

УДК 621.039.555 + 535.23.08

## РАДИОМЕТРИЧЕСКИЕ МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЯ УДЕЛЬНОЙ АКТИВНОСТИ РАДИОНУКЛИДОВ УРАНОВОГО РЯДА

*Волков В.Г., Степанов В.Е., Уруцкоев Л.И., Чесноков А.В. (РНЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)*

Решение задач в рамках Федеральной целевой программы «Обеспечение ядерной и радиационной безопасности России на 2008 год и на период до 2015 года» выявило необходимость разработки экспресс-методов и средств измерения удельной активности радионуклидов уранового ряда. Подобная необходимость обусловлена масштабом радиационного обследования отвалов урановых рудников и предприятий по переработке и обогащению урана. При разработке проектов реабилитации таких объектов опираются на результаты радиационного обследования, и чем детальнее и подробнее данные, тем легче оценить объемы и сроки реабилитации. С подобными проблемами столкнулись при разработке проектов реабилитации предприятий ОАО «Твэл», загрязненных объектов и территорий Кирово-Чепецкого химического комбината, ПО «Висмут» на территории Германии. Специалисты РНЦ «Курчатовский институт» в качестве возможного решения предложили радиометрические методы измерения удельной активности радионуклидов уранового ряда.

**Возможности полевой радиометрии для измерения поверхностной активности  $^{226}\text{Ra}$ .** Традиционным способом определения удельной активности радионуклидов уранового ряда в объектах окружающей среды является отбор и лабораторный анализ проб. Этот способ достаточно информативен, так как позволяет провести полное радиохимическое вскрытие проб и определить радионуклиды по измерению  $\gamma$ -,  $\beta$ - и  $\alpha$ -спектров. Однако низкая представительность, физическое и в большинстве случаев химическое воздействие на вещество пробы, значительные материальные и трудовые затраты при ее подготовке приводят к тому, что для сохранения достоверности результатов анализа требуется тщательность в проведении химических и физических процессов подготовки счетных образцов и спектрометрических измерений. Более того, изъятие пробы нарушает структуру самого объекта окружающей среды и, как следствие, распределение радионуклидов по глубине может быть определено только единожды и с очень большими затратами. Перечислен-

ные недостатки метода пробоотбора не умаляют его достоинств, пробоотбор является международно признанным методом оценки уровня загрязнения объектов.

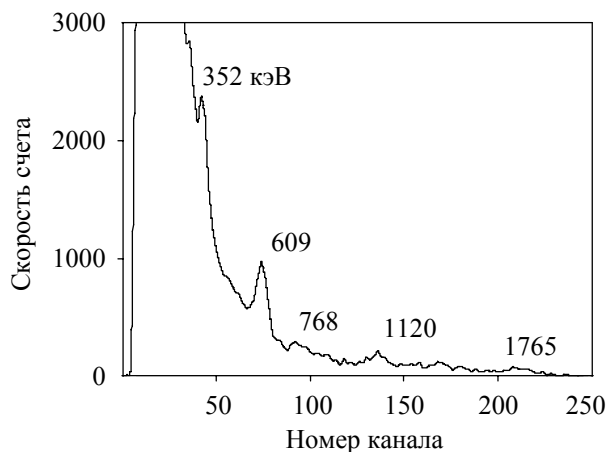
Естественно, при радиационном обследовании отвалов и хвостохранилищ пробоотбор должен быть задействован в целях верификации результатов и контроля радионуклидов, но только пробоотбор не может обеспечить представительность и достоверность, требуемые для разработки проектов ликвидации и реабилитации загрязненных объектов.

При радиационном обследовании таких объектов, как временные хранилища радиоактивных отходов РНЦ «Курчатовский институт», радиоактивно загрязненные объекты и территории Кирово-Чепецкого химического комбината, специалисты РНЦ «Курчатовский институт», МосНПО «Радон» использовали наряду с отбором проб радиометрические методы и средства измерения удельной активности радионуклидов [1—3]. В результате обследования были получены представительные данные, которые легли в основу разработки проекта реабилитации радиоактивно загрязненной территории и объектов РНЦ «Курчатовский институт» [4]. Похожий подход целесообразно реализовывать и при радиационном обследовании объектов, загрязненных радионуклидами уранового ряда. Преимуществом такого подхода является большой объем измеренной с помощью радиометрического метода информации о загрязнении территории и объектов, верифицированной результатами лабораторного анализа проб. Получение всего объема информации только по результатам пробоотбора потребовало бы многолетних усилий и больших материальных затрат, а только радиометрические измерения не позволили бы получить полные данные о радионуклидном составе и его изменении во времени и пространстве.

Радиометрический метод, с одной стороны, нацелен на масштабные пространственные измерения в местах, где нуклидный состав основных загрязнителей меняется слабо или не меняется совсем. Примером таких мест являются территории, загрязненные вследствие аварии на

Чернобыльской АЭС, пойма реки Течи и др. [5—7]. К подобному распределению радиоактивного загрязнения можно отнести отвалы урановых рудников и хвостохранилища комбинатов по переработке уранового сырья. На территории, загрязненной  $^{137}\text{Cs}$  в результате аварии на Чернобыльской АЭС, помимо поверхностной активности, радиометрическим методом оценена толщина слоя почвы, содержащего более 80% этого радионуклида [8, 9]. На территории, где загрязнение носит не поверхностный (загрязнение сосредоточено в верхних слоях почвы толщиной не более  $3\lambda$ ,  $\lambda$  — длина свободного пробега излучаемого фотона в почве), а объемный характер, например, временные хранилища отходов, шлакохранилища на Кирово-Чепецком химическом комбинате или шлакохранилища Подольского завода цветных металлов радиометрический метод применяли в геометрии каротажа [2]. Все эти особенности загрязнения урановых отвалов и хвостохранилищ необходимо было предусмотреть при разработке средств радиометрических измерений.

**Радиометрический метод измерения  $^{226}\text{Ra}$  на хвостохранилищах ПО «Висмут».** Впервые с проблемой определения удельной активности радионуклидов уранового ряда пришлось столкнуться при измерениях на отвалах ПО «Висмут», выполняемых совместно с немецкими специалистами. В целях выбора наиболее оптимального энергетического диапазона для определения удельной активности  $^{226}\text{Ra}$  был измерен спектр фотонного ионизирующего излучения поверхности отвалов с помощью прибора «Корад» [9]. На рис. 1 видно, что линия излучения  $^{226}\text{Ra}$  энергией 609 кэВ надежно диагностируется. Поэтому скорость счета в этом диапазо-



Р и с. 1. Спектр излучения поверхности отвалов урановых рудников ПО «Висмут», измеренный «Корадом»

не энергии может быть выбрана для измерения его удельной активности. Очевидно, что распределение радионуклидов в отвалах урановых рудников носит объемный характер. Известно, что скорость счета  $N$  детектора в пике полного поглощения обусловлена регистрацией только нерассеянного излучения и определяется потоком фотонов, падающим на детектор. Поток фотонов  $\Phi(\mathbf{r}, \Omega, E)$ , регистрируемый детектором с телесным углом коллиматора  $\Delta\Omega$  ( $\Delta\Omega = \pi\alpha^2$ ,  $\alpha$  — угол раствора коллиматора) в направлении  $\mathbf{r}$ , энергией  $E$ , которая соответствует фотопику испускаемого фотона, будет связан с удельной  $\sigma_m$  и объемной активностью  $\sigma_v$  радионуклида соотношениями

$$N = \Phi(\mathbf{r}, \Omega, E)\varepsilon\Delta\Omega = Aq\varepsilon\Delta\Omega = A\sigma_v\lambda_i\varepsilon\Delta\Omega n_i/4\pi = A\sigma_m\varepsilon\Delta\Omega n_i/4\pi\mu_i, \quad (1)$$

где  $\varepsilon$  — средняя эффективность регистрации фотонного излучения в телесном угле  $\Delta\Omega$  (телесный угол коллиматора детектора);  $A$  — коэффициент пропорциональности, определяемый при калибровке;  $q$  — усредненная активность по поверхности, попадающей в телесный угол коллиматора;  $n_i$  — квантовый выход на распад;  $\lambda_i$ ,  $\mu_i$  — длина свободного пробега фотонного ионизирующего излучения в веществе отвалов и массовый коэффициент поглощения ( $\mu_i = 0,08 \text{ см}^2/\text{г}$  в веществе отвалов для излучения энергией 609 кэВ) соответственно. Из выражения (1) следует, что с точностью до константы и геометрического фактора удельная активность  $\sigma_m$  определяется скоростью счета в пике полного поглощения. Для учета фоновой составляющей, обусловленной прохождением фотонов через боковые стенки свинцовой защиты, используется стандартная процедура перекрытия отверстия коллиматора свинцовой заглушкой с последующим измерением фоновой составляющей скорости счета  $N_z$ , которая затем вычитается из  $N_0$ . Таким образом, проводя в каждой точке два измерения —  $N_0$ ,  $N_z$  без и с заглушкой соответственно, можно определить скорость счета в фотопике как  $N = N_0 - N_z$ , по скорости счета в пике полного поглощения регистрируемого излучения — среднее по углу зрения коллиматора детектора удельную активность  $\sigma_m$  радионуклида, излучающего регистрируемое фотонное ионизирующее излучение.

Другой способ измерения удельной активности  $^{226}\text{Ra}$  по линии энергией 609 кэВ аналогич-

чен определению содержания  $^{137}\text{Cs}$  в почве [8, 9]. При измерениях использовали радиометр «Корад», представляющий собой 256-канальный гамма-спектрометр, позволяющий измерять и хранить в памяти поверхностную активность, содержание (концентрацию) нуклида в 1000 точках, а также записывать 44 измеренных спектра излучения. Прибор имел площадь сбора фотонов около  $1,5 \text{ м}^2$ , энергетическое разрешение детектора по линии 662 кэВ составляло 7,6%.

На основе численных расчетов методом Монте-Карло согласно методике измерения содержания  $^{226}\text{Ra}$  по скорости счета в отдельных энергетических диапазонах были выбраны следующие интервалы в аппаратном спектре коллимированного сцинтилляционного детектора: 300—500 кэВ — комптоновский диапазон, 550—670 кэВ — диапазон фотопика и 740—900 кэВ — дополнительный для учета вклада в основные диапазоны излучения других линий, возникающих при распаде урана, тория,  $^{40}\text{K}$  [8, 9]. Калибровку радиометра «Корад» и определение его чувствительности по энергии излучения проводили с помощью аттестованного плоского источника  $^{137}\text{Cs}$  со степенью однородности не хуже 6%.

Радиометр «Корад» запрограммирован на измерение поверхностной активности и содержания выбранного радионуклида, т.е. результаты измерений запоминаются в значениях поверхностной активности и содержания, потому эти данные необходимо было пересчитывать на удельную активность  $^{226}\text{Ra}$ .

Для пересчета поверхностной активности предполагали, что  $^{226}\text{Ra}$  распределен равномерно на глубине больше трех значений длины пробега фотона энергией 609 кэВ в веществе отвала  $h \geq 3\lambda_i = 3/\mu_i\rho$ , где  $\rho$  — плотность вещества в отвалах.

В этом случае удельная активность связана с поверхностной  $q$  отношением  $\sigma_m = q\mu_i$ .

Для определения чувствительности радиометра «Корад» по данным измерения содержания  $^{226}\text{Ra}$  и пересчета в удельную активность были проведены калибровочные измерения на специальных площадках, организованных специалистами Берлинского института контроля окружающей среды на отвалах ПО «Висмут». Эти площадки использовали для калибровки полевых ППД-спектрометров, с помощью которых измеряли удельную активность  $^{226}\text{Ra}$  по скоро-

сти счета в фотопиках отдельных линий. В частности, для определения удельной активности  $^{226}\text{Ra}$  полевые полупроводниковые детекторы калибровали по линиям 2204, 1847, 1766, 1509, 1407, 1378, 1238, 1121, 786, 609, 352, 295, 242 кэВ. Помимо  $^{226}\text{Ra}$ , идентифицировали  $^{40}\text{K}$  по линии 1460 кэВ,  $^{232}\text{Th}$  по линиям 2614, 911, 583 кэВ. Площадки представляли собой плоские поверхности размером  $20 \times 20 \text{ м}$ , на которых с шагом  $2 \times 2 \text{ м}$  были отобраны пробы отвалов. С каждой площадки было отобрано и в лабораторных условиях измерено 100 проб, что позволяло судить об однородности распределения радионуклидов по поверхности.

Сравнение данных пробоотбора с результатами измерения прибором «Корад» на площадке № 1, являющейся отвалами из шахты, представлено в табл. 1.

Таблица 1. Результаты лабораторного анализа проб и данные, полученные радиометром «Корад», на калибровочной площадке № 1 ПО «Висмут»

| Лабораторный анализ проб               |                                          |                                          | Измерения радиометром «Корад» ( $\pm 20\%$ )         |                                                                   |
|----------------------------------------|------------------------------------------|------------------------------------------|------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------|
|                                        |                                          |                                          | Удельная активность $^{226}\text{Ra}$ , определенная |                                                                   |
| $^{40}\text{K}$ , Бк/кг ( $\pm 23\%$ ) | $^{224}\text{Ra}$ , Бк/кг ( $\pm 25\%$ ) | $^{226}\text{Ra}$ , Бк/кг ( $\pm 20\%$ ) | по скорости в фотопике, Бк/кг                        | по содержанию $^{226}\text{Ra}$ , $\times 10^5$ Бк/м <sup>2</sup> |
| 620                                    | 45                                       | 262                                      | 249                                                  | 1,2                                                               |
| 680                                    | 43                                       | 350                                      | 316                                                  | 1,35                                                              |
| 710                                    | 44                                       | 289                                      | 268                                                  | 1,18                                                              |

Калибровочные измерения показали, что удельная активность и содержание  $C$   $^{226}\text{Ra}$  связаны соотношением

$$\sigma_m = \alpha C,$$

где  $\alpha = 2,4 \cdot 10^{-3} \text{ (Бк/кг)/(Бк/м}^2\text{)}$ . Те же соотношения были получены на калибровочной площадке № 2, являющейся отвалами производства по химическому разделению урана.

**Сравнение результатов полевой спектрометрии и полевой радиометрии.** Помимо калибровочных площадок, измерения проводили также на отвалах с неизвестной удельной активностью. На участках с неизвестной активностью для верификации результатов радиометра «Корад» измеряли удельную активность  $^{226}\text{Ra}$  с помощью полевого полупроводникового детектора, устанавливаемого на высоте 1 м от поверх-

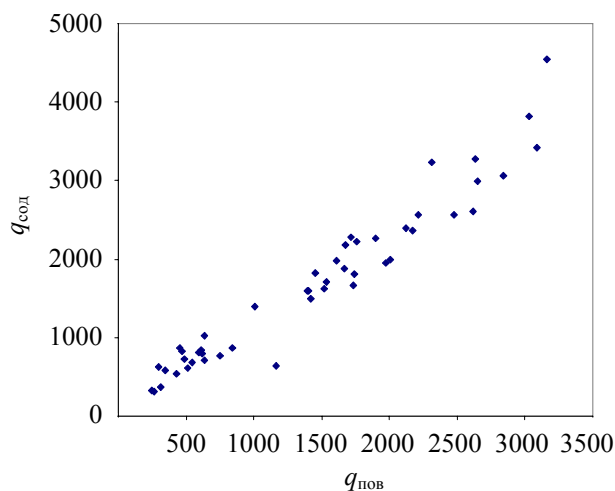
ности земли. Для защиты детектора от рассеянного излучения использовали свинцовый коллиматор толщиной 1 см.

Всего радиометром «Корад» было выполнено около 50 измерений в пяти местах, время экспозиции варьировалось от 100 до 1800 с в зависимости от удельной активности и мощности эквивалентной дозы в месте измерения, которая изменялась от 0,18 до 0,7 мкЗв/ч. Время экспозиции в измерениях составляло 1800 с.

Сравнение показывает, что, как и ожидалось, удельная активность, определенная по поверхностной активности  $q_{\text{пов}}$ , меньше, чем по содержанию  $q_{\text{сод}}$  (рис. 2). Это объясняется поглощением нерассеянного излучения в толще вещества отвалов с ростом глубины проникновения радионуклидов.

Удельная активность, определенная по измеренному радиометром «Корад» содержанию, хорошо коррелирует с результатами полупроводниковой спектрометрии. Это объясняется тем, что приборы калибровали на одних и тех же площадках, в то время как данные, полученные из измерений поверхностной активности при калибровке, сразу были немного заниженными. Между тем в пределах погрешности измерений основная масса данных имеет хорошее совпадение, что показывает возможность применения методов коллимированной радиометрии для измерения удельной активности  $^{226}\text{Ra}$  в отвалах урановых производств. Следует отметить достаточно широкий динамический диапазон измерений, достигающий двух порядков величины.

Результаты полевой полупроводниковой спектрометрии были получены при большем времени экспозиции, чем полевой коллимиро-



Р и с. 2. Удельная активность  $q_{^{226}\text{Ra}}$ , измеренная по поверхностной активности и содержанию

ванной радиометрии. Полупроводниковый детектор по цене превышает стоимость радиометра «Корад» в десятки раз, требует использования жидкого азота и средств доставки к месту измерения. В настоящее время массу коллиматора для радиометра «Корад» удалось снизить до 8—9 кг за счет применения сборки сцинтиллятор—фотодиод, что сделало прибор легкотранспортабельным. Пространственное разрешение «Корада» около  $1,5 \text{ м}^2$ , что как минимум в 10 раз меньше пространственного разрешения полевого полупроводникового детектора. Высокая производительность измерений, возможность одновременного использования нескольких приборов ввиду их относительной дешевизны, большой объем результатов измерений существенно повышают достоверность данных. Поэтому методы полевой радиометрии могут служить альтернативой полевой спектрометрии при радиационном обследовании отвалов урановых производств.

Измерения, выполненные на фоновой площадке ПО «Висмут», позволили определить предел чувствительности метода, который составил  $\sim 200$  и  $\sim 100$  Бк/кг для  $^{40}\text{K}$  и  $^{226}\text{Ra}$  соответственно, что достаточно для картирования отвалов рудников и измерения удельной активности природных радионуклидов в стройматериалах (табл. 2).

Т а б л и ц а 2. Сравнение результатов измерений пробоотбора и радиометром «Корад» на фоновой площадке ПО «Висмут», Бк/кг

| $^{40}\text{K}$                  | $^{226}\text{Ra}$ |
|----------------------------------|-------------------|
| Пробоотбор ( $\pm 35\%$ )        |                   |
| 240                              | 40                |
| Радиометр «Корад» ( $\pm 25\%$ ) |                   |
| 220                              | 67                |

**Методы измерений на радиационно опасных объектах Кирово-Чепецкого химического комбината.** С принципиально иной ситуацией столкнулись при радиационном обследовании радиоактивно загрязненных территорий и объектов Кирово-Чепецкого химического комбината. Последние годы своего существования цеха по производству тетра- и гексафторида урана работали на обедненном урановом сырье. Очевидно, что за столь короткие сроки из продуктов распада уранового ряда могло наступить радиационное равновесие только  $^{234m}\text{Pa}$ , что дало воз-

возможность определить удельную активность  $^{238}\text{U}$  по линиям энергией 765 и 1001 кэВ. Несмотря на то, что интенсивность этих линий в 20 с лишним раз меньше интенсивности линий  $^{226}\text{Ra}$ , в его отсутствие они хорошо идентифицировались в спектре излучения загрязненных объектов. По скорости счета радиометра в фотопиках этих линий после калибровки на эталонных источниках измеряли удельную активность  $^{238}\text{U}$  [10].

В качестве некоторого заключения можно отметить, что последние модификации радиометра «Корад», названные «Корад-М», в которых в качестве регистрирующего блока используется спектрометр «Колибри», позволяют запоминать сотни измеренных спектров. Обработка спектральной информации в лабораторных условиях позволяет применять современные численные методы и для известного набора радионуклидов по скорости счета в выбранных спектральных диапазонах определять их удельную активность. В частности, на основе рассчитанных методом Монте-Карло аппаратных спектров коллимированного детектора и калибровки на эталонном источнике были определены энергетические диапазоны спектра излучения, для которых была найдена обратная матрица расчета удельной активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  по их вкладу в скорость счета в этих диапазонах. Так, в диапазоне 265—840 кэВ превалирует излучение  $^{226}\text{Ra}$ , 940—970 кэВ — основной диапазон излучения для определения удельной активности  $^{232}\text{Th}$ , 970—1550 кэВ — диапазон, определяющий вклад  $^{40}\text{K}$  в суммарный спектр.

**Заключение.** Результаты измерений, выполненных на загрязненных радионуклидами уранового ряда территориях и объектах, показали принципиальную возможность разработки эффективных радиометрических методов определения их удельной активности непосредственно на поверхности отвалов урановых рудников и производств по переработке уранового сырья. Методы будут востребованы при радиационных обследованиях объектов, загрязненных этими радионуклидами. Очевидно, что потребуются адаптация радиометрических методов к конкретным условиям обследуемого объекта, но для условий отвалов урановых производств возникающие трудности могут быть решены для стандартного набора радионуклидов и отдельных данных об их распределении по глубине. Одновременное применение спектрометрических и радиометрических методов, их сравнение в отдельных точках с данными пробоотбора по-

зволят собрать достоверный объем информации, необходимой для разработки проектов вывода из эксплуатации и реабилитации урановых рудников и мощностей по переработке уранового сырья.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Волков В.Г., Потапов В.Н., Иванов О.П. и др. Новые приборы и системы радиационного контроля и их использование при проведении реабилитационных работ на территории временных хранилищ радиоактивных отходов РНЦ «КИ». — В сб.: 7-я Межд. конф. «Безопасность ядерных технологий: обращение с РАО». Санкт-Петербург, 27 сентября — 1 октября 2004 г., с. 371—378.
2. Волкович А.Г., Волков В.Г., Данилович А.С. и др. Применение новых приборов для сортировки РАО в реабилитационных работах в РНЦ «Курчатовский институт». — В сб.: 8-я Межд. конф. «Безопасность ядерных технологий: экономика безопасности и обращение с источниками ионизирующих излучений». Санкт-Петербург, 26 сентября — 30 сентября 2005 г., с. 135—141.
3. Danilovich A.S., Ivanov O.P., Potapov V.N. et al. Instruments and methods for precise field measurements of soil radionuclide contamination. — In: Proc. of Radioecology and Environmental Radioactivity. Bergen, Norway, 15—20 June 2008, Pt 2, p. 155—158.
4. Волков В.Г., Городецкий Г.Г., Зверков Ю.А. и др. Проект Реабилитация: состояние и проблемы. — В сб.: 6-я Межд. конф. «Радиационная безопасность: транспортирование радиоактивных материалов АТОМТРАНС-2003». Санкт-Петербург, 22—26 сентября 2003 г., с. 90—111.
5. Govorun A.P., Ivanov O.P., Liksonov V.I. et al. Collimated detector technique for measuring a  $^{137}\text{Cs}$  deposit in soil under a clean protected layer. — Appl. Rad. and Isot., 1997, v. 48, № 9, p. 1265—1272.
6. Говорун А.П., Чесноков А.В., Щербак С.Б. Распределение концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в пойме реки Течи в ареале села Муслюмово. — Атомная энергия, 1998, т. 84, вып. 6, с. 545—550.
7. Chesnokov A.V., Govorun A.P., Ivanitskaya M.V. et al. Cs-137 contamination of Techa flood plain in brodokalmak settlement. — Appl. Rad. and Isot., 1999, v. 50, p. 1121—1129.
8. Govorun A.P., Ivanov O.P., Liksonov V.I. et al. Method and device to measure  $^{137}\text{Cs}$  soil contamination in-situ. — Nucl. Instrum. Meth. in Phys. Res. A, 1999, v. 420, № 1—2, p. 336—344.
9. Говорун А.П., Иванов О.П., Ликсонов В.И. и др. Прибор для измерения поверхностной активности  $^{137}\text{Cs}$  в почве методом полевой радиометрии. — Контроль и диагностика, 1999, № 4, с. 23—27.
10. Зверков Ю.А., Волков В.Г., Волкович А.Г. и др. Радиационное обследование радиоактивно загрязненных объектов и территорий Кирово-Чепецкого химического комбината. — В сб.: Ядерная и радиационная безопасность России, 2008, вып. 4, ч. 3, с. 17—36.

Поступила в Редакцию 9.06.09