



ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
ОТДЕЛ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ

P16 - 8899

В.Ф.Касьянов, М.М.Комочков,
Ю.Г.Тетерев, В.В.Мальков

НАВЕДЕННАЯ РАДИОАКТИВНОСТЬ
СТРОИТЕЛЬНЫХ И КОНСТРУКЦИОННЫХ
МАТЕРИАЛОВ В ЗАЛЕ СИНХРОЦИКЛОТРОНА
НА 680 МЭВ

P16 - 8899

В.Ф.Касьянов, М.М.Комочков,
Ю.Г.Тетерев, В.В.Мальков

НАВЕДЕННАЯ РАДИОАКТИВНОСТЬ
СТРОИТЕЛЬНЫХ И КОНСТРУКЦИОННЫХ
МАТЕРИАЛОВ В ЗАЛЕ СИНХРОЦИКЛОТРОНА
НА 680 МЭВ

Направлено в АЭ

Усовершенствование синхроциклотрона /1/ Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ с целью повышения интенсивности пучка протонов и вторичных частиц в несколько десятков раз привело к необходимости более точного установления степени радиационной опасности, обусловленной наведенной активностью, чем то, которое можно оценить по предшествующим работам /1-3/. В частности, это относится к оценке радиационной обстановки во время реконструкции ускорителя. Радиоактивное оборудование, строительные и конструкционные материалы, которые будут удалены из зала ускорителя, могут представлять опасность, поэтому встает вопрос о способах его временного хранения и захоронения. Для решения этой задачи необходимо знание состава радиоактивных изотопов и их активности в удаляемых материалах. Если для материалов, облучаемых протонами, наведенную активность можно рассчитать /3/, используя известные сечения активации, то для материалов, облучаемых рассеянными нейтронами, информации для расчетов явно недостаточно. Цель нашей работы - найти основные закономерности активации конструкционных и строительных материалов в поле рассеянного излучения нейтронов, которые позволили бы прогнозировать наведенную активность в любой точке зала ускорителя. Решение этой задачи осуществлялось путем определения радиоизотопного состава в облученных образцах материалов и измерения мощностей доз излучения от наведенной активности. Активность изотопов и мощности доз от наведенной активности сопоставлялись с плотностями потоков нейтронов различных энергетических групп, измеренных пороговыми детекторами. Работа выполнялась только для гамма-излучающих изотопов.

1. Образцы материалов, метод измерения и приборы

В качестве строительных и конструктивных материалов были взяты образцы железа, обычного бетона, меди и алюминия в различных точках зала ускорителя /рис. 1/. Каждому образцу был присвоен номер, соответствующий точке отбора. Измерение активности изотопов в образцах проводили с помощью спектрометров, один из которых имел в качестве детектора кристаллы NaJ(Tl) размером 80 x 60 мм, другой - Ge(Li) объемом 28 см³. Для оценки периодов полураспада изотопов измерения активности образцов проводились с помощью Ge(Li)-детектора спустя несколько часов и спустя 3 месяца после конца облучения. Изотопы идентифицировались путем сопоставления измеренных энергий гамма-квантов с их табличными значениями /4/. Ошибка относительных измерений активности не превышает 5%, ошибка значений активности в абсолютных единицах составляет 20%; сюда входит ошибка определения эффективности детекторов для измерения активности объемных образцов.

В каждой точке отбора образцов были оценены плотности потоков нейтронов различных энергетических групп с помощью активационных детекторов: индия, фосфора, алюминия и углерода. Использовались реакции: $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$, $^{31}\text{P}(n, \gamma)^{32}\text{P}$, $^{31}\text{P}(n, p)^{31}\text{Si}$, $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$, $^{27}\text{Al}(n, \text{spall})^{18}\text{F}$, $^{12}\text{C}(n, 2n)^{11}\text{C}$. Данные о сечениях этих реакций в зависимости от энергии нейтронов $\sigma(E)$ взяты из работ /5-7/. Значение плотностей потоков нейтронов Φ в абсолютных единицах определялись из соотношений:

$$\Phi = \frac{A}{N_{\text{я}} \bar{\sigma}}, \quad \bar{\sigma} = \frac{\int_{E_{\text{пор}}}^{E_{\text{макс}}} \sigma(E) f(E) dE}{\int_{E_{\text{пор}}}^{E_{\text{макс}}} f(E) dE}.$$

Здесь A - активность изотопа, образующегося в интересующей нас реакции в детекторе, $N_{\text{я}}$ - число ядер, $f(E)$ - спектр рассеянных нейтронов в зале ускорителя принимается в энергетическом интервале 0,4 эВ - 0,5 МэВ в форме E^{-1} , в интервале 0,5 - 12 МэВ, идентичным измеренному в работе /6/ и в интервале от 12 до 680 МэВ

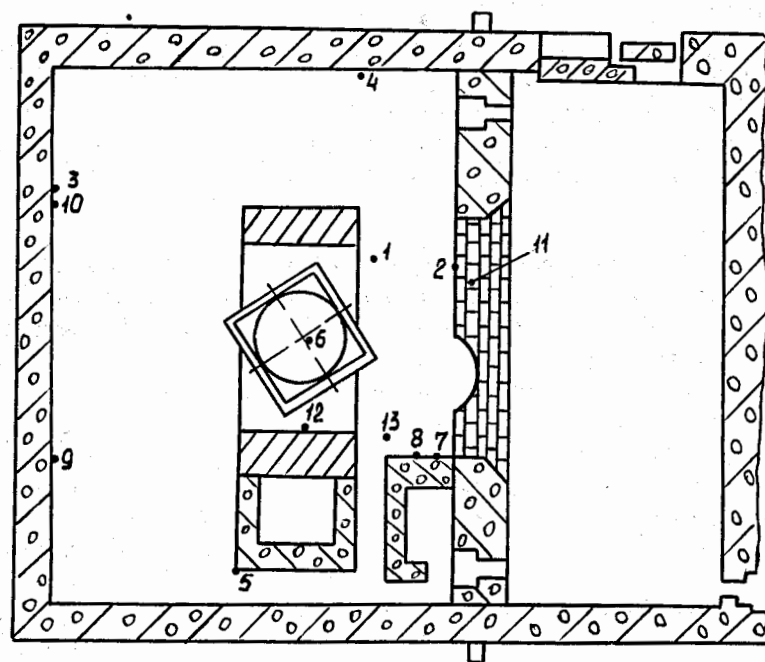
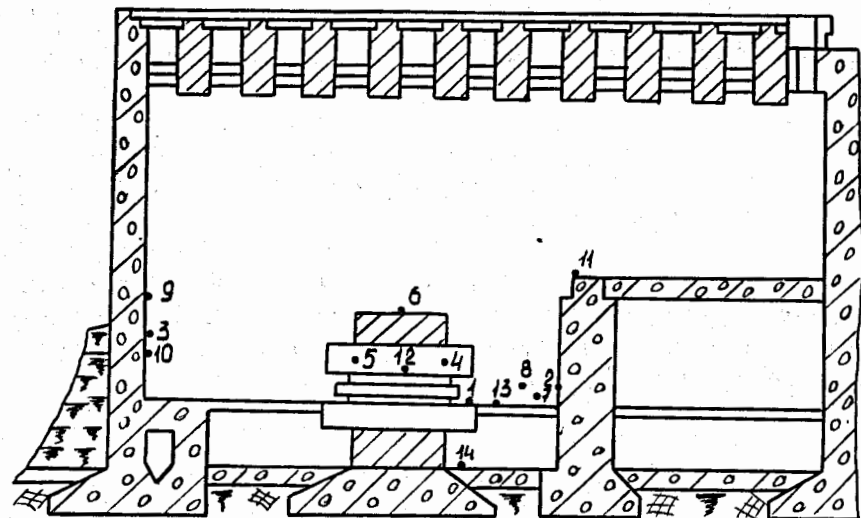


Рис. 1. Расположение мест отбора проб материалов на радиоактивность в зале синхротрона.

в форме $E^{-1,8/9}$, $E_{\text{макс}}$ и $E_{\text{пор}}$ - максимальная энергия нейтронов и энергия порога реакции, соответственно.

2. Результаты измерений

А. Плотности потоков нейтронов

Для синхроциклотрона на 680 МэВ в период облучения образцов и измерения плотности потоков нейтронов характерны три режима работы, соотношение между которыми по продолжительности следующее:

режим выведенного пучка, магнитное поле прямое, -40%;

режим внутренней мишени, магнитное поле прямое, -40%;

режим внутренней мишени, магнитное поле обратное, -20%;

средний ток протонов ~ 2 мкА.

Направление магнитного поля определяет направление вращения внутреннего пучка протонов.

Поле нейтронов в зале ускорителя формируется, в основном, из нейтронов, образованных при взаимодействии ускоряемых протонов на крайних орбитах с веществом вакуумной камеры. Основные измерения плотностей потоков нейтронов были выполнены при прямом магнитном поле, лишь релятивистские нейтроны $E > 20$ МэВ/ измерялись как при прямом, так и при обратном магнитных полях. Результаты измерений плотностей потоков нейтронов приведены в табл. 1.

По данным табл. 1 можно сделать качественный вывод о том, что спектр нейтронов в различных точках зала ускорителя неодинаков: самый жесткий спектр вблизи дуанта и его медианной плоскости, в точках без прямой видимости дуанта спектр нейтронов мягче.

Таблица 1
Плотности потоков Φ /нейтрон/см² сек/рассеянных нейтронов различных энергетических групп и активности A^* /расп/сек.г/ активационных детекторов Р и А1 при прямом магнитном поле ускорителя

Плотности потоков нейтронов или детектор и его активность	номера точек													
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
Тепловые $\times 10^{-5}$	9,7	4,8	2,8	2,4	1,6	1,1	4,1	3,2	1,2	2,8	1,1	1,2	1,3	1,3
Промежуточные на единицу энергии $\times 10^{-5}$	6,6	1,8	0,62	0,53	0,45	0,45	2,8	3,1	0,64	0,62	0,54	15,0	7,0	7,0
Быстрые $2 \div 20$ Мэв $\times 10^{-5}$	10,0	5,0	0,3	0,2	0,1	0,02	7,6	4,8	0,7	0,3	0,2	11,0	8,0	8,0
Фобфор, расп/сек г	6000	3300	220	140	93	13	5000	3200	450	220	130	7100	5300	5300
Алминий, расп/сек г	460	290	18	4,8	5,2	2,4	610	520	110	18	6,0	620	400	63
Быстрые $6 \div 20$ Мэв	$1,7 \cdot 10^5$	$8,8 \cdot 10^4$	$9,4 \cdot 10^3$	$2,7 \cdot 10^3$	$3,6 \cdot 10^3$	$1,7 \cdot 10^3$	■	■	$3,4 \cdot 10^3$	$9,4 \cdot 10^3$	$1,6 \cdot 10^3$	■	■	■
Релятивистские $E > 20$ Мэв, протоны впа.	$4,0 \cdot 10^5$	$3,0 \cdot 10^5$	$9,3 \cdot 10^3$	$1,8 \cdot 10^3$	$8,2 \cdot 10^2$	$1,5 \cdot 10^2$	$2,9 \cdot 10^2$	$9,0 \cdot 10^5$	$6,4 \cdot 10^4$	$9,3 \cdot 10^3$	$7,0 \cdot 10^3$	$7,6 \cdot 10^3$	$6,5 \cdot 10^5$	■
Релятивистские $E > 20$ Мэв, поле обратное J -мезоны	$3,2 \cdot 10^5$	$1,7 \cdot 10^4$	$7,6 \cdot 10^3$	$2,1 \cdot 10^3$	$2,0 \cdot 10^3$	$1,5 \cdot 10^2$	$1,8 \cdot 10^5$	$5,2 \cdot 10^4$	$2,2 \cdot 10^4$	$7,6 \cdot 10^3$	$6,5 \cdot 10^3$	$2,5 \cdot 10^5$	$3,6 \cdot 10^5$	■
Высоких энергий $E > 50$ Мэв	$6,6 \cdot 10^4$	$8,2 \cdot 10^4$	$< 1 \cdot 10^3$	$< 1 \cdot 10^3$	$< 1 \cdot 10^3$	$< 1 \cdot 10^3$	$3,7 \cdot 10^5$	$1,3 \cdot 10^5$	$3,6 \cdot 10^4$	$< 1 \cdot 10^3$	$2,2 \cdot 10^3$	$2,2 \cdot 10^3$	$1,2 \cdot 10^5$	■

* - Значения активности приведены для бесконечного времени облучения, время после конца облучения равно нулю.

** - Измерения плотности потока нейтронов в данном энергетическом интервале не проводились.

*** - Плотность потоков нейтронов определить не удалось.

Б. Наведенная активность

Данные по изотопному составу и активностям образцов железа приведены в табл. 2. Наличие изотопа ^{60}Co в образцах железа сделало целесообразным провести их активационный анализ. Результаты анализа приведены в табл. 3.

Изотопы ^{60}Co , ^{59}Fe и ^{56}Mn , присутствующие в образцах железа, образуются на тепловых и промежуточных нейтронах, с хорошо известными сечениями реакций 107 , поэтому был произведен расчет активности этих изотопов в образцах для сравнения с результатами измерений. В расчетах использовались данные измерений о плотностях потоков нейтронов и количествах примесей в железе. При расчете активности ^{56}Mn также учитывалась реакция $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$. Результаты измерений и расчетов согласуются вполне удовлетворительно.

Величина активности ^{54}Mn в образцах железа A_1 пропорциональна величине плотности потока быстрых нейтронов с энергиями от 2 до 20 МэВ Φ_{2-20} , измеренной активационным детектором из фосфора. Можно записать: $A_1 = k \Phi_{2-20}$, где k - коэффициент пропорциональности. Это можно объяснить тем, что порог образования ^{54}Mn из железа низкий и в области энергий эффективного образования этого изотопа форма спектра нейтронов изменяется незначительно в любых точках зала ускорителя.

Зависимость активностей изотопов ^{52}Mn и ^{48}U от плотностей потоков нейтронов найдена в форме:

$A_i = k_i (1 - 1,8m) \Phi_{>20}$, где A_i - активность i -го изотопа: ^{52}Mn или ^{48}U ; k_i - коэффициент пропорциональности; $\Phi_{>20}$ - плотность потока нейтронов с энергией $E > 20$ МэВ; m - коэффициент жесткости спектра нейтронов, определяемый как $m = \Phi_{>20} / \Phi_{2-20}$. Формула подобрана для $0,08 < m < 0,4$.

Пороги реакций образования ^{52}Mn и ^{48}U из железа высокие, и выходы этих изотопов зависят от формы спектра нейтронов в высокоэнергетической области.

Изотопы ^{51}Cr , ^{46}Sc , ^{52}Fe и ^{44m}Sc вносят малый вклад в радиационную опасность по сравнению с рассмотренными выше.

Таблица 2
Активность изотопов, наблюдаемых в железе*
/расч/з.сек/

Изотоп	номер образца					
	1	2	3	4	5	6
^{60}Co	15	4,5	14	10	9,2	1,7
^{59}Fe	46	18	6,0	6,7	5,7	4,2
^{56}Mn	1300	520	350	110	73	97
^{54}Mn	340	160	12	6,6	4,3	0,67
^{52}Mn	92	21	3,6	1,4	1,3	>0,3
^{52}Fe	21	1,7	1,2	>0,5	>0,5	>0,5
^{51}Cr	210	74	19	>10	>10	>10
^{48}U	47	9,9	2,2	0,72	>0,5	>0,5
^{46}Sc	10	7,0	1,2	>0,3	0,6	>0,3
^{44m}Sc	7,8	5,4	0,8	>0,5	>0,5	>0,5

*Значения активности приведены для бесконечного времени облучения, время после конца облучения равно нулю.

Таблица 3
Состав примесей в образцах железа / г/г/

Номер образца	Кобальт	Марганец	Хром
1	$4,2 \cdot 10^{-5}$	$3,1 \cdot 10^{-3}$	$5,3 \cdot 10^{-4}$
2	$3,0 \cdot 10^{-5}$	$3,1 \cdot 10^{-3}$	$6,4 \cdot 10^{-4}$
3	$2,8 \cdot 10^{-4}$	$4,3 \cdot 10^{-3}$	$3,3 \cdot 10^{-3}$
4	$1,8 \cdot 10^{-4}$	$2,1 \cdot 10^{-3}$	$4,6 \cdot 10^{-4}$
5	$2,0 \cdot 10^{-4}$	$2,2 \cdot 10^{-3}$	$3,4 \cdot 10^{-3}$
6	$5,1 \cdot 10^{-5}$	$3,3 \cdot 10^{-3}$	$9,3 \cdot 10^{-4}$

Идентифицированные изотопы в обычном бетоне и их удельные активности приведены в табл. 4. Наиболее опасными изотопами в бетоне являются ^{24}Na и ^{22}Na . Закономерности образования ^{24}Na в бетоне подробно описаны в работе /11/. При анализе результатов образования ^{22}Na в бетоне нам не удалось установить однозначную закономерность активности от плотности потока нейтронов. Это можно объяснить тем, что ^{22}Na в бетоне, в основном, образуется из кремния и натрия с сильно отличающимися порогами реакций и изменение спектра нейтронов сказывается на этих каналах образования по-разному. Кроме того, химический состав бетона одной и той же марки может быть различным /11/. Отсутствие простого соответствия между активностью ^{22}Na и плотностью потока нейтронов приводит к тому, что полученные результаты позволяют прогнозировать наведенную активность в обычном бетоне с неопределенностью, характеризующейся коэффициентом 2 /см. табл. 1 и 4/.

Изотопы ^{54}Mn и ^{56}Mn в образцах бетона образуются из примесей железа и марганца, поэтому, зная количество примесей, можно рассчитать их активность. Изотоп ^7Be образуется, в основном, из кислорода и углерода, присутствующих в бетоне. Вклад изотопа ^7Be в общую активность бетона незначителен.

Состав изотопов и их удельные активности в меди и алюминии приведены в табл. 5. Образцы меди и алюминия, а также некоторые образцы железа и обычного бетона облучались в примерно одинаковых полях нейтронов /см. табл. 1/. Это позволило сравнить разные материалы по их радиационной опасности от наведенной активности. Сравнивались суммы произведений удельной активности образуемых изотопов на их полные гамма-постоянные для каждого материала. Для железа, меди, алюминия и бетона соотношения этих величин при бесконечном облучении, соответственно, следующие: 10 : 20 : 10 : 1 через 1 час и 1 : 0,6 : 0,4 : 0,1 - через 90 дней после конца облучения.

Таблица 4
Активность изотопов, наблюдаемых в бетоне* /расп/сек.г/

Изотоп	н о м е р о б р а з ц а					
	7	8	9	10	11	14
⁵⁶ Mn	33	38	жж	жж	4,7	жж
⁵⁴ Mn	2,1	1,1	0,34	жж	0,095	жж
²⁴ Na	42	28	9,3	жж	4,5	жж
²² Na	11	6,6	2,1	0,64	0,19	0,75
⁷ Be	41	12	2,1	жж	жж	жж

Таблица 5
Активность изотопов, наблюдаемых в меди и алюминии*
/расп/г.сек/

М е д ь		А л ю м и н и й	
Изотоп	Активность	Изотоп	Активность
⁶⁴ Cu	2,3 10 ⁴	⁵⁶ Mn	990
⁶⁰ Co	45	⁵⁴ Mn	10
⁵⁸ Co	96	²⁴ Na	400
⁵⁷ Co	39	²² Na	50
⁵⁶ Co	9,4		
⁵⁴ Mn	17		

ж Значения активности приведено для бесконечного времени облучения, время после конца облучения равно нулю.

жж Активность данного изотопа не измерялась.

3. Соотношения между плотностями потоков нейтронов и мощностями доз от наведенной активности

Измерения мощностей доз гамма-излучения наведенной активности в зале синхроциклотрона в точках 4, 6, 9 и 13 /рис. 1/ проводились с помощью стандартных дозиметрических приборов спустя 5 дней после остановки ускорителя. Погрешность измерений приборов - 20%.

Кроме того, в этих же точках измеряли мощность дозы гамма-излучения непосредственно от конструкций /рис. 2/, оградив их защитой от влияния гамма-излучения других частей зала. Для сравнения с измеренными значениями были проведены расчеты мощностей доз от гамма-излучения наведенной активности. При этом использовался состав изотопов в конструкциях, определенный в данной работе. Расчет проводился с помощью формул из справочника^{/12/}. Результаты измерений и расчетов приведены в табл. 6.

Было проведено сопоставление данных о плотностях потоков нейтронов /табл. 1/ и мощностях доз от наведенной активности /табл. 6/, как это делалось в работах^{/1,2/}. Постоянство соотношения наблюдается между мощностью дозы гамма-излучения от наведенной активности и плотностью потока нейтронов с энергиями $2 < E_n < 20$ МэВ только для результатов измерений без защиты. Для точек с прямой видимостью вакуумной камеры соотношение, принимаемое в литературе^{/1,2/}, выполняется с точностью, характеризующейся коэффициентом 2. Установлено также, что для точек, затененных ярмом магнита, это соотношение в 3 раза больше.

Измерения показали, что мощность дозы гамма-излучения от наведенной активности дуанта является доминирующей только вблизи ускорителя; в других местах мощность дозы определяется излучением всех конструкций зала.

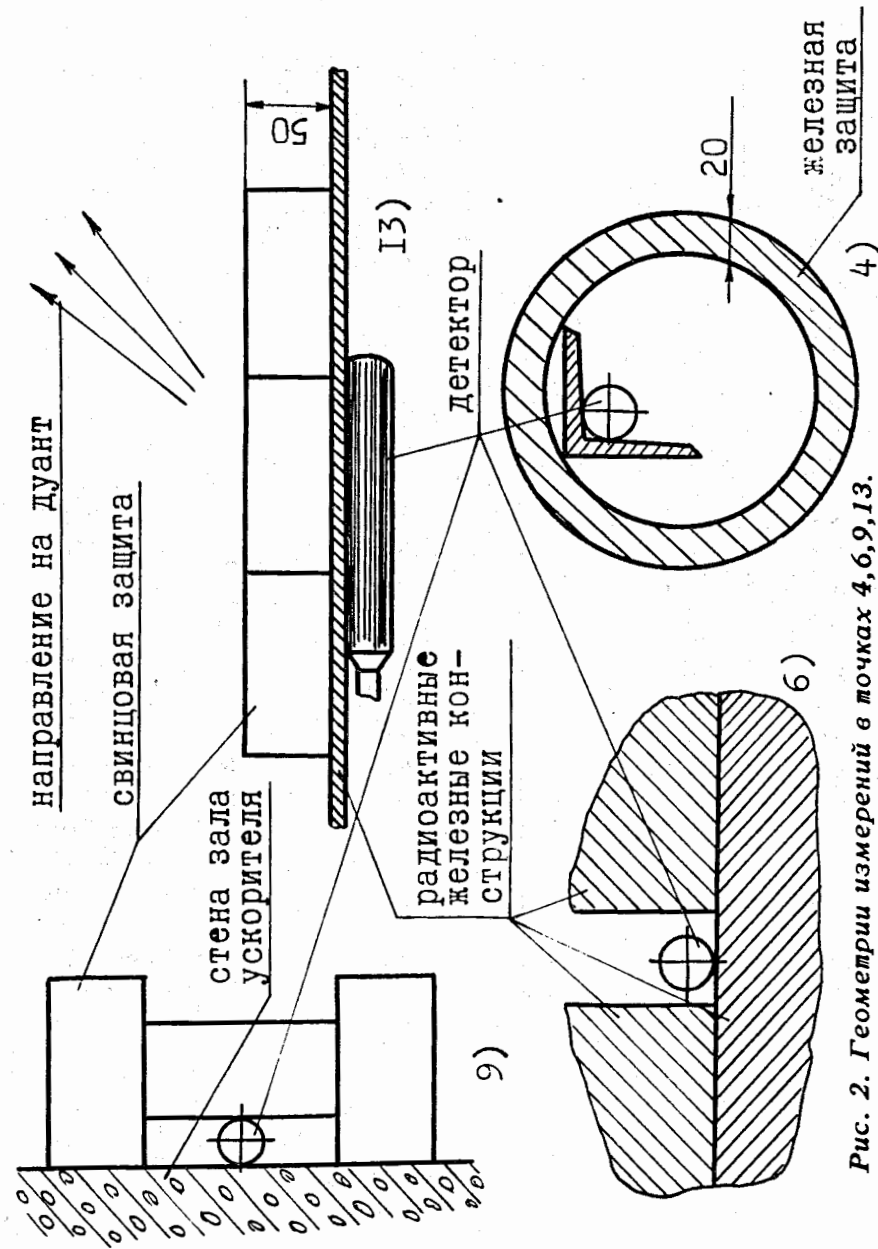


Рис. 2. Геометрии измерений в точках 4, 6, 9, 13.

Таблица 6
Плотности потоков нейтронов и мощности дозы гамма-излучения наведенной активности в зале синхроциклотрона ЛЯП ОИЯИ

№ точек	Мощность дозы* излучения, мкр/сек		Плотность потока нейтронов нейтрон/см ² сек в энергетическом интервале		Отношение мощности дозы к плотности потока нейтронов	Примечания	
	без защиты	с защитой	расчет	Э _n < 20, Э _n > 20, Мэв			
9	0,8	0,15	0,1	6,8·10 ⁴	6,4·10 ⁴	4,2·10 ⁵	Направленности излучения не исследовались Большой вклад в дозу со стороны дувента Направленности излучения не исследовались Ядро магнита экранирует часть излучения наведенной гамма-активности от других конструкций зала
13	13	8	3,1	7,9·10 ⁵	6,5·10 ⁵	5,9·10 ⁻⁵	
4	0,85	0,25	0,3	2,1·10 ⁴	2·10 ³	1,5·10 ⁻⁴	
6	0,25	0,05	0,1	7·10 ³	1,4·10 ²	1,3·10 ⁻⁴	

* Измерения проводились через 5 дней после остановки ускорителя.

** В литературных данных это отношение равно $9,35 \cdot 10^{-5}$ для нейтронов энергетического интервала $E_n > 20$ Мэв в работе /1/ и $7 \cdot 10^{-5}$ для $E_n > 100$ Мэв в работе /2/.

Заключение

В данной работе количественно определена зависимость наведенной гамма-активности изотопов в строительных и конструкционных материалах: железе, меди, обычном бетоне и алюминии - от плотности потока рассеянных нейтронов в зале синхроциклотрона на 680 МэВ; качественно показано, что изменение спектра нейтронов влияет на соотношение радиоактивных изотопов в облученных материалах. Спектрометрические измерения гамма-излучения образцов материалов, взятых из зала синхроциклотрона, показали, что основными радиоактивными изотопами с точки зрения радиационной опасности являются: в образцах железа - ⁵⁶Mn, ⁵⁴Mn и ⁶⁰Co, в образцах обычного бетона и алюминия - ²⁴Na и ²²Na, в образцах меди - ⁶⁴Cu, ⁶⁰Co и ⁵⁸Co. При облучении в одинаковых полях рассеянных нейтронов наибольшую радиационную опасность от наведенной активности представляют: через 1 час после конца продолжительного облучения - медь, через 3 месяца - железо.

Измерения мощности дозы в зале ускорителя показали, что принимаемое в литературе /1,2/ соотношение между плотностью потока нейтронов и мощностью дозы гамма-излучения наведенной активности находится в удовлетворительном согласии с нашими данными.

В заключение авторы благодарят Р.Арльта и Е.Л.Журавлеву за помощь в работе.

Литература

1. А.А.Глазов и др. ОИЯИ, 9-3211, Дубна, 1967.
2. *Radiation Problems Encountered in the Design of Multi-GeV Research Facilities*. CERN-71-21, 1971.
3. M.Barbier. *Induced Radioactivity*. Amsterdam-London, North-Holland, 1969.
4. M.A.Wakat. *Catalogue of γ -Rays*. Nuclear Data. V8A, No. 5-6 (1970).
5. *Neutron Fluence Measurements*. JAEA. Vienna, 1971 STI/DOC/10/107.

6. W.Kunz, J.Schintlmeister. Tabellen der Atomkerne Teil II, Band 2, Akademie - Verlag, Berlin, 1965.
7. W.Kunz, J.Schintlmeister. Tabellen der Atomkerne. Teil II, Band 1, Akademie - Verlag, Berlin, 1967.
8. Л.Р.Кимель и др. ОИЯИ, Р9-3403, Дубна, 1967.
9. Jorma T.Routti. Sec. Int. Conf. on Accelerator Dosimetry and Experience. California, November 5-7, 1969. USAEC Conf-691101, pp. 494-515.
10. И.А.Маслов, В.А.Лукницкий. Справочник по нейтронному активационному анализу. Наука, Л., 1971.
11. D.Nachtigall, S.Charalambus. Induced ^{24}Na Activity in the Concrete Shielding of High-Energy Accelerators. CERN No. 66-28, 1966.
12. Л.Р.Кимель, В.П.Машкович. Защита от ионизирующих излучений. Справочник. М., Атомиздат, 1972.

Рукопись поступила в издательский отдел
22 мая 1975 года.