

**ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА**

Л 13

P14-88-198

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

**ИСПОЛЬЗОВАНИЕ АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА
ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ДОЛГОЖИВУЩЕЙ
НАВЕДЕННОЙ АКТИВНОСТИ
БЕТОНОВ ЗАЩИТНЫХ КОНСТРУКЦИЙ
ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ**

Направлено в "Journal of Radioanalytical
and Nuclear Chemistry, Articles"

* Московский инженерно-строительный институт

1988

1. ВВЕДЕНИЕ

Снятие с эксплуатации ядерных установок после нормативного срока служб (30 лет) и их ликвидация связаны с необходимостью демонтажа, обработки и захоронения большого количества (тысячи тонн) радиоактивного оборудования и конструкций. До 50% отходов составляет бетон от разборки защитных конструкций ядерных реакторов ^{1/1}. Для уменьшения объемов и активности отходов, а также с целью сокращения радиационного воздействия на персонал при ликвидации АЭС, необходимо уже на стадии проектирования и строительства АЭС выбирать и использовать малоактивируемые бетоны.

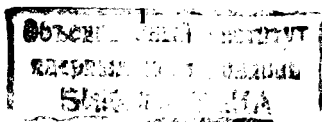
Для решения этой задачи нами начаты расчетные и экспериментальные работы по определению долгоживущей наведенной активности заполнителей и вяжущих для бетонов защитных конструкций реакторных установок, возникающей за срок их эксплуатации.

Экспериментальные исследования направлены на получение данных о радионуклидном и элементном составе, обуславливающим долгоживущую наведенную активность материалов. Информация о содержании элементов, образующих долгоживущие радионуклиды, позволяет определять наведенную активность заполнителей и вяжущих, а также различных бетонов на их основе после длительного облучения и выдержки расчетными методами. Полученные расчетно-экспериментальные результаты дадут возможность разработать рекомендации по выбору малоактивируемых материалов и бетонов для защитных конструкций АЭС.

Бетон представляет собой смесь вяжущего, крупного и мелкого заполнителей. В качестве основного вяжущего для приготовления бетонов защитных конструкций используется портландцемент. В качестве заполнителей широкое распространение получили гранит, известняк, серпентинит, кварцевый песок. Реже используются горные породы габбро, хромит, гематит и другие.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

В качестве экспериментального метода для исследований исходных компонентов бетонов использовался нейтронный активационный анализ. Этот метод является одним из наиболее точных при определении элементного состава материалов, а также позволяет имитировать условия облучения материалов на АЭС. Этот же метод применялся в работе ^{1/2} для определения химического состава и наведенной активности бетонов радиационной защиты реакторов.



Результаты наших исследований наиболее распространенных заполнителей показали ^{3/}, что основными радионуклидами, определяющими долгоживущую наведенную активность известняков и гранитов, являются: ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu, ⁶⁰Co и ¹³⁴Cs, серпентинитов - ⁶⁰Co. Перечисленные нуклиды образуются под действием тепловых и резонансных нейтронов по (n, γ)-реакции на изотопах элементов с очень малой концентрацией, в основном 10⁻⁴ - 10⁻⁶ масс.%, то есть выбор материалов для бетонов защитных конструкций необходимо производить с учетом содержания рассеянных химических элементов.

В данной работе представлены результаты исследований портландцемента, габбро (Урал, СССР), песчаника (Либерецкое месторождение; Дзезказган; Северный Кавказ), хромита (Урал), гематита (УССР), магнетитов (Казахстан, г.Рудный; Качканар) и стандартного песка Вольского карьера.

Анализ каждой партии заполнителей проводился по трем и более навескам, которые отбирались от гомогенизированных образцов материалов большого объема (0,5 - 1,0 кг). Вес каждой навески был от 300 до 700 мг. Для определения содержания элементов использовался аттестованный стандартный образец СГД-1А весом 500-700 мг.

Облучение образцов проводилось в канале пневмотранспорта реактора ИБР-2 ^{4/} с плотностью потока тепловых, резонансных и быстрых нейтронов 1,1·10¹², 0,23·10¹² и 1,4·10¹² н·см⁻²·с⁻¹ соответственно.

Для измерения спектров наведенного γ-излучения использовалась аппаратура, выполненная на основе Ge(Li)-детектора с разрешением 3 кэВ по линии 1332,4 кэВ ⁶⁰Co и снабженная измерительно-вычислительным модулем на базе ЭМ МERA-60 ^{5/}. Спектры γ-излучения образцов измерялись через 5-7 и 145-250 дней выдержки после окончания облучения. Обработка спектрометрической информации проводилась на ЭМ PDP-11/70 по программе ACTIV ^{6/}.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В измеренных спектрах наведенного γ-излучения от образцов отобранных материалов были идентифицированы следующие долгоживущие радионуклиды:

- портландцемент: ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu, ⁶⁰Co, ¹³⁴Cs, ¹⁸²Ta, ⁴⁶Sc;
- габбро: ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu, ⁶⁰Co, ⁴⁶Sc;
- хромит: ⁶⁰Co, ⁴⁶Sc, ⁵¹Cr;

гематит и магнетит: ⁵⁴Mn, ⁶⁰Co, ⁴⁶Sc.

Ядерные данные определенных нуклидов по активации тепловыми и резонансными нейтронами по реакции (n, γ) приведены в табл. I.

В спектрах от образцов кварцевого песка, измеренных после выдержки в течение 13 дней, долгоживущие нуклиды (T_{1/2} ≥ 2 дней) на уровне единиц ppm не наблюдались.

Ядерные данные нуклидов /7-9/

Таблица I

Нуклид	Распространенность, % материнского нуклида	Период полураспада	Сечение активации тепловыми нейтронами σ _T , б	I ₀ ^{ж)} / σ _T	Энергия (кэВ) и интенсивность (в скобках) γ-линии
⁴⁶ Sc	100	83,8 дн	25	0,5	889,4 (100)
⁵¹ Cr	4,3	26,8 дн	16	0,49	320 (9)
⁶⁰ Co	100	5,26 года	37,5	2,03	1173,2 (100)
¹³⁴ Cs	100	2,05 года	30	12	795,8 (88)
¹⁵² Eu	47,82	12 лет	5300	0,67	1407,9 (22)
¹⁵⁴ Eu	52,18	16 лет	400	3,81	1274,3 (37)
¹⁸² Ta	100	115 дн	22	32,5	1231 (11,6)
²⁴ Na	100	15 ч	0,528	0,66	1368,4 (100)
⁵⁹ Fe	0,33	45 дн	1,14	1,4	1291,6 (43,2)

ж) I₀ - резонансный интеграл в барнах.

Содержание элементов в вяжущем и заполнителях, образующих идентифицированные нуклиды, представлено в табл. 2. В этой же таблице приводятся данные о содержании других элементов, в частности, Na и Fe, а также данные стандартов горных пород "Алясковитый гранит" (СГ-2), "Альбитизированный гранит" (СГ-1А), "Доломитизированный известняк" (СИ-1) и "Эссекситовое габбро" (СГД-1А). Как видно из табл. 2, в портландцементе содержание европия составляет в среднем 2,42·10⁻⁴ масс.%, кобальта - 6,3·10⁻⁴, цезия - 1,18·10⁻⁴, тантала - 0,4·10⁻⁴ и скандия - 7,49·10⁻⁴ масс.%.
 В заполнителях содержание европия изменяется от < 0,01·10⁻⁴ (в хромите, гематите и магнетите) до 4,02·10⁻⁴ масс.% (в габбро). Максимальное содержание кобальта (~1·10⁻² масс.%) наблюдается в хромите и магнетите (см. также серпентинит).

Содержание элементов в исследуемых материалах, в масс. % X₁₀⁻⁴

Материал	#	Ba	Ca	Св	Ta	Sc	Cr, %	Na, %	Fe, %
I	2	3	4	5	6	7	8	9	10
портланд-цемент	1	1,82±0,18	6,74±0,50	0,77±0,26	0,23±0,08	6,75±0,70		0,14±0,02	1,22±0,15
	2	2,95±0,15	6,34±0,90	1,02±0,23	0,42±0,13	6,67±0,90		не опре-	1,62±0,21
	3	2,48±0,21	5,85±0,34	1,76±0,19	0,55±0,12	9,05±0,24		делялся	1,90±0,20
габбро	1	2,97±0,70	11,45±1,41	< 0,2	< 0,3	4,7±1,10		4,01±0,51	3,19±0,26
	2	3,97±0,30	3,13±0,42	< 0,2	< 0,3	4,41±0,30		4,20±0,43	4,01±0,31
	3	2,98±0,30	4,02±0,30	< 0,2	< 0,3	4,34±1,1		4,00±0,36	3,78±0,41
СПД-1А		6,00±1,0	40,00±0,5	4,0±0,6	1,1±0,4	27,0±3,0		2,09±0,04	5,83±0,1
песчанник	1	0,25±0,02	2,25±0,60	< 0,01	< 0,1	0,19±0,04		не опреде-	не опр.
	2	0,54±0,19	4,19±0,36	1,13±0,29	< 0,1	2,02±0,20		лялся	0,70±0,10
	3	0,40±0,18	0,48±0,16	< 0,1	< 0,1	0,25±0,09			0,07±0,01
хромит	1	< 0,01	109,0±4,0	< 0,1	< 0,4	8,01±0,76	15,7±1,2	0,03±0,001	6,48±0,06
гематит	1	< 0,01	2,10±0,38	< 0,1	< 0,4	2,70±0,39		0,05±0,004	58,44±7,64
магнетит	1	< 0,01	97,28±3,00	< 0,5	< 0,4	46,71±3,71		не опре-	52,14±1,52
	2	< 0,01	118,44±2,33	< 0,5	< 0,4	61,98±3,54		делялся	
известняк /з/	1	0,06±0,04	0,38±0,14	< 0,01	< 0,02	0,25±0,06		0,02±0,003	0,25±0,03
	2	0,06±0,02	0,41±0,06	< 0,01	< 0,02	0,18±0,03		0,02±0,003	3,18±0,3
	3	0,05±0,02	0,40±0,11	0,20±0,06	0,09±0,03	0,29±0,05		0,02±0,003	0,19±0,02
	4	0,05±0,01	0,31±0,04	0,05±0,01	0,08±0,02	0,22±0,02		0,02±0,003	0,07±0,01
	5	0,06±0,02	0,39±0,06	< 0,01	< 0,02	0,20±0,06		0,02±0,003	0,04±0,01
	6	0,06±0,02	0,24±0,06	0,32±0,17	< 0,02	0,22±0,11		0,02±0,003	0,04±0,01
СИ-1		0,23±0,02	3,00±0,3	-	0,11±0,01	0,56±0,05		0,058±0,01	0,60±0,05

Таблица 2 (продолжение)

I	2	3	4	5	6	7	8	9	10
граниты /з/	1	3,95±1,03	0,44±0,12	1,85±0,21	0,79±0,16	0,19±0,07		2,28±0,3	0,95±0,1
	2	0,85±0,17	5,0±0,89	2,90±0,4	0,84±0,21	5,53±0,75		2,76±0,3	5,34±0,2
	3	3,12±0,40	2,76±0,36	1,52±0,34	0,54±0,23	2,22±0,47		2,41±0,3	0,93±0,1
	4	4,04±0,80	5,1±0,70	0,93±0,29	0,57±0,31	6,00±0,68		1,57±0,3	5,46±0,3
	5	2,95±0,38	2,95±0,44	2,05±0,12	3,97±0,58	4,35±0,63		не-	1,04±0,1
	6	1,87±0,60	2,32±0,57	2,79±0,82	1,90±0,94	4,88±1,23		опре-	1,24±0,1
	7	0,78±0,35	2,95±0,90	1,12±0,23	2,76±0,99	2,93±0,20		делял-	2,32±0,1
	8	0,80±0,23	3,15±0,55	1,93±0,39	1,08±0,3	2,89±0,43		ся	3,65±0,2
СП-1А		0,5±0,05	1,40±0,3	12,0±3	26,0±6	5,0±1,0		4,05±0,04	1,14±0,04
СП-2		1,7±0,2	3,2±0,3	2,8±0,3	0,25±0,03	3,1±0,1		1,85±0,1	2,45±0,05
серпентиниты /з/	1	< 0,01	97,74±9,30	0,17±0,03	< 0,02	19,54±0,98	2,37±0,2	0,04	5,35±0,3
	2	< 0,01	91,45±1,55	0,28±0,02	< 0,02	15,11±1,02	3,15±0,3	не опре-	3,64±0,2
	3	< 0,01	107,03±7,72	2,48±0,40	< 0,02	13,42±1,10	2,66±0,3	делялся	4,04±0,2

Концентрация цезия и тантала в материалах находится в основном ниже $0,1 \cdot 10^{-4}$ масс. %.

4. РАСЧЕТЫ АКТИВАЦИИ СОСТАВЛЯЮЩИХ И БЕТОНОВ

Для выбора малоактивируемых материалов были выполнены расчеты удельной активности компонентов бетона после 30 лет облучения. В расчетах использовались экспериментальные результаты (табл. 2). Удельная наведенная активность (средняя) исследованных материалов, возникшая после 30-летнего облучения единичным потоком тепловых нейтронов, на рис. I представлена как функция времени выдержки после остановки реактора.

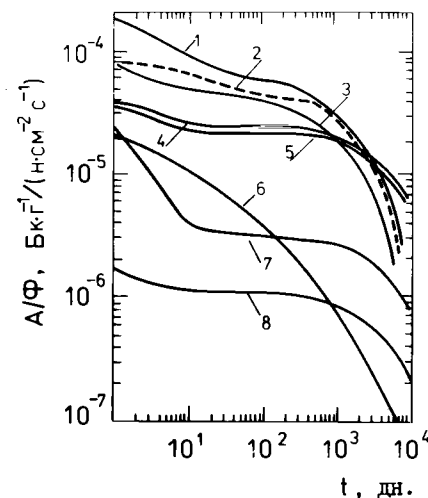


Рис. I. Изменение удельной наведенной активности вяжущего и заполнителей защитных бетонов после остановки реактора, бывшего в эксплуатации 30 лет.

1 - хромит, 2 - магнетит, 3 - серпентинит, 4 - портландцемент, 5 - гранит, 6 - гематит, 7 - песчаник, 8 - известняк.

Расчеты показывают, что удельная наведенная активность портландцемента через 0,5 года после прекращения облучения составляет $2,3 \cdot 10^{-5}$ Бк·г⁻¹, и в основном зависит от содержания в химическом составе вяжущего европия и кобальта. Доминирующей является активность ¹⁵²Eu. При выдержке 0,5 года вклад нуклида в удельную активность портландцемента на тепловых нейтронах составляет 80%. За время от 0,5 года до 20 лет удельная активность вяжущего уменьшается примерно в 3 раза.

Активацию рассматриваемых заполнителей также определяют главным образом радионуклиды, образовавшиеся на микроэлементах. Удельная активность облученного габбро и песчаника обусловлена ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu, ⁶⁰Co, активность рудных заполнителей хромита и магнетита - ⁶⁰Co. Наведенная активность гематита при выдержке до 0,5 года обусловлена ⁵⁹Fe. При выдержке более 0,5 года основным радионуклидом в облученном тепловыми нейтронами гематите является ⁶⁰Co.

Таким образом, результаты, представленные в данной работе и работе [3], показывают, что наведенная активность как заполнителей, так и вяжущего для защитных бетонов при временах облучения и выдержки, характерных для реакторных установок, подлежащих снятию с эксплуатации, определяется рассеянными химическими элементами Eu, Co, Cs. В количественном отношении наименее активируемыми заполнителями являются известняки. Обращает на себя внимание низкая удельная активность гематита, которая определяется в основном ⁶⁰Co. При выдержке более 10³ дней активность гематита даже ниже известняков.

Для разработки критериев подбора малоактивируемых составов бетонов для защитных конструкций ядерных реакторов (с учетом снятия их с эксплуатации) необходимо знать зависимость наведенной активности от количества вяжущего, расхода и типа используемого заполнителя.

Рассматривались бетоны на известняке, граните, гематите и серпентините (табл. 3). Объемная масса серпентинитового бетона 2,32 т/м³, расход портландцемента и серпентинита на 1 м³ составляет 330 и 1760 кг соответственно.

Таблица 3

Технологические составы бетонов /10/			Плотность свежесушеного бетона, кг/м ³
портландцемент	кварцевый песок	щебень	
306	624	1262 (гранит)	2391
306	624	1211 (известняк)	2340
300	630	2160 (гематит)	3273

В качестве мелкого заполнителя в гранитном, известняковом и гематитовом бетонах используется кварцевый песок. На основании результатов спектрометрических измерений, которые выявили отсутствие в песке долгоживущих нуклидов, мелкий заполнитель на активацию бетонов не влияет. Результаты расчетов активации бетонов при различных

временах выдержки после облучения тепловыми нейтронами с плотностью потока $1 \cdot 10^{10}$ н/(см²·с) в течение 30 лет показаны на рис.2.

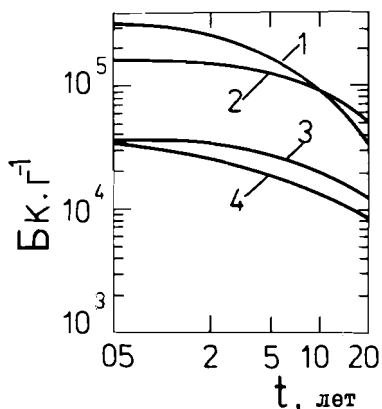


Рис.2. Изменение удельной активности бетонов после облучения в течение 30 лет потоком тепловых нейтронов $1 \cdot 10^{10}$ н·см⁻²·с⁻¹: 1 — бетон на серпентините, 2 — бетон на граните, 3 — бетон на известняке, 4 — бетон на гематите.

Основной вклад (60–65%) в удельную активность бетона на граните вносит крупный заполнитель. Удельная активность известнякового бетона до 90% определяется портландцементом, а серпентинитового — на 80–90% серпентинитовым заполнителем. Вклад портландцемента в наведенную активность гематитового бетона изменяется от 65% до 95% с 0,5 до 20 лет выдержки соответственно. Как видно из рисунка, менее активными являются бетоны на гематите и известняке. Наибольшая активность при выдержке до 10–12 лет наблюдается у серпентинитового бетона.

Важным аспектом проблемы прекращения эксплуатации реакторов и АЭС является планирование и уменьшение облучаемости персонала, занятого на демонтажных работах. Для определения интегральных доз гамма-излучения были проведены оценочные расчеты мощности дозы от защитных конструкций, выполненных из рассмотренных выше бетонов, облученных тепловыми нейтронами с плотностью потока $1 \cdot 10^{10}$ н/(см²·с). Мощность дозы определялась от полубесконечного пространства с учетом ослабления γ -излучения в источнике γ :

$$P = \frac{2\pi q K_\gamma}{\mu}$$

где P — мощность дозы, р/ч; q — удельная активность, мКи/см³; K_γ — гамма-постоянная, (р·см²)/(ч·мКи); μ — линейный коэффициент ослабления. Учитывая, что мощность дозы на 80–90% обусловлена ближними слоями (5–10 см), распределение активности по толщине принималось постоянным.

Результаты показывают, что мощность дозы от конструкций из серпентинитового бетона при выдержке 0,5 года оценивается величиной 12 р/ч. Вклад радионуклида ⁶⁰Со, образовавшегося в серпентините, составляет примерно 95%. От конструкции из бетона на граните мощность дозы составляет ~ 1,6 р/ч, из которых 75% приходится на гамма-кванты с энергией 0,96 – 1,4 МэВ, испускаемые нуклиды ¹⁵²Eu. Активированные конструкции защиты из гематитового бетона создают мощность дозы 0,6 р/ч, из бетона на известняке — 0,2 р/ч.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты проведенных расчетно-экспериментальных исследований свидетельствуют, что долгоживущая наведенная активность заполнителей вяжущего и бетонов на их основе для защитных конструкций ядерных реакторов после длительного облучения обусловлена радионуклидами, образующимися на изотопах микроэлементов европия, кобальта и цезия, входящих в состав материалов, под действием тепловых и резонансных нейтронов. Поэтому на стадии предпроектных исследований необходимо осуществлять выбор строительных материалов для сооружения АЭС с учетом концентрации в них этих элементов.

Наименее активируемыми из рассмотренных материалов являются известняк, гематит и бетоны на их основе.

Учитывая высокое содержание ⁶⁰Со, рекомендуется ограничить или исключить применение в конструкциях защиты ядерных реакторов таких материалов как магнетит, хромит, серпентинит.

Вклад портландцемента в наведенную активность бетонов на гематите и известняке составляет 65–95%. Следовательно, использование менее активируемого вяжущего может значительно уменьшить активность этих бетонов. Понизить наведенную активность портландцемента можно, выбирая сырье для его изготовления с меньшим содержанием микроэлементов европия, кобальта и цезия.

ЛИТЕРАТУРА

1. Radioactive waste management - a second bite at the cherry Atom (Gr.Brit), 1985, 343, p.23-24.
2. May S., Piccot D., Bergemann L. et al. Activation of Biological Shields in Proc.Intern. Decommissioning of Nuclear Power Plants. Luxemburg, 1984, p. 47-60.

3. Лавданский П.А., Назаров В.М., Стефанов Н.И., Фронтасьева М.В. Препринт ОИЯИ, Р14-87-56, Дубна, 1987.
4. 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.
5. Ермаков В.А., Зимин Г.Н., Назаров В.М. и др. Препринт ОИЯИ, I3-85-I6I, Дубна, 1985.
6. Zlokazov V.B. ACTIV - a program for automatic processing of Gamma-ray Spectra. Computer Physics Communications, 1982, v.28, p.27-40.
7. Sher R. 2200 m/s neutron activation cross section "Handbook on Nuclear activation cross sections", IAEA, Vienna, 1974, p.1-13.
8. Van der Linder R., De Corte F., Hoste J. Resonance integral applied to the multicomparator method in reactor neutron activation analysis. "Nuclear data in science and technology" v.2, IAEA, 1973, p.241-263.
9. Carder W., MacLahon T.D., Egan A. Talanta, vol.25, p.21-40, Pergamon Press, 1978.
10. Бродер Д.Л. и др. Бетон в защите ядерных установок. М.: Атомиздат, 1966.
11. Малкович В.П. Защита от ионизирующих излучений. М.: Энергоатомиздат, 1982.

Рукопись поступила в издательский отдел
24 марта 1988 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