические подходы к измерению мощности излучения низкоактивных радиоактивных отходов с применением метода динамического анализа нестационарных радиационных полей. Предлагаемый метод анализа позволяет выполнить идентификацию низкоинтенсивного источника излучения в условиях повышенного фона и может быть востребован для характеристики радиоактивных отходов с целью их освобождения от регулирующего контроля.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, регулирующий контроль, освобождение, динамический анализ.

Ю. О. Ольховик, В. М. Буртняк, Ю. Л. Забулонов, И. О. Золкин

Застосування методу динамічного аналізу випромінювання низькоактивних відходів для звільнення від регулюючого контролю

Розглянуто методологічні підходи до вимірювання потужності випромінювання низькоактивних радіоактивних відходів із застосуванням методу динамічного аналізу нестационарних радіаційних полів. Метод динамічного аналізу дає змогу ідентифікувати низькоінтенсивне джерело випромінювання в умовах підвищеного фону і може бути застосований для характеристики радіоактивних відходів з метою їх звільнення від регулюючого контролю.

Ключові слова: радіоактивні відходи, регулюючий контроль, звільнення, динамічний аналіз.

В Украине на четырех действующих атомных электростанциях эксплуатируются 15 ядерных энергоблоков общей мощностью 13,835 ГВт. Производство электроэнергии на АЭС сопровождается образованием радиоактивных отходов (РАО) различной активности как в ходе основного технологического процесса, так и при осуществлении регламентных и ремонтных операций. Общее количество твердых радиоактивных отходов (ТРО) на действующих украинских АЭС по состоянию на конец 2012 г. составляет 38000 м³. При этом распределение ТРО крайне неравномерно — низкоактивные отходы (НАО) составляют почти 95 % накопленных ТРО [1].

Одна из причин накопления больших объемов ТРО в хранилищах АЭС — отсутствие аппаратного и методического обеспечения процедуры освобождения радиоактивных материалов от регулирующего контроля. Согласно практике обращения с отходами на АЭС, любые материалы из зоны строгого режима автоматически считаются радиоактивными отходами и помещаются в соответствующие ячейки хранилищ. Таким образом, можно *a priori* утверждать о наличии в низкоактивных отходах (НАО) значительных объемов материалов, которые фактически не являются радиоактивными и которые при выполнении соответствующих процедур могли бы быть изъяты из состава РАО и освобождены от регулирующего контроля.

Критерии, согласно которым материалы могут быть классифицированы как радиоактивные, приведены в разделе 15 Основных санитарных правил (ОСПУ) [2]. Радиоактивные материалы определены как «любые материалы, включая радиоактивные отходы, удельная или суммарная активность радионуклидов в которых превышает граничные значения, установленные нормами, правилами и стандартами по ядерной и радиационной безопасности» [3].

В гигиенических нормативах «Уровни освобождения радиоактивных материалов от регулирующего контроля» [4] радиоактивные отходы определены как отдельная форма радиоактивных материалов и сказано, что на них распространяются все условия и критерии освобождения от регулирующего контроля. В указанном документе детализированы требования и условия относительно полного освобождения радиоактивных материалов от регулирующего контроля. Согласно [4], «материалы, отвечающие условиям освобождения от регулирующего контроля, в дальнейшем не должны рассматриваться как радиоактивные».

Из сравнения действующих в Украине и в ЕС уровней освобождения от регулирующего контроля (табл. 1) следует, что установленные в Украине уровни освобождения носят крайне консервативный характер; их практическое применение в процессах сортировки и кондиционирования требует использования чувствительной и дорогостоящей аппаратуры, которой АЭС в настоящее время не обладают.

Установленные [4] уровни освобождения распространяются на те радиоактивные материалы, включая ТРО, которые образуются при производстве ядерной энергии, в том числе в результате деятельности в рамках какой-либо части ядерно-топливного цикла (ЯТЦ), при эксплуатации и снятии с эксплуатации ядерных установок и объектов по обращению с РАО.

Основываясь на практическом опыте характеристики низкоактивных ТРО, с учетом действующих в ЕС уровней освобождения можно предположить, что объем накопленных на украинских АЭС низкоактивных ТРО завышен как минимум вдвое ввиду включения в них промышленных нерадиоактивных отходов. Для зарубежных АЭС

Таблица 1. Уровни освобождения от регулирующего контроля, Бк/г

Украина			Евросоюз			МАГАТЭ, стандарт RS-G-1.7
Радионуклид	Уровень изъятия	Уровень освобождения	Публикация RP 89 (уровень освобождения для металлов)	Публикация RP 113 (уровень освобождения для строительных материалов)	Публикация RP 112 (общий уровень освобождения)	
Mn-54	10	0,1	1	0,1	1	0,1
Co-58	10	1	1	0,1	1	1
Co-60	10	0,1	1	0,1	0,1	0,1
Ag-110m	10	0,1	1	0,1	0,1	0,1
Cs-134	10	0,1	1	0,1	0,1	0,1
Cs-137	10	0,1	1	1	1	0,1
Sr-90	10	1	10	1	1	1

с водо-водяными энергетическими реакторами (ВВЭР) российских проектов, объем образовавшихся твердых отходов по категориям оценивается приблизительно следующим образом, % [5]: промышленные отходы — 50; очень низкоактивные отходы — 25; низкоактивные отходы — 18; среднеактивные отходы — 8; высокоактивные отходы — 0,5.

Приведенные данные свидетельствуют о наличии в общем объеме несортированных радиоактивных материалов, классифицируемых как НАО, огромного количества материалов (как минимум 50 %), которые фактически радиоактивными не являются и могли бы быть изъяты из общего объема накопленных ТРО по результатам измерений удельной активности.

Освобождение отходов от регулирующего контроля является ключевой деятельностью, которая принципиальным образом влияет на эффективность обращения с РАО. При нормальной эксплуатации от регулирующего контроля могут быть освобождены 50–60 % ТРО, образующихся в зоне строгого режима, что приведет к значительному снижению затрат на кондиционирование ТРО и их последующее захоронение.

Общие требования и критерии освобождения практической деятельности или источников ионизирующего излучения в рамках практической деятельности от регулирующего контроля (РК) установлены в разделе 9 НРБУ-97 [6]. Указано, что освобождение осуществляется регулирующими органами (РО), если выполняются критерии освобождения или если источники соответствуют тем уровням освобождения, которые определены РО на основе установленных регулирующими органами критериев освобождения.

Освобождение радиоактивных материалов от регулирующего контроля путем прекращения радиационного контроля может осуществляться на любой стадии технологического цикла: непосредственно после образования радиоактивных материалов; после их выдержки с целью уменьшения активности; до или после дезактивации и др. Таким образом, возможно применение процедуры освобождения от регулирующего контроля твердых низкоактивных отходов, которые в настоящее время находятся в хранилищах АЭС и будут извлекаться из ячеек для кондиционирования. Помимо изначально нерадиоактивных материалов, попавших в ячейки хранилищ ТРО, значительная часть НАО вследствие длительного хранения и радиоактивного распада нуклидов может быть освобождена от регулирующего контроля и классифицирована как

промышленные отходы, что снизит нагрузку на установки кондиционирования и продлит их ресурс.

Техническая возможность охарактеризовать весь объем твердых низкоактивных отходов и провести их классификацию для выбора безопасного и экономически эффективного варианта обращения основана на применении гамма-спектрометрического комплекса на основе полупроводниковых ОЧГ-детекторов с целью достоверного определения нуклидного состава отходов, измерения удельной и общей активности радионуклидов на уровнях ниже 100 Бк/кг. Такая задача требует дорогостоящего инструментального и методического обеспечения. Кроме того, эксплуатирующая организация НАЭК «Энергоатом» не готова к затратам, связанным с внедрением указанного оборудования для снятия ТРО с регулирующего контроля, поскольку действующая в Украине система налогообложения на обращение с РАО не предусматривает оплату со стороны АЭС за захоронение кондиционированных РАО и, соответственно, отсутствует заинтересованность к уменьшению объемов ТРО, передаваемых на захоронение.

Однако вместо проведения прямых измерений эксплуатирующая организация по согласованию с Госатомрегулированием и Государственной санитарно-эпидемиологической службой может установить производные уровни от указанных в [3, 4] дозовых критериев или уровней освобождения (например, уровни мощности дозы внешнего излучения) с целью обоснования соответствия материалов, образовавшихся в рамках практической деятельности, которая подпадала под регулирующий контроль, требованиям освобождения от регулирующего контроля путем прекращения (*clearance*).

Производные уровни освобождения определяются эксплуатирующей организацией для конкретных материалов и исходя из конкретных условий. При обосновании применения таких производных уровней должно быть доказано, что не будут превышены значения соответствующих уровней освобождения и дозовые критерии освобождения. При измерениях используют стандарт предприятия, отраслевую или межотраслевую методику, которая должна быть предварительно согласована регулирующим органом.

ГП НАЭК «Энергоатом» разработан стандарт «Характеризація потенційно радіоактивних матеріалів АЕС для обґрунтування звільнення від регулюючого контролю. Методичні вказівки» СОУ НАЕК 031:2013 [7], предназначенный для характеристики радиоактивных материалов,

возникших при нормальной эксплуатации АЭС. При этом потенциально чистыми считаются материалы, мощность экспозиционной дозы (МЭД) которых не превышает установленную ОСПУ-2005 нижнюю границу низкоактивных отходов: $MЭД_{HAO} = 1 \text{ мкЗв/ч}$.

Основными стадиями характеристики согласно [7] являются измерения уровня МЭД фона гамма-излучения, а также контроль МЭД и неоднородности распределения активности в потенциально радиоактивных материалах. Критерием допустимости освобождения порции потенциально радиоактивных материалов (прм) от регулирующего контроля является не превышение $MЭД_{прм}$ значений $MЭД_{фон}$ более чем на $0,03 \text{ мкЗв/ч}$.

Проведенная лабораторией внешнего радиационного контроля цеха радиационной безопасности Ровенской АЭС практическая проверка предлагаемой СОУ НАЕК 031:2013 методологии показала ее несостоятельность: при фактическом содержании Cs-137 в образце имитатора на уровне 122 Бк/кг (т. е. выше уровня освобождения) мощность дозы от бочки с имитатором оказалась *меньше* мощности дозы от фона ($0,096$ и $0,099 \text{ мкЗв/ч}$ соответственно), что объясняется эффектом самопоглощения излучения. Таким образом, прямые измерения МЭД, основанные на измерениях интенсивности излучения — скорости счета импульсов, — не могут обеспечить приемлемый результат для получения надежного обоснования освобождения радиоактивных материалов от регулирующего контроля. В то же время эти результаты свидетельствуют о наличии источника излучения, вносящего свой вклад в фиксированное прибором количество импульсов.

Для выявления низкоактивных источников радиоактивного излучения в условиях повышенного фона предлагается применить метод динамического анализа нестационарных радиационных полей, разработанный в Институте геохимии окружающей среды НАН Украины [8, 9, 10].

Рассмотрим предлагаемый подход детально. Интенсивность фона можно измерить с высокой точностью, набирая достаточную статистику (рис. 1).

В качестве примера приведены данные измерения фона дозиметр-радиометром МКС-Т1125А лабораторией внешнего радиационного контроля цеха радиационной безопасности РАЭС. Для каждой точки контроля использовалось 100 измерений со статистической погрешностью менее 10 %. Интервал сохранения результатов между точками измерения — 2 секунды.

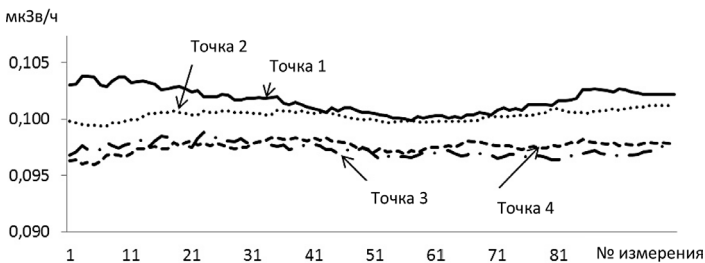


Рис. 1. Мощность дозы, мкЗв/ч, в четырех точках на месте проведения измерений

В основу метода положен подход, основанный на амплитудно-временном анализе радиоактивного излучения. Измеряется и анализируется не только интенсивность излучения, определяемая числом зарегистрированных импульсов излучения в заданном временном интервале,

но и время t_i появления каждого импульса [8, 9]. В результате проведенных измерений строятся гистограммы распределения амплитуд и распределения времен зарегистрированных импульсов.

Математически задача выявления и идентификации источников радиоактивного излучения интенсивностью на уровне фона заключается в следующем. Пусть за время непрерывного наблюдения $t \in [0, T]$ источника радиоактивного излучения мы регистрируем n радиоактивных частиц (их амплитуд и времени появления). Результат измерений образует выборку $x = (x_1, x_2, \dots, x_n)$ из генеральной совокупности, причем распределение каждого x_i описывается распределением Пуассона. Значения выборки x находятся между фиксированными значениями X_0 и X_m . Вероятность попадания измеряемой величины x в интервал от X_0 до X_m описывается функцией распределения

$$P_j(x_i) = \int_{X_{j-1}}^{X_j} f(x_i) dx_i, \quad (1)$$

где функция $f(x_i) = \frac{N(x_i)}{N_0}$ показывает, какая часть зарегистрированных частиц энергии x_i попадает в интервал $[X_{i-1}, X_i]$, $i = \overline{1, m}$, или вероятность того, что зарегистрированная частица имеет энергию x_i ; $N(x_i)$ — количество частиц с энергией x_i ; $\sum_{i=1}^m N(x_i) = N_0$ — число всех частиц, которые попали в интервал $[X_0, X_m]$.

Для достоверного выявления источника радиоактивного излучения необходимо различить на спектре фона сигнал или спектр, принадлежащий источнику излучения, т. е. идентифицировать момент появления источника радиоактивного излучения на основе анализа спектров (фона и источника радиоактивного излучения), полученных в результате измерения, или, иными словами, на основе статистической информации выявить скачкообразное изменение спектра при незначительных внешних воздействиях.

Для сравнения амплитудно-временных гистограмм, полученных в результате применения динамического метода анализа низкоинтенсивных источников, применим информационный подход, согласно которому из известных выражений К. Шеннона [10] вычисляем значение критерия сравнения

$$A = 1 - H/H_0, \quad (2)$$

где $H_0 = \log n$ — максимальная энтропия массивов данных; $H = \sum_{i=1}^n (P_i \cdot \log P_i) = \sum_{i=1}^n \left(\frac{N_i}{N_0} \cdot \log \frac{N_i}{N_0} \right)$ — текущая энтропия массивов данных; P_i — вероятность принятия системой измерения i -го состояния; n — число классов гистограммы; N_i — число попаданий радиоактивных частиц в данный класс; N_0 — число наблюдений; $0 \leq A \leq 1$.

Значение H будет равняться нулю, если любое из значений P_i равняется 1, а все другие — нулю, т. е. неопределенность в информации отсутствует. В этом случае все значения N_i попадают в один класс i : $H = 1 \cdot \log(1) = 0$. Поскольку общее количество классов гистограммы — величина постоянная и равная M , то $H_0 = \text{const}$. Тогда $A = 1 - 0/\log M = 1$. Когда все значения N_0 попадают в один

Рис. 2. Тренд параметра A при измерении фонового излучения

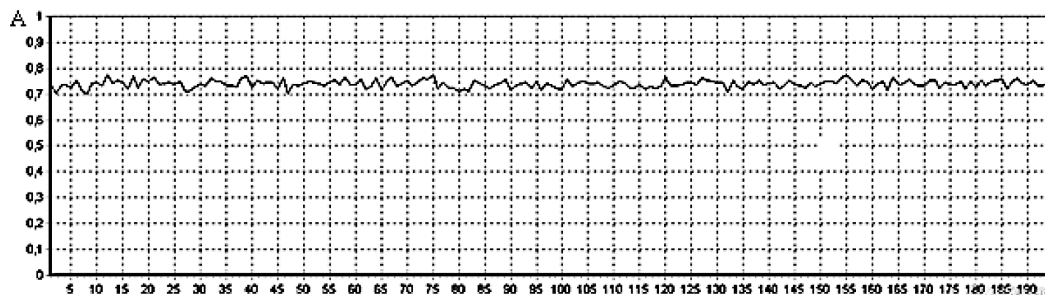


Рис. 3. Тренд параметра A при двухразовом внесении в поле зрения детектора источника излучения на 5 с

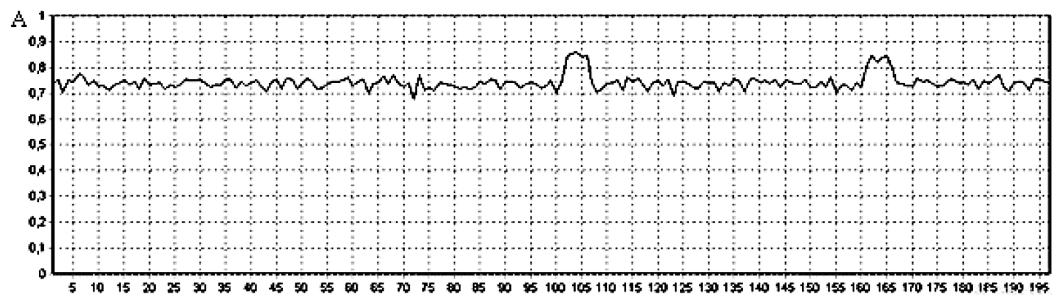


Рис. 4. Тренд параметра A при внесении в поле зрения детектора источника излучения на 20 с

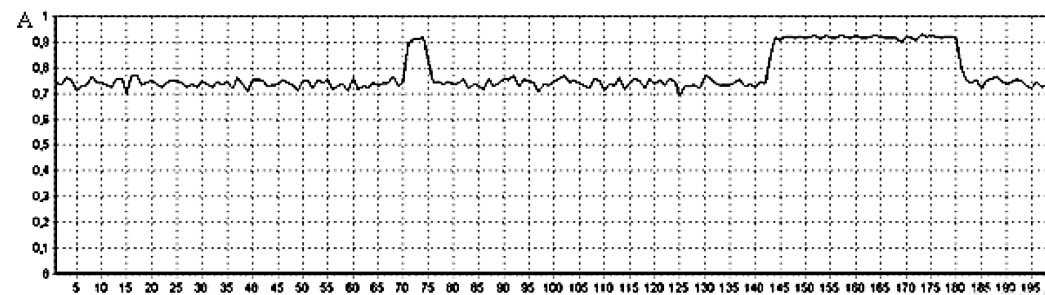
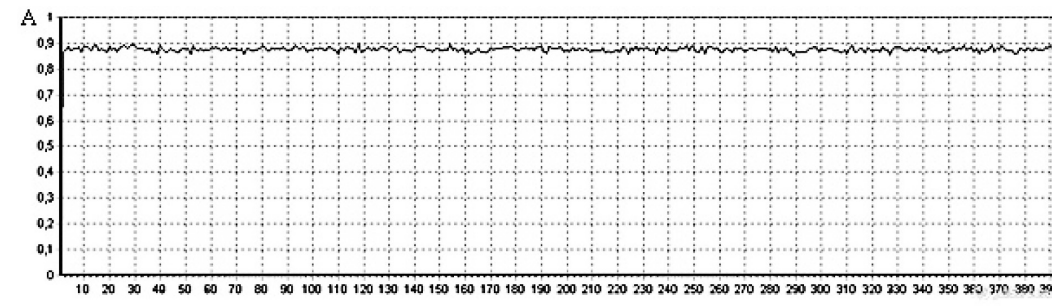


Рис. 5. Тренд параметра A при постоянном нахождении в поле зрения детектора источника излучения



класс, гистограмма выглядит крайне сжатой. Таким образом, система измерения будет полностью детерминированной и обладать сильной жесткостью.

Рассмотрим другой предельный случай, когда гистограмма равномерно распределена по всем классам. В этом случае энтропия H принимает наибольшее значение (значения P_i равны между собой) и неопределенность в информации будет максимальной:

$$N_i = m; M = N_0 / m;$$

$$H = (M-1 / M) \cdot \log (1 / M) = \log M;$$

$$A = 1 - \log M / \log M = 0.$$

Система измерения становится полностью вероятностной, со слабой жесткостью, и поведение ее слабо предсказуемо.

При исследовании предложенного метода проведен ряд измерительных экспериментов с помощью спектрометра со сцинтилляционным детектором типа БДЕГ-63. Полученные в результате измерений гистограммы в моменты времени t_i и t_i+1 сравнивались по критерию (2). Тренды значений критерия приведены на рис. 2–5, обобщенные результаты измерений — в табл. 2. При эксперименте № 1 вычислялся критерий для измеренного спектра фона (рис. 2); при эксперименте № 2 — критерий при кратковременном (менее 5 с) внесении на 103-й и 163-й секундах в поле зрения детектора тестового источника гамма-излучения (рис. 3); при эксперименте № 3 — критерий при кратковременном и более длительном (более 10 с) внесении тестового источника гамма-излучения (рис. 4). Данные эксперимента № 4 (в поле зрения детектора постоянно присутствует источник гамма-излучения) приведены на рис. 5.

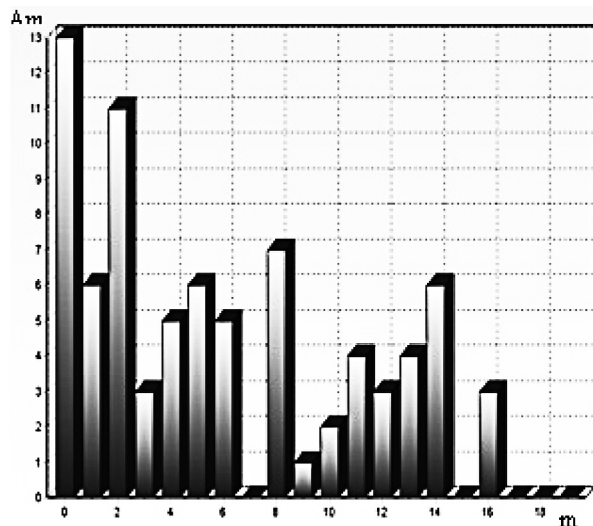


Рис. 6. Модальный интервал и амплитуда моды для гистограмм фона:
 $m = 0$ — модальный интервал (номер столбца гистограммы);
 $A_m = 13$ — амплитуда моды

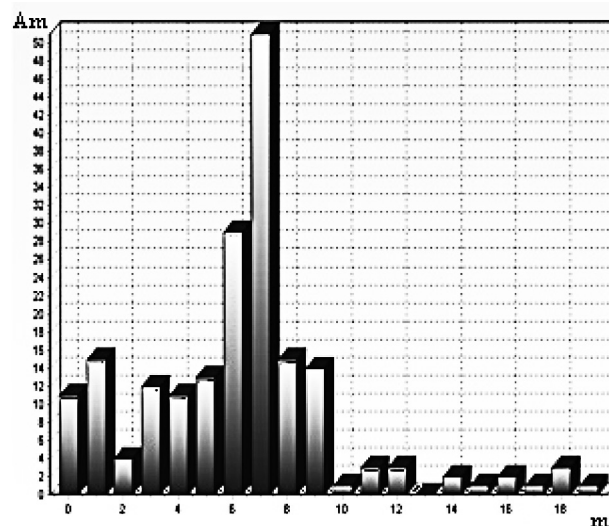


Рис. 7. Модальный интервал и амплитуда моды для гистограмм при наличии источника излучения:
 $m = 7$; $A_m = 59$

Таблица 2. Средние значения критерия за время проведения эксперимента

Эксперимент	За весь интервал	Интервал фонового излучения	Интервал внесения источника
1	$0,739 \pm 0,015$	—	—
2	$0,742 \pm 0,028$	$0,738 \pm 0,016$	$0,812 \pm 0,046$
3	$0,778 \pm 0,073$	$0,738 \pm 0,016$	$0,918 \pm 0,006$
4	$0,918 \pm 0,006$	—	—

При вычислении критерия (2) сравнивались гистограммы энергий радиоактивного излучения с одинаковыми площадями (значения получены за время измерения 1 с) и при постоянном количестве классов гистограммы, равном 5. Величина A_i рассчитывалась для каждого момента времени измерения t_i .

На основании полученных данных можно сделать следующее заключение:

- смещение модальных интервалов, изменение их амплитуд и увеличение размаха является признаком внесения источника радиоактивного излучения в поле зрения детектора (рис. 6 и 7);

- время, в течение которого наблюдается увеличение среднего значения A_i , может служить показателем продолжительности нахождения источника в поле зрения детектора.

Результаты моделирования показали, что критерий A есть чувствительным количественным показателем степени отличия гистограмм, полученных методом динамического анализа, от их предыдущего значения. Согласно экспериментальным данным (табл. 2), при увеличении времени нахождения источника радиоактивного излучения в поле зрения детектора повышалась достоверность обнаружения источника излучения, что позволяет снизить время экспозиции контролируемого образца для выявления в нем радиоактивных источников в условиях высокого фона.

Таким образом, применяя разработанную технологию динамического анализа и информационного метода сравнения гистограмм, возникает возможность уверенной идентификации низкоинтенсивного источника излучения в условиях повышенного фона с использованием несложной и недорогой аппаратуры, без применения ОЧГ-детекторов и оборудования специальных низкофоновых лабораторий. Калибровка установки с использованием объемных модельных излучателей в соответствующей геометрии с активностью, отвечающей установленным уровням [4], позволит снять с регулирующего контроля значительные объемы радиоактивных материалов, идентифицируемых ныне как низкоактивные радиоактивные отходы, и тем самым снизить затраты АЭС на кондиционирование и захоронение низкоактивных ТРО.

Список использованной литературы

1. Поводження з радіоактивними відходами при експлуатації АЕС ДП НАЕК «Енергоатом» (станом на 31.12.2012). [Електронний ресурс]. — Режим доступу: http://www.energoatom.kiev.ua/atachs/Report_RW_2012.pdf. — 61 с.
2. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности Украины: Государственные санитарные правила 6.177–2005–09–02 (ОСПУ-2005). — Утв. приказом МОЗ Украины от 02.02.2005 № 54. — К., 2005. — 62 с.
3. Порядок освобождения радиоактивных материалов от регулирующего контроля в рамках практической деятельности (НП 306.4.159–2010). — Утв. приказом Госатомрегулирования Украины от 01.07.2010 № 84. — К., 2010. — 7 с.
4. Гигиенические нормативы: Уровни освобождения радиоактивных материалов от регулирующего контроля. — Утв. Постановлением Главного гос. санитарного врача Украины от 30.06.2010 № 22. — К., 2010. — 6 с.
5. Характеризация радиоактивных отходов: задачи и практика. [Электронный ресурс]. — Режим доступа: // <http://www.atomic-energy.ru/technology/40911>.
6. Державні гігієнічні нормативи: Норми радіаційної безпеки України (НРБУ-97). — Затвердж. постановою Головного держ. санітарного лікаря України від 01.12.1997 № 62. — К., 1997. — 121 с.

7. Характеризація потенційно радіоактивних матеріалів АЕС для обґрунтування звільнення від регулюючого контролю. Методичні вказівки : СОУ НАЕК 031:2013. — Затвердж. наказом ДП НАЕК «Енергоатом» від 16.07.2013 № 623. — К., 2013. — 27 с.

8. Основные положения метода динамического анализа нестационарных радиационных полей / Ю. Л. Забулонов, Г. В. Лисиченко, Ю. М. Коростиль, Н. В. Макарец // 36. наук. праць Інституту проблем моделювання в енергетиці НАН України. — 2005. — Вип. 29 — С. 88—93.

9. *Забулонов Ю. Л.* Теоретические обоснование метода динамического анализа для выявления высоко- и низкоинтенсивных источников радиоактивного излучения / Ю. Л. Забулонов, Г. В. Лисиченко, Н. В. Макарец // 36. наук. праць Інституту проблем моделювання в енергетиці НАН України. — 2005. — Вип. 29. — С. 64—73.

10. *Шеннон К.* Работы по теории информации и кибернетике / К. Шеннон. — М. : Изд-во иностр. литературы, 1963. — 830 с.

References

1. Radioactive waste management in the operation of nuclear power plants "Energoatom" (as of 31/12/2012) // http://www.energoatom.kiev.ua/atachs/Report_RW_2012.pdf. — 61 p. (Ukr)

2. Basic Sanitary Rules for Radiation Safety of Ukraine. State sanitary rules 6.177–2005–09–02 (OSPU 2005). — Approved by the Order of Ministry of Health of Ukraine from 02.02.2005 № 54. — Kyiv, 2005. — 62 p.(Ukr)

3. Procedure for the release of radioactive materials from regulatory control in the operation (NP 306.4.159–2010). — Approved by Order SNRC of Ukraine from 01.07.2010 № 84. — Kyiv, 2010. — 7 p. (Ukr)

4. Hygienic standards: Levels of radioactive materials from regulatory control. — Approved by the Resolution of the Chief State Sanitary Doctor of Ukraine from 30.06.2010 № 22. — Kyiv, 2010. — 6 p. (Ukr)

5. Characterization of Radioactive Waste: Challenges and Practice // www.atomic-energy.ru/technology/40911. (Rus)

6. State Hygienic Standards: Norms of Radiation Safety of Ukraine (NRBU-97). — Approved by the Resolution of Chief State Sanitary Doctor of Ukraine of 1.12.1997 № 62. — Kyiv, 1997. — 121 p. (Ukr)

7. Characterization potentially radioactive nuclear materials to justify exemption from regulatory control. Methodological guidelines : SOU NAEC 031:2013. — Approved by the Order of «Energoatom» from 16.07.2013 № 623. — Kyiv, 2013. — 27 p. (Ukr)

8. *Zabulonov Yu. L., Lisichenko G. V., Korostil Yu. M., Makarets N. V.* Fundamentals of the method of dynamic analysis of non-stationary radiation fields // Scientific Papers of the Institute for Modelling in Energy Sciences of Ukraine. — 2005. — Vol. 29. — P. 88—93. (Rus)

9. *Zabulonov Yu. L., Lisichenko G. V., Makarets N. V.* Theoretical justification of the method of dynamic analysis to identify high-and low-intensity radiation sources // Scientific Papers of the Institute for Modelling in Energy Sciences of Ukraine.— 2005. — Vol. 29. — P. 64—73. (Rus)

10. *Shannon K.* Work on information theory and Cybernetics. — Moscow : Publishing house of foreign literature, 1963. — 830 p. (Rus)

Получено 05.03.2014.