

**ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА**

P14-87-56

**П.А.Лавданский\*, В.М.Назаров, Н.И.Стефанов\*,  
В.М.Фронтасьева**

**ИСПОЛЬЗОВАНИЕ АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА  
ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ  
НАВЕДЕННОЙ АКТИВНОСТИ БЕТОНОВ,  
ПРИМЕНЯЕМЫХ  
ДЛЯ ЗАЩИТЫ ЯДЕРНЫХ УСТАНОВОК**

Направлено в журнал "Атомная энергия"

---

\*Московский инженерно-строительный институт

**1987**

С развитием атомной энергетики и ростом числа ядерно-энергетических установок возникла важная проблема - прекращение эксплуатации реакторных установок в связи с истечением их срока службы, принимаемого, в среднем, продолжительностью в 30 - 35 лет.

Эта проблема требует решения комплекса вопросов и задач, основными из которых являются демонтаж и захоронение радиоактивного оборудования и конструкций. Это связано с тем, что: 1) выполнение демонтажных работ, а также обработка и захоронение радиоактивных отходов при снятии АЭС с эксплуатации увеличивает дозовые затраты персонала за счёт излучений наведенной активности и повышает радиационную опасность для населения и окружающей среды и 2) экономические затраты на обработку и удаление радиоактивных отходов составляют главную статью расходов на прекращение эксплуатации установок.

Например, затраты на прекращение эксплуатации типовой АЭС с реактором PWR (США) (реактор типа ВВЭР) оцениваются, примерно, в 100 млн. долларов <sup>1/</sup>. Причем, по данным работ <sup>2,3/</sup>, около 75% затрат приходится на обработку, транспортировку и захоронение радиоактивных отходов, которые большей частью состоят из бетона.

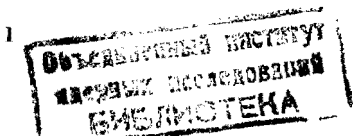
Широкое использование бетонов в радиационной защите реакторов общеизвестно <sup>4/</sup>. Применяют бетоны на портландцементе и минеральных заполнителях из горных пород - известняках, гранитах, доломитах, серпентинитах и др.

Таким образом, необходимо выбрать наименее активируемые нейтронами материалы для приготовления защитных бетонов и разработать конструктивные решения радиационной защиты с целью уменьшения облучаемости персонала и сокращения объёма радиоактивных отходов при прекращении эксплуатации реакторных установок.

Существующие методы позволяют рассчитывать активность облученного нейтронами материала при известном его химическом составе. Однако проведение таких расчётов для бетонов затруднено из-за недостаточности сведений о содержании в нём элементов, образующих долгоживущие нуклиды. Как показал предварительный анализ, такими элементами могут являться Eu, Co, Cs, Ta.

Цель настоящей работы состояла в экспериментальном определении этих элементов и их концентраций в наиболее распространённых заполнителях защитных бетонов - известняках, гранитах и серпентинитах, а также проведении расчётов активности заполнителей, возникающей за время эксплуатации АЭС.

В качестве образцов были отобраны заполнители из различных месторождений (см. табл. 2)



Концентрация элементов определялась с помощью активационного анализа в канале облучения ИБР-2 <sup>15/</sup>. Плотность потока тепловых, резонансных и быстрых нейтронов в канале составляла  $1,1 \cdot 10^{12}$ ,  $0,23 \cdot 10^{12}$ ,  $1,4 \cdot 10^{12}$  н/(см<sup>2</sup>·с), соответственно. Анализ каждой партии образцов заполнителей проводился по трём и более навескам, каждая по 0,200 - 0,500 г.

Для измерения  $\gamma$ -спектров наведенной активности использовался спектрометр, выполненный на основе полупроводникового Ge (Li) детектора с разрешением 3,0 кэВ по линии 1333 кэВ <sup>60</sup>Со. Измерения облученных образцов проводились при различных временах выдержки. Спектры после выдержки 245 - 250 дней показали, что основными долгоживущими нуклидами, определяющими активность заполнителей, являются: в известняках и гранитах <sup>152</sup>Eu, <sup>60</sup>Со, <sup>134</sup>Сs, <sup>46</sup>Sc, <sup>182</sup>Ta; в серпентините <sup>60</sup>Со.

Данные по активации перечисленных нуклидов тепловыми и резонансными нейтронами по реакции (n,  $\gamma$ ) приведены в таблице 1 <sup>16,7,8/</sup>.

Таблица 1

Нуклид	Распространённость, %	T <sub>1/2</sub>	$\sigma_T$ барн	I <sub>0</sub> / $\sigma_T$	Энергия (кэВ) и интенсивность в % (в скобках) основных $\gamma$ -линий
<sup>46</sup> Sc	100	83,8 дн.	25	0,5	889,4(100), 1120,5(100)
<sup>60</sup> Со	100	5,26 года	37,5	2,03	1173,2(100), 1132,5(100)
<sup>134</sup> Сs	100	2,05 года	30	12	569,3(14), 604,7(100) 795,8(88), 1364,8(4)
<sup>152</sup> Eu	47,82	12 лет	5300	0,67	121,8(37), 244,7(8), 344,2(27), 778,6(14), 964,1(15), 1085,8(12), 1407,9(22)
<sup>154</sup> Eu	52,18	16 лет	400	3,81	123,1(38), 591,5(6), 723,1(21), 1005,5(18,5), 1274,3(37), 1595,3(3,7)
<sup>182</sup> Ta	100	115 дн.	22	32,5	67,7(41,2), 100,1(14), 1121,3(35), 1189(16,4), 1221,4(27,3), 1231(11,6), 1257,5(1,5)

Для определения концентраций элементов использовался стандартный образец СТ-1А весом 0,500 г, облучение которого проводилось совместно с исследуемой пробой. Обработка спектров проводилась на ЭВМ PDP-11/70 по программе АСТV <sup>19/</sup>. Полученные результаты по содержанию элементов в образцах заполнителей, образующих долгоживущие

нуклиды, представлены в таблице 2. В этой же таблице для сравнения приведены данные по содержанию аналогичных химических элементов в аттестованных стандартах образцов горных пород.

Таблица 2

Заполнитель	№	Содержание элементов, вес % $\times 10^{-4}$				
		Co	Sc	Eu	Cs	Ta
Известняки	1	0,38 $\pm$ 0,14	0,25 $\pm$ 0,06	0,08 $\pm$ 0,04	0,01	0,02
	2	0,41 $\pm$ 0,06	0,18 $\pm$ 0,03	0,08 $\pm$ 0,02	0,01	0,02
	3	0,40 $\pm$ 0,11	0,29 $\pm$ 0,05	0,05 $\pm$ 0,02	0,20 $\pm$ 0,06	0,09 $\pm$ 0,03
	4	0,31 $\pm$ 0,04	0,22 $\pm$ 0,02	0,05 $\pm$ 0,01	0,05 $\pm$ 0,01	0,08 $\pm$ 0,02
	5	0,39 $\pm$ 0,06	0,20 $\pm$ 0,06	0,08 $\pm$ 0,02	0,01	0,02
	6	0,24 $\pm$ 0,06	0,22 $\pm$ 0,11	0,06 $\pm$ 0,02	0,32 $\pm$ 0,17	0,02
СИ-1/II/	3,0	0,56	0,23	-	0,11	
Граниты	1	0,44 $\pm$ 0,12	0,19 $\pm$ 0,07	3,95 $\pm$ 1,03	1,85 $\pm$ 0,21	0,79 $\pm$ 0,16
	2	5,0 $\pm$ 0,89	5,53 $\pm$ 0,75	0,85 $\pm$ 0,17	2,90 $\pm$ 0,04	0,84 $\pm$ 0,21
	3	2,76 $\pm$ 0,36	2,22 $\pm$ 0,47	3,12 $\pm$ 0,40	1,52 $\pm$ 0,34	0,54 $\pm$ 0,23
	4	5,1 $\pm$ 0,70	6,00 $\pm$ 0,68	4,04 $\pm$ 0,80	0,93 $\pm$ 0,29	0,57 $\pm$ 0,31
	5	2,95 $\pm$ 0,44	4,35 $\pm$ 1,63	2,95 $\pm$ 0,38	2,05 $\pm$ 0,12	3,97 $\pm$ 0,58
	6	2,32 $\pm$ 0,57	4,88 $\pm$ 1,23	1,87 $\pm$ 0,60	2,79 $\pm$ 0,82	1,90 $\pm$ 0,94
	7	2,95 $\pm$ 0,90	2,93 $\pm$ 0,20	0,78 $\pm$ 0,35	1,12 $\pm$ 0,23	2,76 $\pm$ 0,99
	8	3,15 $\pm$ 0,55	2,89 $\pm$ 0,43	0,80 $\pm$ 0,23	1,93 $\pm$ 0,39	1,08 $\pm$ 0,36
СТ-1А /9/	1,40	5,0	0,5	12,0	26,0	
СТ-2 /12/	3,2	3,1	1,7	2,8	0,25	
Серпентиниты	1	97,74 $\pm$ 9,30	19,54 $\pm$ 0,98	0,01	0,17 $\pm$ 0,03	0,02
	2	91,45 $\pm$ 1,55	15,11 $\pm$ 1,02	0,01	0,28 $\pm$ 0,02	0,02
	3	107,03 $\pm$ 7,72	13,42 $\pm$ 1,10	0,01	2,48 $\pm$ 0,40	0,02

И - месторождение:

**ИЗВЕСТНЯК**

- 1 Калужская область
- 2 Средняя Волга
- 3 Кемеровская область
- 4 Березовский карьер
- 5 Новоозерское месторождение
- 6 Донбасс

**СЕРПЕНТИНИТ**

- 1 Урал
- 2 Львовская Украина
- 3 ГДР

**ГРАНИТ**

- 1 Свердловская область
- 2 Запорожье
- 3 Северный Кавказ
- 4 Капустянское месторождение
- 5 Тековское месторождение
- 6 Новоданиловское месторождение
- 7 Петкеренское месторождение
- 8 Ижмаевское месторождение

Как видно из таблицы, разброс концентраций интересующих элементов в исследованных известняковых и серпентинитовых заполнителях незначителен. Большой разброс наблюдается у гранитов. Но при сравнении экспериментальных результатов с данными стандартов разброс достигает двух порядков (Сs, Та в гранитах). О возможности значительного колебания величины содержания рассеянных элементов в однотипных горных породах указывается и в работе [10], где отмечается также сложность явления рассеяния микроэлементов, закономерности распределения и содержания которых ещё недостаточно выяснены.

Для сравнения заполнителей были проведены расчёты изменения во времени удельной наведённой активности известняков, гранитов и серпентинитов на единичный поток тепловых и резонансных нейтронов за 30 лет облучения. Результаты расчётов на время выдержки 0,5 года приведены в таблице 3. На рис. 1 представлены графики спада средней удельной активности заполнителей от 100 дней до 20 лет выдержки.

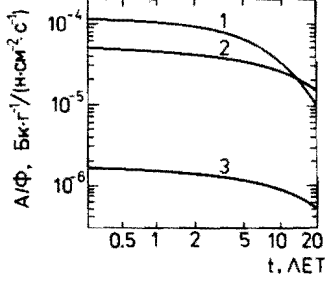


Рис. 1. Изменение удельной наведённой активности заполнителей защитных бетонов после остановки реактора, бывшего в эксплуатации 30 лет. 1 - серпентинит, 2 - гранит, 3 - известняк.

и по истечении 20 лет уменьшается всего в 3 раза. Большой разброс в уровнях активности гранитов объясняется разбросом в них европия (см. табл. 2), который практически полностью обуславливает их активность (70-80%). Высокое содержание кобальта в серпентините ( $1 \cdot 10^{-2}$  вес.%) определяет и его наведённую активность.

Для возведения биологической защиты ядерно-энергетических установок используются бетоны различных технологических составов, т.е. с

Расчёты показали, что средняя активность известняков более чем на порядок ниже активности гранитов и почти на два порядка - серпентинитов во всем временном интервале выдержки и составляет при  $t = 0,5$  года  $1,66 \cdot 10^{-6}$  Бк·г<sup>-1</sup>/(н·см<sup>2</sup>·с). Основными

радионуклидами, определяющими активность известняков, являются <sup>152</sup>Ba, <sup>154</sup>Ba и <sup>60</sup>Co, причём вклад <sup>152</sup>Ba максимален и изменяется от 60% при  $t = 0,5$  года до, примерно, 75% при  $t = 20$  годам.

Уровень средней удельной активности гранитов через 0,5 года после окончания облучения составляет  $4,55 \cdot 10^{-5}$  Бк·г<sup>-1</sup>/(н·см<sup>2</sup>·с)

Таблица 3

№	А, Бк·г <sup>-1</sup> ·10 <sup>-6</sup>						Σ А	А ± Δ А
	60Co	46Sc	152Ba	154Ba	134Cs	182Ta		
I	0,40(0,2)	0,027(0,014)	1,08(0,14)	0,23(0,12)			1,71(0,47)	
2	0,44(0,22)	0,02(0,01)	1,08(0,14)	0,23(0,12)			11,77(0,49)	
3	0,42(0,21)	0,03(0,015)	0,68(0,09)	0,14(0,07)	0,30(0,15)	0,073(0,037)	1,64(0,57)	1,66±0,08
4	0,33(0,17)	0,024(0,012)	0,68(0,09)	0,14(0,07)	0,076(0,038)	0,065(0,033)	1,32(0,41)	(0,5±0,03)
5	0,41(0,21)	0,021(0,011)	1,08(0,14)	0,23(0,12)			1,74(0,48)	
6	0,25(0,13)	0,024(0,012)	0,81(0,11)	0,17(0,09)	0,49(0,25)		1,74(0,59)	
I	0,47(0,24)	0,02(0,01)	53,6(6,97)	11,3(5,65)	2,8(1,4)	0,64(0,32)	68,8(14,6)	
2	30(2,65)	0,61(0,32)	11,5(1,50)	2,44(1,22)	4,39(2,20)	0,68(0,34)	24,9(8,23)	
3	2,93(1,47)	0,24(0,12)	42,3(5,50)	8,95(4,48)	2,30(1,15)	0,44(0,22)	57,2(12,9)	45,5±0,90
4	5,41(2,71)	0,65(0,33)	54,8(7,12)	11,6(5,80)	1,40(0,70)	0,46(0,23)	74,3(16,9)	11,2±1,7
5	3,13(1,57)	0,47(0,24)	40,0(5,20)	8,46(4,23)	3,11(1,56)	3,23(1,62)	58,4(14,4)	
6	2,46(1,23)	0,53(0,27)	25,4(3,30)	5,36(2,68)	4,23(2,12)	1,55(0,78)	39,5(10,4)	
7	3,13(1,57)	0,32(0,16)	10,6(1,38)	2,24(1,12)	1,70(0,85)	2,25(1,13)	20,2(6,21)	
8	3,34(1,67)	0,31(0,16)	10,8(1,40)	2,29(1,15)	2,92(1,46)	0,87(0,44)	20,5(6,28)	
I	104(82)	2,12(1,06)					108(53,2)	109±8
2	96,9(48,5)	1,64(0,82)					100(49,5)	(53,6±4)
3	113(56,5)	1,46(0,73)					119(59,1)	

И - в скобках указана β-активность.

различным соотношением вяжущего и заполнителя. Для оценки вклада компонентов в общую наведенную активность бетона были проведены измерения методом нейтронного активационного анализа двух образцов портландцемента - основного вяжущего для защитных бетонов. Предварительные результаты измерений позволили сделать оценочные расчёты активации бетонов на известняковом, гранитном и серпентинитовом заполнителях, технологические составы которых приведены в работе /II/. Данные расчётов позволяют предположить, что активация бетонов на известняке будет определяться портландцементом. Вклад заполнителя изменяется от 10-20% до 25-30%. Наведенная активность бетонов на граните обусловлена, главным образом, заполнителем - при различном весовом содержании компонентов в бетоне его вклад составляет от 60 до 90%. Уровень наведенной активности серпентинитового бетона на 85-95% зависит от активации заполнителя.

### Выводы

1. Долгоживущая активность заполнителей при выдержке после облучения более 6 месяцев определяется радионуклидами, образовавшимися на изотопах элементов Eu, Co, Cs, Ta под действием тепловых и резонансных нейтронов.

2. Рекомендуется при выборе составов защитных бетонов на стадии проектирования реакторных установок определять химический состав заполнителей из местных карьеров на содержание Eu, Co, Cs и Ta, учитывая большой разброс концентраций этих элементов, определяющих уровни долгоживущей наведенной активности горных пород.

3. Удельная наведенная активность серпентинитов является максимальной из исследованных заполнителей. В связи с этим следует обратить внимание на этот факт при разработке конструктивных решений радиационной защиты реакторных установок.

4. Рекомендуется продолжить исследования заполнителей и вяжущих, что позволит определить малоактивируемые компоненты защитных бетонов, а также прогнозировать объёмы и активность конструкций защиты и радиационные нагрузки на персонал при выводе установок из эксплуатации.

### Литература

I. Савченко В.А., Сквородько С.Н. Прекращение эксплуатации АЭС по истечении их срока службы. Итоги науки и техники. Серия Атомная энергетика. М., ВИНТИ, 1985, т.4, 121 с.

2. Степанова В.Д. Проблемы снятия с эксплуатации атомных электростанций и радиационная безопасность. Сб. статей под ред. Ю.А.Егорова. М.: Энергоатомиздат, 1985, с.38-44.
3. IIRI nuclear sub-committee formulates standards for reactor decommissioning: removal/dismantling after 5 -10 years storage. "Atomic Jap", 1985, No.7 p.8-13.
4. Дубровский В.Б. и др. Строительство атомных электростанций. М., Энергоатомиздат, 1985, 160 с.
5. Назаров В.М. и др. Каналы для облучения и пневмотранспортная установка на ИБР-2. В сб. Краткие сообщения ОИЯИ, № 6-85, Дубна, 1985, с.37-41.
6. Sher R. 2200 m/s neutron activation cross-sections "handbook on nuclear activation cross sections", IAEA, Vienna, 1974, p.1-13.
7. Van der Linden K., De Corte F., Hoste J. Resonance integral applied to the multiple-comparator method in reactor neutron activation analysis. "Nuclear data in science and technology", v.2, IAEA, 1973, p.241-263.
8. Carder W., MacMahon T.D., Egan A. Talanta, vol.25, p.21-40. Pergamon Press, 1978.
9. Zlokazov V.B. ACTIV - a program for automatic processing of Gamma-Ray Spectra. Computer Physics Communications, 1982, v.28, p.27-40.
10. Добровольский В.В. География микроэлементов. Глобальное рассеяние. М.: Мысль, 1983, 272 с.
- II. Бродер Д.И. и др. Бетон в защите ядерных установок. М.: Атомиздат, 1966, 239 с.

Рукопись поступила в издательский отдел  
4 февраля 1987 года.

**ТЕМАТИЧЕСКИЕ КАТЕГОРИИ ПУБЛИКАЦИЙ  
ОБЪЕДИНЕННОГО ИНСТИТУТА ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ**

Индекс	Тематика
1.	Экспериментальная физика высоких энергий
2.	Теоретическая физика высоких энергий
3.	Экспериментальная нейтронная физика
4.	Теоретическая физика низких энергий
5.	Математика
6.	Ядерная спектроскопия и радиохимия
7.	Физика тяжелых ионов
8.	Криогеника
9.	Ускорители
10.	Автоматизация обработки экспериментальных данных
11.	Вычислительная математика и техника
12.	Химия
13.	Техника физического эксперимента
14.	Исследования твердых тел и жидкостей ядерными методами
15.	Экспериментальная физика ядерных реакций при низких энергиях
16.	Дозиметрия и физика защиты
17.	Теория конденсированного состояния
18.	Использование результатов и методов фундаментальных физических исследований в смежных областях науки и техники
19.	Биофизика

Лавданский П.А. и др.

P14-87-56

Использование активационного анализа для определения наведенной активности бетонов, применяемых для защиты ядерных установок

В работе изучалось содержание элементов в заполнителях защитных бетонов /известняки, граниты, серпентиниты/ с целью определения нуклидов, дающих основной вклад в долгоживущую активность бетонов, которые используются в конструкциях радиационных защит АЭС. Концентрации элементов определялись методом нейтронного активационного анализа на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ. В работе показано, что основными нуклидами, определяющими долгоживущую активность, являются в известняках и гранитах  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{182}\text{Ta}$ , а в серпентинитах -  $^{60}\text{Co}$ . Приводятся данные по усредненной удельной активности для этих нуклидов для 6 месторождений известняков, 8 - гранитов и 3 - серпентинитов, которые используются в настоящее время для изготовления бетонов, применяемых на АЭС.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1987

Перевод авторов

Lavdanskij P.A. et al.

P14-87-56

Neutron Activation Analysis for Induced Radioactivity  
Investigation of Concretes Used in Nuclear Set-Up  
Shielding Constructions

Elementary content in aggregates (limestones, granites, serpentinites) of shielding concretes was investigated to reveal nuclides contributing into long-lived radioactivity. These concretes are used in shielding constructions of the atomic power stations. Elementary concentration was determined by neutron activation analysis at the ИБР-2 reactor of the ЛНФ of JINR. It is shown that the nuclides mainly responsible for the long-lived radioactivity in limestones and granites are  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{182}\text{Ta}$  and that in serpentinites is  $^{60}\text{Co}$ . The mean specific activity data for these nuclides are calculated for 6 deposits of limestones, 8 of granites and 3 of serpentinites which are presently used in the production of construction concretes for atomic power stations.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1987