

УДК 621.039.51

## ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЙ МЕТОД КОНТРОЛЯ АКТИВНОСТИ И НУКЛИДНОГО СОСТАВА НИЗКОАКТИВНЫХ ТВЕРДЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

П.М. Гаврилов, А.Г. Кохомский, К.М. Измestьев, И.Н. Сеелев, М.Е. Силаев\*

ФГУП «Сибирский химический комбинат», ЗАТО Северск Томской обл.

\*Томский политехнический университет

E-mail: silaev@k21.phtd.tpu.ru

Разработан гамма-спектрометрический метод контроля низкоактивных твердых радиоактивных отходов, основанный на непосредственном измерении активности и нуклидного состава. Измерения проводятся в геометрии стандартного стального контейнера объемом 200 л, в который помещаются низкоактивные отходы. Для учета неравномерности распределения твердых радиоактивных отходов по измеряемой геометрии используется специальная вращающаяся площадка, на которую помещается контейнер. Проведена метрологическая аттестация и определены основные погрешности предлагаемого метода для доверительной вероятности 95 %.

### Введение

Для предприятий атомной отрасли повышение безопасности процессов обращения с радиоактивными отходами является одним из приоритетных направлений деятельности. Ключевым моментом в решении задач, направленных на повышение безопасности, является разработка и внедрение современных методов радиационного контроля, позволяющих на всех этапах обращения с отходами определять их основные характеристики (активность и радионуклидный состав) [1, 2].

В настоящее время радиационный контроль твердых радиоактивных отходов (ТРО) низкой и средней активности, образующихся в ходе производственной деятельности на большинстве предприятий атомной отрасли, осуществляется путем измерения мощности дозы гамма-излучения и величины поверхностного радиоактивного загрязнения. Как правило, метрологически аттестованные способы контроля активности и нуклидного состава ТРО, учитывающие неравномерность распределения активности твердых отходов по измеряемой геометрии на предприятиях отсутствуют.

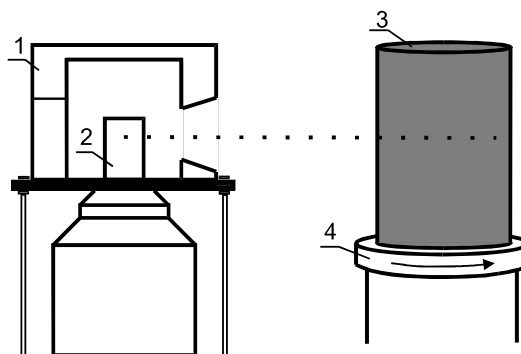
Целью настоящей работы являлась разработка гамма-спектрометрического метода контроля активности и нуклидного состава низкоактивных ТРО, включающего соответствующее методическое и метрологическое обеспечение.

### Гамма-спектрометрический метод контроля активности и нуклидного состава низкоактивных твердых радиоактивных отходов

Предлагаемый метод основан на непосредственном измерении активности и нуклидного состава отходов на гамма-спектрометре с расширенной неопределенностью (при доверительной вероятности  $P=0,95$ ) от 30 до 60 % в энергетическом диапазоне от 80 до 1500 кэВ и диапазоне активности ТРО от  $10^6$  Бк/кг и более.

Измерения проводятся в геометрии стандартного стального цилиндрического контейнера объемом 200 л, предназначенного для длительного

хранения (захоронения) низкоактивных отходов. Контейнер с радиоактивными отходами (РАО) устанавливается непосредственно перед полупроводниковым детектором гамма-излучения, помещенным в свинцовую защиту с коллимирующим устройством (рисунок). Расстояние от контейнера с ТРО до детектора составляет 1 м, при этом статистическая неопределенность измерения счетного образца не превышает 40 %. Коллиматор в свинцовой защите изготавливается таким образом, чтобы угол видимости охватывал весь объем контейнера. Ось центра коллиматора находится на уровне эффективного центра детектора гамма-излучения. Для учета неравномерности распределения отходов по измеряемой геометрии предложено использовать вращающуюся площадку, на которую помещается контейнер с РАО. Спектр гамма-излучения снимается при вращении площадки.



**Рисунок.** Стенд радиационного контроля активности низкоактивных ТРО: 1) свинцовая защита с коллиматором; 2) Ge-детектор; 3) стандартный стальной контейнер с отходами; 4) электромеханическое поворотное устройство

Сущность метода измерений заключается в регистрации и последующей обработке аппаратного спектра гамма-излучения счетного образца ТРО спектрометрическим комплексом. Измерения выполняются с помощью гамма-спектрометра производства группы предприятий «Грин Стар» с полупроводниковым германиевым детектором [3]. Особенностью предлагаемого гамма-спектрометриче-

ского метода измерений является то, что зависимость эффективности регистрации гамма-излучения от его энергии определяется на двух фиксированных расстояниях от детектора в геометрии «точка» на основе аппаратных спектров образцовых стандартных источников гамма-излучения. В дальнейшем, используя расчетную модель (статистический метод Монте-Карло) производится пересчет эффективности регистрации гамма-излучения в зависимости от его энергии для геометрии «контейнер с ТРО» (объемный источник с учетом самопоглощения), при этом в расчете используются геометрические параметры контейнера, плотность и материальный состав радиоактивных отходов [3]. Метод Монте-Карло позволяет математически точно построить модель переноса гамма-квантов от источника к объему детектора разной формы и рассчитать вероятность регистрации в детекторе фотонов гамма-излучения разных энергий.

Перед измерениями контейнер с отходами взвешивают и помещают на вращающуюся вокруг вертикальной оси площадку для измерений. При помощи гамма-спектрометра измеряют скорость счета для дискретных энергий гамма-излучения ТРО в установленном энергетическом диапазоне. Измерения проводят в геометрии «контейнер с ТРО» при вращении площадки. Идентификацию и расчет удельной активности по гамма-излучению отходов, находящихся в контейнере, проводят с помощью специального программного обеспечения, используя измеренные скорости счета в пиках полного поглощения, определенную эффективность регистрации спектрометра и значение массы отходов.

В качестве основного метода анализа в программе используется разложение экспериментального спектра гамма-излучения по моделям спектров нуклидов, включенных в рабочий список [3]. Предлагаемый метод анализа имеет ряд преимуществ перед традиционным поиском пиков с последующей идентификацией. Во-первых, это большая устойчивость идентификации нуклидов, имеющих много линий, во-вторых – надежное определение нуклидов, не имеющих отдельных линий, а только входящих в мультиплеты, в-третьих – высокая чувствительность определения минимальных активностей, т. к. из анализа практически исключена процедура поиска пиков в обычном понимании. В тоже время предлагаемый подход предъявляет повышенные требования к точности энергетической калибровки и полноте рабочего списка нуклидов.

#### **Метрологическая аттестация гамма-спектрометрического метода и анализ результатов аттестации**

С целью экспериментальной проверки достоверности определения активности и нуклидного состава гамма-излучающих нуклидов низкоактивных ТРО при помощи гамма-спектрометра по предлагаемому методу, а также для установления границ неопределенностей (погрешностей) была проведе-

на метрологическая аттестация. Определению подлежала неопределенность измерения активности гамма-излучающих нуклидов низкоактивных ТРО в геометрии стального контейнера (200 л).

Методика метрологической аттестации заключалась в следующем:

1. подготавливали образцовые источники специального назначения (ОИСН) в геометрии «контейнер» с различным распределением по геометрии контейнера аттестованных источников на основе радионуклидов Eu-152 и Ba-133 с активностью порядка  $4 \cdot 10^6$  Бк и различным значением плотности матричного материала отходов;
2. при помощи гамма-спектрометра измеряли скорость счета для дискретных энергий гамма-излучения ОИСН в геометрии «контейнер»; измерения проводили при вращении электромеханического поворотного устройства;
3. с помощью программного обеспечения проводили идентификацию и расчет активности гамма-излучения образцовых источников специального назначения в геометрии «контейнер» и минимальную детектируемую активность, определяемую спектрометрическим комплексом.

Для аттестации были подготовлены три типа образцовых источников специального назначения (ОИСН) в геометрии «контейнер», изготовленные с помощью паспортизованных источников излучения:

1. без поглощающего материала (воздух) в свободном объеме контейнера (в контейнер помещались последовательно дистанционирующие слои из картона и точечные источники);
2. с поглощающим материалом (в контейнер заливали воду, а точечные источники фиксировали в ампулах, закрепленных на проволоке; распределение точечных источников внутри контейнера производилось смещением грузов и поплавков (ампул) внутри контейнера);
3. с поглощающим материалом различной насыпной плотностью (в контейнер последовательно помещали нерадиоактивный материал твердых отходов (опилки, чистая спецодежда, пленка, картон, пластикат, металлические пластины, трубы и т. д.) и точечные источники; количество чередующихся слоев нерадиоактивного материала твердых отходов и точечных образцовых источников было таким, что насыпная плотность и вес контейнера соответствовали типовой насыпной плотности и весу контейнера с ТРО, используемым на Сибирском химическом комбинате). Было изготовлено несколько образцовых источников специального назначения в геометрии «контейнер» с различной насыпной плотностью.

Измерение скорости счета для дискретных энергий гамма-излучения образцовых источников специального назначения в геометрии «контейнер» производилось для каждого геометрического распределения источников и плотности помещенного внутрь контейнера материала.

Обработка результатов аттестационных измерений заключалась в сравнении паспортных значений активности радионуклидов образцовых источников, используемых для подготовки ОИСН в геометрии «контейнер» (из свидетельств о поверке используемых источников) со средними значениями измеренной активности радионуклидов образцовых источников специального назначения в геометрии «контейнер», при этом проверялось соблюдение условия [4, 5]:

$$\left| \bar{A}_0 - A_0 \right| \leq \sqrt{U(P)^2 + \delta(A)^2}, \quad (1)$$

где  $\bar{A}_0$  – среднее значение активности образцового источника специального назначения в геометрии «контейнер», полученное в результате расчета, Бк;  $A_0$  – значение активности образцового источника (из свидетельства о поверке источника), Бк;  $U(P)$  – расширенная неопределенность расчета значения активности образцового источника специального назначения в геометрии «контейнер» с доверительной вероятностью 95 %, Бк;  $\delta(A)$  – погрешность значения активности образцового источника (из свидетельства о поверке источника), Бк.

Результаты сравнения паспортных значений активности радионуклидов образцовых источников со средними значениями измеренной активности радионуклидов в геометрии «контейнер» представлены в табл. 1–3.

**Таблица 1.** Отличия в значениях активности радионуклидов, находящихся в контейнере на расстоянии 1 м от детектора (без поглощающего материала)

Нуклид	$\frac{ A_0 - \bar{A}_0 }{A_0}, \%$	$\frac{U_A}{A_0}, \%$	Геометрия расположения источников в контейнере
Eu-152	0,39	22,93	В геометрическом центре
Va-133	5,90	22,94	
Eu-152	2,84	23,30	У стенки на половине высоты
Va-133	5,35	23,32	
Eu-152	10,87	23,38	В линию на половине высоты
Va-133	9,39	23,19	
Eu-152	3,28	23,21	В горизонтальной плоскости на половине высоты
Va-133	4,80	23,01	
Eu-152	3,28	23,21	В горизонтальной плоскости на половине высоты
Va-133	4,80	23,01	
Eu-152	0,12	22,97	На дне с одной из сторон
Va-133	0,79	23,02	
Eu-152	23,45	23,10	На дне со стороны, наиболее удаленной от детектора (без вращения)
Va-133	20,94	23,17	
Eu-152	36,05	23,21	На дне со стороны, наиболее приближенной к детектору (без вращения)
Va-133	39,92	23,05	
Eu-152	10,18	23,11	Источники на дне контейнера в горизонтальной плоскости
Va-133	13,90	23,09	

Примечание:  $U_A = \sqrt{U(P)^2 + \delta(A)^2}$

Анализ погрешностей определения активности радионуклидов в ОИСН проводился с помощью данных, приведенных в табл. 4.

**Таблица 2.** Отличия в значениях активности радионуклидов, равномерно распределенных в контейнере на расстоянии 1 м от детектора (контейнер заполнен водой)

Нуклид	$\frac{ A_0 - \bar{A}_0 }{A_0}, \%$	$\frac{U_A}{A_0}, \%$	Геометрия расположения источников в контейнере
Eu-152	22,88	32,93	Ниже середины
Va-133	20,06	33,66	
Eu-152	25,51	31,89	По всему объему
Va-133	6,92	33,44	
Eu-152	28,35	32,50	По объему (диаметр контейнера 40 см)
Va-133	30,63	36,87	
Eu-152	12,72	31,79	По всему объему (на 5 см ниже верхней кромки)
Va-133	23,61	32,59	
Eu-152	46,41	41,31	По всему объему (на 5 см ниже верхней кромки; без вращения)
Va-133	30,88	41,34	

**Таблица 3.** Отличия в значениях активности радионуклидов, находящихся в контейнере на расстоянии 1 м от детектора (контейнер заполнен поглотителем с плотностью 0,1...0,2 г/см<sup>3</sup>; источники распределены равномерно по объему контейнера)

Нуклид	$\frac{ A_0 - \bar{A}_0 }{A_0}, \%$	$\frac{U_A}{A_0}, \%$	Геометрия расположения источников в контейнере
Eu-152	5,13	31,78	1
Va-133	11,42	31,83	
Eu-152	3,08	31,59	2
Va-133	12,36	31,66	
Eu-152	6,00	31,58	3
Va-133	10,38	31,65	
Eu-152	5,97	31,55	4
Va-133	9,10	31,68	
Eu-152	4,63	31,55	5
Va-133	10,03	31,65	
Eu-152	7,25	31,45	6
Va-133	12,42	31,61	
Eu-152	9,98	31,69	7
Va-133	36,20	31,73	
Eu-152	9,68	31,68	8 (без вращения)
Va-133	33,00	31,62	

**Таблица 4.** Погрешности результатов определения активности радионуклидов в ОИСН

Условия проведения измерений	$\frac{ A_0 - \bar{A}_0 }{A_0},$	$\frac{U_A}{A_0},$	
	не более, %	не более, %	
Контейнер без наполнителя	с вращением	14	24
	без вращения	40*	24
Контейнер заполнен водой	с вращением	31	37
	без вращения	47*	42
Контейнер заполнен отходами (опилки, куски металла и т. д.)	с вращением	13	32
	без вращения	37*	32

\*Погрешность определения активности превышает требования к выполнению анализов

Согласно результатам исследований следует, что применение вращения контейнера с ТРО для измерения спектра гамма-излучения качественно улучшает точность выполняемых спектрометрических измерений в случае неравномерного распределения источников излучений по его объему и является необходимым условием их проведения на необходимом уровне качества.

По результатам проведенной метрологической аттестации на методику выполнения измерений «Контроль гамма-излучающих нуклидов низкоактивных ТРО СХК» получено свидетельство о метрологической аттестации с расширенной неопределенностью от 30 до 60 % (при доверительной вероятности  $P=0,95$ ) в энергетическом диапазоне от 80 до 1500 кэВ и диапазоне активности до  $10^6$  Бк/кг. Свидетельство выдано Госстандартом России ЦМИИ ФГУП «ВНИИФТРИ». Предложенный гамма-спектрометрический метод измерений активности и нуклидного состава низкоактивных ТРО внедрен на Реакторном заводе ФГУП «Сибирский химический комбинат» и оформлен в виде аналитической методики «Контроль гамма-излучающих нуклидов низкоактивных ТРО СХК». Методика согласована с Госстандартом России ЦМИИ ФГУП «ВНИИФТРИ».

#### Заключение

Разработан и внедрен гамма-спектрометрический метод контроля, позволяющий с высокой степенью точности определять нуклидный состав и производить расчет удельной и абсолютной актив-

ности низкоактивных ТРО, образующихся при эксплуатации и выводе из эксплуатации ядерно-энергетических установок, непосредственно в геометрии стандартного стального контейнера объемом 200 л.

Экспериментально доказано, что применение вращения счетного образца (контейнера с радиоактивными отходами) позволяет качественно улучшить точность выполняемых спектрометрических анализов и является необходимым условием их проведения.

Реализованный в предлагаемом гамма-спектрометрическом методе расчетный алгоритм (статистический метод Монте-Карло) позволяет рассчитывать удельную активность твердых радиоактивных отходов, помещенных в стальной контейнер объемом 200 л (неоднородный объемный источник с учетом самопоглощения излучения), с расширенной неопределенностью, укладываемой в допустимый диапазон от 30 до 60 %.

Выполненные аппаратно-методические разработки позволят организовывать порядок обращения с низкоактивными твердыми радиоактивными отходами на ФГУП «Сибирский химический комбинат» в соответствии с требованиями действующих федеральных норм и правил в области использования атомной энергии.

Разработанный гамма-спектрометрический метод анализа может быть использован для контроля твердых радиоактивных отходов на других радиационно-опасных объектах.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. НП-020-2000 Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Сбор, переработка, хранение и кондиционирование твердых радиоактивных отходов. Требования безопасности». – М.: Госатомнадзор России, 2000. – 16 с.
2. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99): 2.6.1. Ионизирующее излучение, радиационная безопасность СП 2.6.1.799-99. – М.: Минздрав России, 2000. – 98 с.
3. Руководство по эксплуатации. Спектрометрический комплекс СКС-07П. Программа обработки гамма-спектров «Gamma-Pro». – М.: Группа предприятий «Грин Стар», 2005. – 53 с.
4. ГОСТ Р 8.594-2002 Метрологическое обеспечение радиационного контроля. – М.: Госстандарт России, 2002. – 19 с.
5. РМГ 43-2001 Руководство по выражению неопределенности измерений. – Минск, 2003. – 21 с.

*Поступила 14.12.2006 г.*