

ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ

УДК 539.1.074.3

РАДИОМЕТРИЧЕСКИЙ МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ
 ^{14}C В ОБЛУЧЕННОМ ГРАФИТЕ

© 2019 г. С. М. Игнатов^а, В. Н. Потапов^{а,*}, Ю. Н. Сими́рский^а, А. В. Степанов^а

^а *Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”
Россия, 123182, Москва, пл. Академика Курчатова, 1*

* *e-mail: potapov_v@mail.ru*

Поступила в редакцию 22.08.2018 г.

После доработки 22.08.2018 г.

Принята к публикации 10.10.2018 г.

Разработан радиометрический метод измерения активности ^{14}C в образцах облученного графита. В экспериментах использовались образцы графитовых блоков кладки уран-графитовых реакторов, готовящихся к выводу из эксплуатации и последующему демонтажу. В реакторном графите в процессе облучения нейтронами образуется радионуклид ^{14}C с периодом полураспада 5730 лет, который представляет большую опасность с радиозэкологической точки зрения. Поэтому в процессе вывода из эксплуатации уран-графитовых реакторов необходимо контролировать содержание ^{14}C в радиоактивных отходах, образующихся при демонтаже графитовых кладок и элементов технологических конструкций. Учитывая общий объем графита в уран-графитовых реакторах, желательно иметь оперативный метод контроля содержания ^{14}C в графите. Таким методом может быть радиометрический метод, способ реализации которого описан в этой работе.

DOI: 10.1134/S0032816219020228

ВВЕДЕНИЕ

В атомной отрасли в настоящее время работают десятки энергоблоков с уран-графитовыми реакторами. Кроме того, большое количество промышленных уран-графитовых реакторов (у.г.р.) находятся в процессе подготовки к выводу из эксплуатации. В облученном графите таких реакторов, наряду с продуктами активации и деления (аварийные ячейки), содержится большое количество радиоактивного углерода ^{14}C . Учитывая общую массу графита в кладках и съемных элементах у.г.р. (десятки тысяч тонн) [1–3], облученный графит является опасным техногенным источником радиоактивного загрязнения окружающей среды. Поэтому при выводе из эксплуатации таких реакторов и при долговременном хранении облученного графита необходимо обеспечить контроль содержания (активности) ^{14}C для определения соответствия критериям приемлемости для захоронения (НП-093-14).

Традиционным для определения активности ^{14}C в реакторном графите является радиохимический метод, основанный на окислении исследуемого образца до двуокиси углерода с последующим определением активности ^{14}C с использованием жидкостных сцинтилляционных бета-спектрометров [1, 4–7]. Данный способ является

трудоемким, но в то же время достаточно надежным, так как позволяет исключить влияние сопутствующих радионуклидов, содержащихся в облученном графите (это, как правило, ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{60}Co , ^{134}Cs и т.д.). Все эти радионуклиды являются в основном β - и γ -излучающими, поэтому создают трудности при измерении полезного сигнала, связанного с излучением радионуклида ^{14}C . Таким образом, радиохимический метод может быть использован для интеркалибровки других методов измерения активности ^{14}C .

^{14}C является чистым β -излучающим радионуклидом с максимальной энергией β -частиц 156 кэВ и периодом полураспада 5730 лет.

Проблема радиометрического метода измерения активности ^{14}C заключается в мешающем влиянии фонового излучения техногенных радионуклидов, присутствующих в облученном графите, так как β -частицы, попадая в чувствительный объем детектора, имеют 100%-ную эффективность регистрации. Как правило, наибольшее влияние фонового излучения приходится на низкоэнергетическую область спектра, а именно в этой части спектра формируется полезный сигнал – зарегистрированное β -излучение ^{14}C с энергией менее 156 кэВ. Поэтому для решения этой проблемы важно выбрать оптимальные параметры бета-ра-

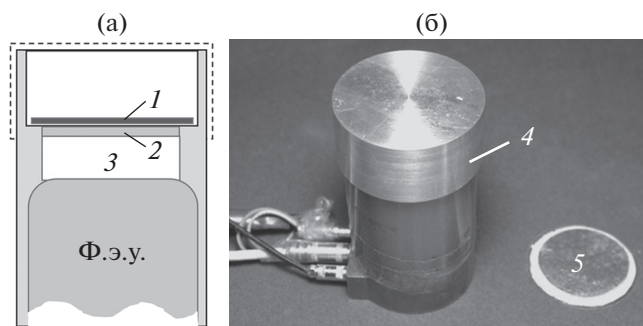


Рис. 1. Условная схема (а) и внешний вид (б) спектрометрической установки для измерения удельной активности ^{14}C в образце реакторного графита. 1 – исследуемый образец; 2 – пластиковый сцинтиллятор (полистирол); 3 – световод из плексигласа; 4 – бета-спектрометр; 5 – образец с графитом на фильтре.

диометра (материал сцинтиллятора и его толщину) и обеспечить подготовку образца графита для измерений.

ОПИСАНИЕ БЕТА-РАДИОМЕТРА ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ ^{14}C В ОБРАЗЦАХ ОБЛУЧЕННОГО ГРАФИТА

Радиометрический метод измерения активности ^{14}C в облученном графите разрабатывался в процессе обследования графитовой кладки выведенного из эксплуатации исследовательского реактора РФТ (НИЦ “Курчатовский институт”). Реактор был остановлен и частично демонтирован в 1962 г. Графитовая кладка активной зоны оставалась в стальном штатном корпусе в течение более 50-ти лет, поэтому основными техногенными радионуклидами, содержащимися в графите, к моменту демонтажа активной зоны являлись долгоживущие радионуклиды ^{137}Cs и ^{90}Sr (^{90}Y). Радионуклид ^{90}Sr практически всегда находится в равновесии с ^{90}Y , поэтому в дальнейшем для краткости будем обозначать только ^{90}Sr , подразумевая, что всегда присутствует также равновесный ^{90}Y .

На рис. 1а представлена схема бета-радиометра, предназначенного для реализации радиометрического способа измерения активности ^{14}C в образцах реакторного графита.

Данный бета-спектрометр был реализован с использованием ф.э.у. НАМАМАТSUPMT-R10601 [8], внешний вид спектрометра вместе с образцом графита показан на рис. 1б. Поскольку в этой схеме спектрометра использовался тонкий сцинтиллятор, то для выравнивания чувствительности фотокатода ф.э.у. применялся световод цилиндрической формы толщиной 15 мм из плексигласа.

Образец для измерения формировали в виде осажденного на фильтр порошка графита. В случае высоких концентраций мешающих радионук-

лидов ^{137}Cs и ^{90}Sr графит подвергали выщелачиванию. Пробу графита дважды в течение 1 ч выщелачивали горячей концентрированной азотной кислотой и окончательно в течение 1 ч – горячей царской водкой. Данная процедура позволяла уменьшить концентрации мешающих радионуклидов в 15–20 раз. Массу осажденного порошка графита измеряли путем взвешивания и определяли толщину слоя графита, выраженную в граммах на квадратный сантиметр (диаметр мишени 40 мм).

ВЫБОР ОПТИМАЛЬНЫХ ПАРАМЕТРОВ БЕТА-РАДИОМЕТРА

Поскольку образцы реакторного графита содержат γ -излучающие радионуклиды, то использовался сцинтиллятор из полистирола, что позволило минимизировать эффективность регистрации γ -излучения. Снижению эффективности регистрации γ -излучения способствовало уменьшение толщины пластины сцинтиллятора, так как чем тоньше пластина, тем меньше влияние γ -излучения сопутствующих радионуклидов. Расчеты показали, что для полного поглощения β -частиц ^{14}C с максимальной энергией 156 кэВ достаточно пластины сцинтиллятора толщиной всего 100 мкм. Однако это не означает, что такая толщина сцинтиллятора является оптимальной. При очень тонких пластинах сцинтиллятора начинает проявляться негативное влияние β -излучения высокоэнергетических частиц радионуклидов, таких как ^{90}Sr , ^{137}Cs и т.п. Для анализа подобной ситуации была создана математическая модель спектрометрической системы, основанная на методе Монте-Карло. Это позволило провести оптимизацию параметров спектрометрической системы и, в частности, выбрать оптимальную толщину сцинтиллятора и толщину исследуемого образца. На рис. 2 показано изменение характера аппаратного спектра излучения ^{90}Sr в зависимости от толщины полистирола. Там же представлен спектр излучения ^{14}C с той же удельной активностью. Согласно рисунку, влияние излучения ^{90}Sr на область интереса (низкоэнергетический интервал, расположенный ниже 156 кэВ) в значительной степени зависит от толщины полистирола.

Подобная ситуация наблюдается и для излучения радионуклида ^{137}Cs . Чем тоньше сцинтилляционная пластина, тем меньше энергии передается сцинтиллятору, поэтому при очень тонких пластинах сцинтиллятора основной вклад в низкоэнергетическую область аппаратного спектра дают β -частицы высокой энергии, формируя некоторую область в виде “горба” (рис. 3). Очевидно, что по мере увеличения толщины пластины положение этого “горба” смещается в область более высоких энергий. Учитывая эту особенность

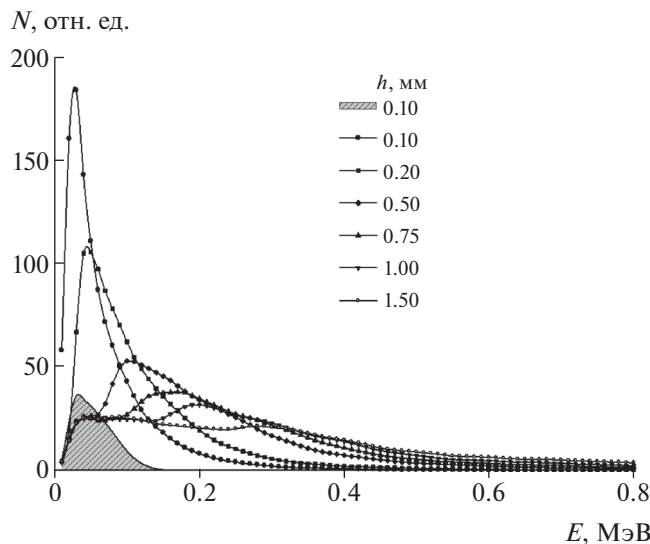


Рис. 2. Аппаратурные спектры β -излучения графитового образца, содержащего радионуклид ^{90}Sr , рассчитанные для пластиковых сцинтилляторов (полистирол) различной толщины h . Заштрихованная область – аппаратурный спектр излучения ^{14}C .

формирования аппаратурного спектра, подбором толщины пластины сцинтиллятора можно минимизировать влияние высокоэнергетических β -частиц в области интереса, т.е. уменьшить фоновую подложку спектра в диапазоне низких энергий.

Дальнейший вывод относительно оптимальной толщины пластины сцинтиллятора может быть сделан после изложения предлагаемого метода измерения активности ^{14}C .

РАДИОМЕТРИЧЕСКИЙ МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ ^{14}C

Основной задачей радиометрического метода измерений является выделение полезного сигнала, обусловленного регистрацией излучения ^{14}C на фоне излучения других радионуклидов. Достигается это использованием нескольких энергетических интервалов аппаратурного спектра и существующих между ними корреляционных коэффициентов. На рис. 4 представлены типичные аппаратурные спектры образцов графита. Нижний спектр получен на образце графита, содержащем радионуклиды ^{90}Sr и ^{137}Cs в отсутствие радионуклида ^{14}C (характеризует фоновую составляющую спектра). Верхний спектр получен при наличии в графите радионуклида ^{14}C при том же содержании радионуклидов ^{90}Sr и ^{137}Cs (основной спектр). На этом рисунке выделены три энергетические области (I, II и III), которые использовались при определении полезного сигнала (раз-

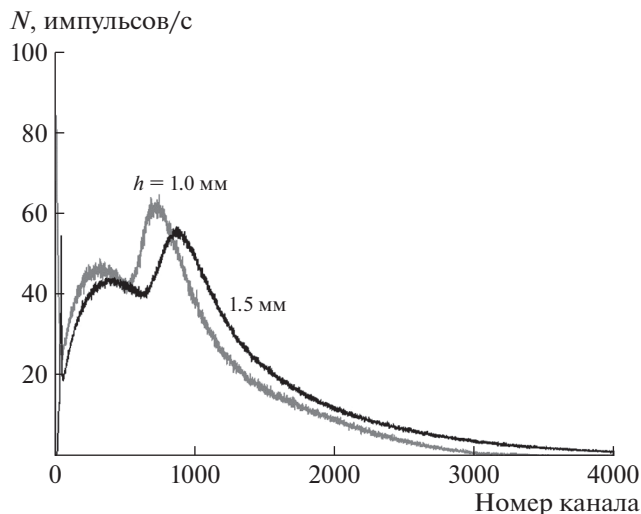


Рис. 3. Аппаратурные спектры β -излучения ^{90}Sr , измеренные на детекторе при различной толщине пластины сцинтиллятора.

ностная величина области I между основным и фоновым спектрами).

Обозначим через n_1 , n_2 и n_3 скорости счета зарегистрированных импульсов в энергетических интервалах спектра I, II и III соответственно. Для оценки фоновой составляющей области I необходимо использовать корреляционные коэффициенты K_{31} , K_{32} и K_{21} . По-прежнему будем предполагать, что основными сопутствующими радионуклидами в графите являются ^{90}Sr и ^{137}Cs . В этом случае область спектра III будет формироваться

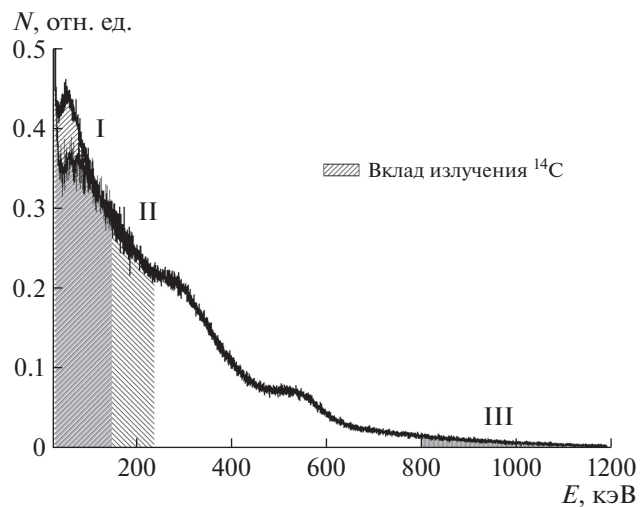


Рис. 4. Аппаратурные спектры, иллюстрирующие вклад излучения ^{14}C на фоне излучения радионуклидов ^{90}Sr и ^{137}Cs . I–III – энергетические области, используемые при определении полезного сигнала.

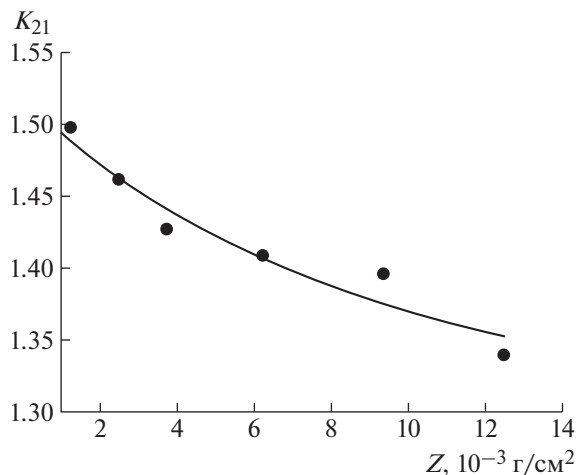


Рис. 5. Зависимость коэффициента коррекции K_{21} для излучения ^{137}Cs от толщины исследуемого образца: точки – расчет, линия – аппроксимация.

только зарегистрированными высокоэнергетическими β -частицами ^{90}Sr и ^{90}Y , а β -частицы ^{137}Cs в этой области практически отсутствуют. Тогда коэффициент K_{31} определяет вклад в область I излучения ^{90}Sr , т.е. имеет место соотношение $K_{31} = n_1^{\text{Sr}}/n_3^{\text{Sr}}$, соответственно для области II – $K_{32} = n_2^{\text{Sr}}/n_3^{\text{Sr}}$. Здесь n_1^{Sr} , n_2^{Sr} и n_3^{Sr} – скорости счета зарегистрированных β -частиц излучения радионуклида ^{90}Sr в энергетических областях I, II и III соответственно. Аналогично коэффициент $K_{21} = n_1^{\text{Cs}}/n_2^{\text{Cs}}$ определяет вклад β -излучения радионуклида ^{137}Cs .

Таким образом, имея значения этих коэффициентов, полезный сигнал n_s (скорость счета зарегистрированного β -излучения ^{14}C в области I) можно оценить по формуле

$$n_s = n_1 - K_{21}(n_2 - K_{32}n_3) - K_{31}n_3. \quad (1)$$

Коэффициенты K_{31} , K_{32} и K_{21} не являются константами, а имеют функциональную зависимость от толщины образца графита.

Для выявления этих зависимостей были проведены расчеты с помощью модели Монте-Карло. На рис. 5 представлен пример зависимости коэффициента K_{21} от толщины Z , г/см², слоя графита в мишени.

Как показал анализ этой зависимости, она хорошо аппроксимируется функцией вида

$$K_{21}(Z) = K_{21}(0)\exp(-bZ/c(Z+c)), \quad (2)$$

где $K_{21}(0)$ – значение корреляционного коэффициента для тонкого, практически нулевой толщины, слоя. Преимущество такого представления заключается в том, что величина $K_{21}(0)$ определяется экспериментальным путем с использовани-

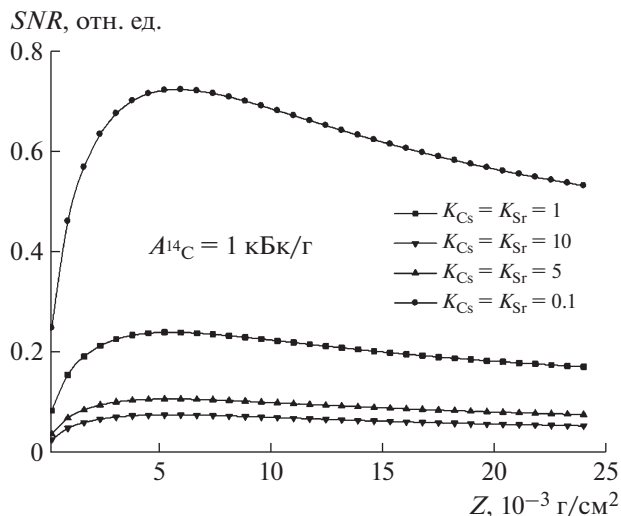


Рис. 6. Зависимость отношения сигнал/шум от толщины образца при различных соотношениях активностей ^{14}C и ^{90}Sr , ^{137}Cs .

ем мишени в виде нанесенного на твердую подложку раствора радионуклида ^{137}Cs . После высыхания раствора на подложке образуется тонкий слой, содержащий равномерно распределенный радионуклид ^{137}Cs . Аналогично определяли коэффициенты $K_{31}(0)$ и $K_{32}(0)$ для радионуклида ^{90}Sr , поскольку для этого радионуклида зависимости $K_{31}(Z)$ и $K_{32}(Z)$ также описываются функциями вида (2) со своими значениями констант b и c для каждого коэффициента.

При реализации предлагаемого метода ширины энергетических интервалов I и II аппаратного спектра (рис. 6) выбирали примерно одинаковыми по величине: $\Delta E_1 = 40\text{--}150$ кэВ и $\Delta E_2 = 150\text{--}240$ кэВ. Правая граница интервала II, а именно 240 кэВ, определяла толщину пластикового сцинтиллятора. По мере увеличения толщины пластины сцинтиллятора можно было выйти из-под влияния “горба” высокоэнергетических β -частиц ^{90}Sr и ^{137}Cs в энергетическом интервале спектра II. Это достигалось при толщине пластины сцинтиллятора $h = 1.5$ мм, что позволяло рассматривать ее как оптимальную. Энергетический интервал III располагался в высокоэнергетической части спектра ($\Delta E_3 = 800\text{--}1100$ кэВ) и использовался для оценки влияния β -излучения ^{90}Sr и ^{90}Y на фоновую составляющую спектра. В энергетической области спектра III практически отсутствует вклад β -частиц ^{137}Cs с максимальной энергией 1175 кэВ, так как, с одной стороны, выход на распад для этих частиц составляет 5.6%, а с другой – большинство этих частиц оставляет только малую долю своей начальной энергии в тонком сцинтилляторе.

Помимо оптимизации толщины сцинтиллятора при реализации метода, была проведена оптимизация толщины исследуемого образца графита. Эту процедуру выполнили по результатам анализа зависимостей отношения сигнал/шум SNR от толщины Z образца графита при различных соотношениях активностей радионуклидов ^{14}C и ^{90}Sr , ^{137}Cs . На рис. 6 представлены эти зависимости для различных соотношений активностей, определяемых параметрами $K_{\text{Cs}} = A_{\text{Cs}}/A_{^{14}\text{C}}$ и $K_{\text{Sr}} = A_{\text{Sr}}/A_{^{14}\text{C}}$. Положение максимума этих зависимостей определяет оптимальное значение толщины исследуемого образца ($Z \sim 0.006$ г/см²). Поскольку оптимум неярко выражен, общий вес графита счетного образца диаметром 40 мм может варьироваться от 50 до 100 мг.

Используя выражение (1) и определяя скорость счета n_s зарегистрированных β -частиц радионуклида ^{14}C , оценить активность ^{14}C можно через калибровочный коэффициент $C_{\text{calibr}} = 1/n_{^{14}\text{C}}(Z)$, где $n_{^{14}\text{C}}(Z)$ – скорость счета в энергетическом интервале ΔE_1 β -частиц ^{14}C в образце с единичной удельной активностью при толщине Z слоя графита. Для определения активности используется очевидное выражение

$$A_{^{14}\text{C}} = C_{\text{calibr}} n_s. \quad (3)$$

Зависимость $n_{^{14}\text{C}}(Z)$, которая аппроксимировалась функцией вида $y = a(1 - e^{-bZ})$, представлена на рис. 7. При этом значение константы a определяли экспериментальным путем (процедура калибровки), а константа b была получена на основании расчетных данных.

Критерием применимости радиометрического способа измерения активности радионуклида ^{14}C в облученном графите может являться выполнение условия:

$$A_{^{14}\text{C}} \geq \sum_i A_i, \quad (4)$$

где $A_{^{14}\text{C}}$ – активность ^{14}C в образце, а A_i – активности присутствующих в графите i -х радионуклидов.

Если условие (4) не выполняется, то это приводит к большой ошибке измерения из-за влияния статистических флуктуаций фоновой составляющей аппаратного спектра.

РЕАЛИЗАЦИЯ РАДИОМЕТРИЧЕСКОГО МЕТОДА ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТИ ^{14}C В ОБЛУЧЕННОМ ГРАФИТЕ ПРИ НАЛИЧИИ КОМПЛЕКСА МЕШАЮЩИХ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ

Выше описан метод измерения активности ^{14}C в облученном графите после его длительной вы-

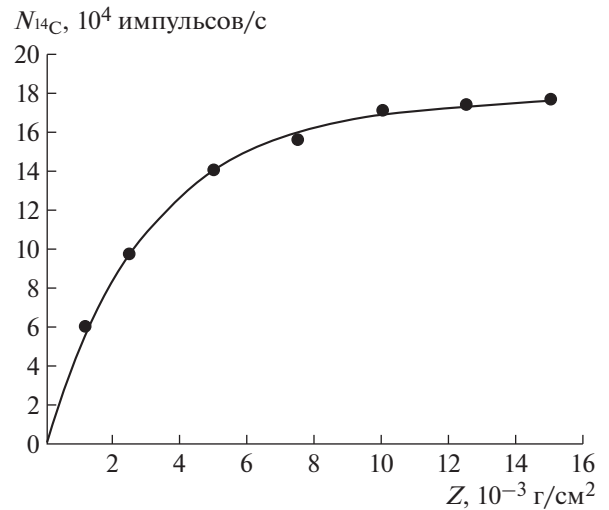


Рис. 7. Зависимость скорости счета в рабочем энергетическом интервале аппаратного спектра (40–150 кэВ) от толщины графита в исследуемом образце: точки – расчет, линия – аппроксимация выражением $y = a(1 - e^{-bZ})$.

держки (хранения), когда среди радионуклидов присутствуют в основном долгоживущие ^{90}Sr и ^{137}Cs . Однако на практике приходится иметь дело и со “свежим” графитом, в котором присутствуют и другие радионуклиды, такие как ^{134}Cs , ^{54}Mn , ^{144}Ce , ^{60}Co , ^{154}Eu и т.п.

Примером могут служить образцы реакторного графита с Ленинградской АЭС (реакторы РБМК-1000), радионуклидный состав одного из образцов на момент измерения активности ^{14}C приведен в табл. 1.

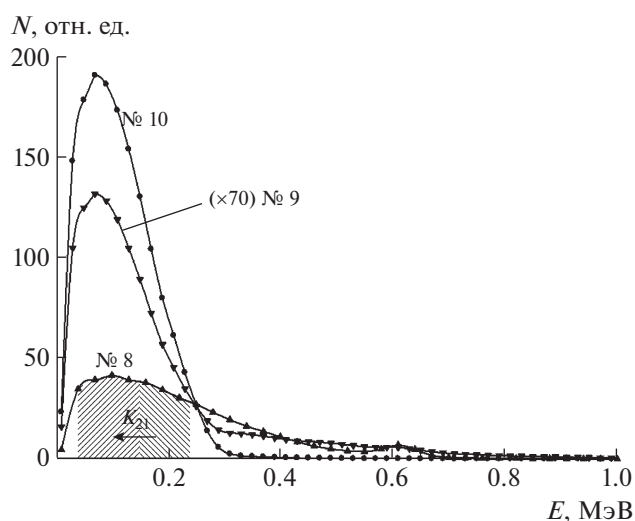
Указанные в табл. 1 радионуклиды, кроме ^{90}Sr , являются γ -излучающими, поэтому процедура реализации радиометрического метода измерения активности ^{14}C несколько усложняется. Необходимы дополнительные гамма-спектрометрические измерения образца облученного графита для определения его радионуклидного состава и удельных активностей радионуклидов. Измерения проводили, используя гамма-спектрометрический комплекс InSpector-2000 компании Canberra, который включал в себя полупроводниковый детектор на основе высокочистого германия GC-4018. Анализ γ -спектров проводили с помощью программного обеспечения GENIE-2000. В этой ситуации основная задача метода измерения заключалась в определении корреляционных коэффициентов K_{21} , K_{31} и K_{32} , используемых в выражении (1) при выделении полезного сигнала n_s . Для этого нужно иметь информацию о фоновых спектрах, формируемых радионуклидами, обнаруженными в исследуемом образце.

Таблица 1. Радионуклидный состав и удельная активность образца графита с Ленинградской АЭС

Радионуклидный состав образца № 8	Удельная активность, кБк/г
^{137}Cs	33 ± 3
^{134}Cs	13 ± 1
^{90}Sr	2.7 ± 0.5
^{144}Ce	1.5 ± 0.2
^{106}Rh	2.0 ± 0.2
^{60}Co	1.3 ± 0.1
^{65}Zn	1.2 ± 0.1
^{155}Eu	0.23 ± 0.02
^{154}Eu	0.21 ± 0.02
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	0.034 ± 0.003
^{95}Zr	0.028 ± 0.004
^{54}Mn	0.021 ± 0.004
^{46}Sc	0.008 ± 0.002

Предположим, что в образце обнаружено N радионуклидов с удельными активностями A_i ($i = 1, 2, \dots, N$). Если известны аппаратные β -спектры для каждого i -го радионуклида в образце с единичной удельной активностью $\varphi_i(E)$, то результирующий фоновый спектр будет определяться по формуле

$$\Phi(E) = \sum_{i=1}^N \varphi_i(E) A_i. \quad (5)$$

**Рис. 8.** Фоновые аппаратные β -спектры образцов графита ЛАЭС (№ 8–10), рассчитанные по данным активностей техногенных радионуклидов (см. табл. 1).

Для всех обнаруженных радионуклидов аппаратные спектры $\varphi_i(E)$ для образца графита оптимальной толщины (~ 0.006 г/см 2) и с удельной активностью 1 Бк/г были рассчитаны методом Монте-Карло.

При реализации методики измерений с помощью формулы (5) рассчитывались фоновые аппаратные спектры для стандартного образца с учетом его радионуклидного состава, а затем по этим сформированным спектрам определялись коэффициенты K_{21} , K_{31} и K_{32} .

Примеры сформированных фоновых спектров трех образцов графита с Ленинградской АЭС представлены на рис. 8.

При наличии большой активности техногенных радионуклидов в образцах облученного графита будет возрастать методическая погрешность измерения, что скажется на величине минимально детектированной активности.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ АКТИВНОСТИ ^{14}C И ИНТЕРКАЛИБРОВКИ ОБРАЗЦОВ ОБЛУЧЕННОГО ГРАФИТА

Интеркалибровку радиометрического метода измерения активности ^{14}C осуществляли путем сравнения с результатами измерений радиохимическим методом. Использовали следующий радиохимический метод определения активности ^{14}C в реакторном графите. Пробы графита массой 0.2–0.3 г сжигали в токе кислорода при температуре 850–900°C. Образовавшийся $^{14}\text{CO}_2$ собирали в двух последовательно расположенных ловушках, заполненных 20%-ным раствором NaOH. Примерно 90–95% газа $^{14}\text{CO}_2$ конденсировалось в первой ловушке. В полученном растворе радиоактивный углерод находился в форме $\text{Na}_2^{14}\text{CO}_3$. Спектр ^{14}C получали, используя высокочувствительный спектрометрический комплекс СКС-07Р-В11 [4] с жидким сцинтиллятором ULTIMA GOLD AB. Концентрацию ^{14}C в образцах рассчитывали с помощью программного обеспечения “Liquid Master” [9].

В качестве образцов для измерений были отобраны элементы графитовой кладки реакторов РФТ (НИЦ “Курчатовский институт”) (образцы № 1–7), Ленинградской АЭС (образцы № 8–10) и промышленных у.г.р. СХК (г. Северск) (образцы № 11–14). Результаты измерений представлены в табл. 2 и в графическом виде на рис. 9. При совпадении результатов измерений радиохимическим и радиометрическим методами соответствующая им точка должна попадать на диагональную прямую на рис. 9.

Основными сопутствующими радионуклидами в графитовых образцах являлись радионукли-

Таблица 2. Характеристики образцов и результаты их измерений радиометрическим и радиохимическим методами

Образец № п/п	Масса, мг	^{137}Cs , Бк/г	^{90}Sr , Бк/г	^{14}C , Бк/г (радиометрия)*	^{14}C , Бк/г (радиохимия)**
1	77	1780	315	266 ± 130	280
2	82	2151	338	135 ± 140	140
3	80	5362	3494	1370 ± 300	610
4	80	3750	5270	2130 ± 450	2100
5	86.2	12150	17440	5190 ± 550	550
6	79.6	3210	5100	12500 ± 430	7800
7	81	3245	2345	2340 ± 560	2100
8	80	33300	2663	$(1.19 \pm 0.004) \cdot 10^6$	$1.20 \cdot 10^6$
9	78	90	—	$(0.867 \pm 0.003) \cdot 10^6$	$1.20 \cdot 10^6$
10	49.7	240	426	$(0.885 \pm 0.005) \cdot 10^6$	$0.88 \cdot 10^6$
11	77	$1.09 \cdot 10^5$	$2.06 \cdot 10^4$	$(1.92 \pm 0.03) \cdot 10^5$	$1.89 \cdot 10^5$
12	77	$1.43 \cdot 10^3$	$0.794 \cdot 10^3$	$(1.48 \pm 0.04) \cdot 10^5$	$1.46 \cdot 10^5$
13	76	$1.04 \cdot 10^5$	$1.58 \cdot 10^4$	$(1.91 \pm 0.01) \cdot 10^5$	$1.90 \cdot 10^5$
14	83	$0.747 \cdot 10^5$	$1.07 \cdot 10^4$	$(1.28 \pm 0.01) \cdot 10^5$	$0.95 \cdot 10^5$

* В этой колонке указаны только статистические погрешности измерений.

** Погрешность радиохимического метода не превышает 20%.

ды ^{137}Cs и ^{90}Sr , поэтому их удельные активности указаны в табл. 2. Как уже упоминалось (см. табл. 1), в образцах ЛАЭС присутствовали и другие радионуклиды, однако их влияние было невелико.

Результаты сравнений, представленные в графическом виде, дают наглядную картину точности измерений, из которой следует выделить результаты измерений образцов № 5 и № 3. По данным измерений радиохимическим способом эти образцы имеют примерно одинаковую удельную активность, а именно 550 и 610 Бк/г. Однако результаты радиометрических и радиохимических измерений для образца № 5 отличаются практически на порядок, а для образца № 3 — в два раза. Причиной такого расхождения является влияние фонового излучения техногенных радионуклидов этих двух образцов. В данном случае не выполняется условие (4), ограничивающее применение радиометрического метода измерения.

Условие (4) в значительной степени является качественным критерием, так как оно не дает точного значения границы применимости радиометрического метода. Это подтверждают результаты измерений, например, образцов № 1 и № 2. В этих случаях сумма активностей ^{137}Cs и ^{90}Sr несколько превышает активность ^{14}C , однако результаты, полученные различными методами, хорошо совпадают, хотя статистическая погрешность измерений весьма существенная. Следует

отметить, что при удельной активности ^{14}C в облученном графите свыше 10^4 Бк/г радиометрический метод дает достаточно устойчивые по точности результаты измерений. Этот факт является важным, поскольку для облученного графита уровень активности 10^4 Бк/г является граничным

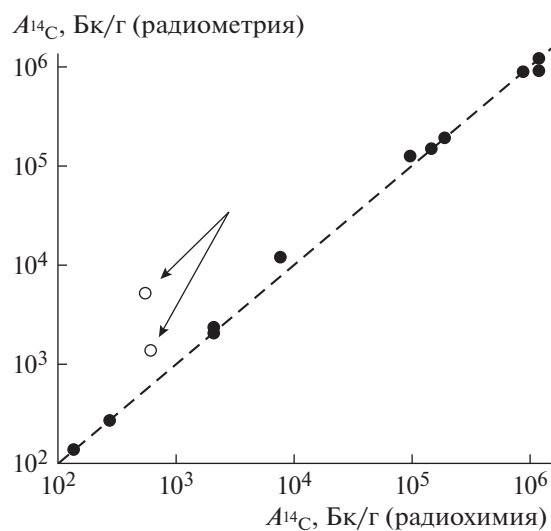


Рис. 9. Графическое сопоставление (сравнение) результатов измерений методами радиохимии и радиометрии. Стрелками указаны результаты измерений, не удовлетворяющие условию (4).

значением для отнесения его в категорию твердых радиоактивных отходов класса 2 [10].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

По результатам проведенных исследований можно сделать вывод, что радиометрический метод измерения активности ^{14}C в облученном реакторном графите может являться альтернативой радиохимическому методу. Однако по надежности радиометрический метод уступает радиохимическому из-за возможного влияния на результаты измерений техногенных радионуклидов, содержащихся в образцах графита. В то же время этот метод имеет свои преимущества и, прежде всего, является более оперативным и менее трудоемким. Наиболее рутинной является процедура подготовки проб, требующая формирования мишени в виде осажденного на фильтр порошка графита в ряде случаев в сочетании с предварительной частичной очисткой от радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr , а при наличии широкого спектра техногенных радионуклидов (образцы графита без длительной выдержки) необходимо также дополнительное гамма-спектрометрическое измерение образцов.

Следует также отметить, что описанный выше радиометрический способ исключает возможность измерения активности трития, так как верхняя граница шума спектрометрического тракта составляет ~30–35 кэВ, а максимальная энергия β -частиц трития – 18.6 кэВ.

Как правило, в облученном графите всегда присутствует радионуклид ^{36}Cl , который также является “чистым” β -излучателем с максимальной энергией частиц 708.6 кэВ. Однако влияние β -излучения этого радионуклида невелико, так

как активность ^{36}Cl в облученном графите примерно на 2–3 порядка ниже активности ^{14}C [1].

Авторы весьма признательны Д.А. Кулешову за предоставленные образцы облученного графита с Ленинградской АЭС, а также руководству ОДЦ УГР за научно-техническое сотрудничество по проблеме облученного графита промышленных реакторов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бушуев А.В., Кожин А.Ф., Петрова Е.В., Зубарев В.Н., Алеева Т.Б., Гурке Н.А. Радиоактивный реакторный графит. Монография. М.: НИЯУ МИФИ, 2015.
2. Хвостова М.С. // Известия томского политехнического университета. 2012. Т. 302. № 1. С. 184.
3. Раменков А.А. // Росэнергоатом. 2011. № 03. С. 32.
4. <http://www.greenstar.ru/ckc-07p-b11.html>
5. Бушуев А.В., Петрова Е.В., Кожин А.Ф., Штыфурко А.И., Масалов Д.П. // Атомная энергия. 2006. Т. 101. Вып. 5. С. 358.
6. Wicker D.A. // Royal society of chemistry. Special publication. 1999. V. 234. P. 170.
7. Гурке Н.А., Бушуев А.В., Кожин А.Ф., Петрова Е.В., Алеева Т.Б., Зубарев В.Н. // Атомная энергия. 2012. Т. 112. Вып. 1. С. 51.
8. https://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/R10601-100_TPMH1334E.pdf
9. Simirskii Iu., Stepanov A., Semin I., Volkovich A. // Proc. of GLOBAL 2017. Seoul, Korea, September 24–29, 2017, A-042. <http://www.global2017.org/>
10. Постановление Правительства РФ от 19.10.2012 № 1069. (ред. от 04.02.2015) “О критериях отнесения твердых, жидких и газообразных отходов к радиоактивным отходам, критериях отнесения радиоактивных отходов к особым радиоактивным отходам и к удаляемым радиоактивным отходам и критериях классификации удаляемых радиоактивных отходов”.