

ПРИМЕНЕНИЕ ПЛАСТИКОВЫХ ТРЕКОВЫХ ДЕТЕКТОРОВ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ДЕЛЯЩИХСЯ МАТЕРИАЛОВ В ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДАХ АЭС

Разработаны методы определения количества делящихся материалов в емкостях с жидкими радиоактивными отходами. Концентрация суммы делящихся материалов (урана-235 и плутония-239), определялась методом пластиковых трековых детекторов. Этот метод адаптирован применительно к сильнозасоленным водам и донным осадкам. Вклад плутония-239 в сумму делящихся материалов определялся радиохимическим методом. Методы использованы для решения проблем ядерной безопасности при снятии АЭС с эксплуатации.

The methods of the quantitative determination of fissile materials in the tanks containing liquid radioactive waste are developed. The summary concentrations of ^{235}U and ^{239}Pu were measured by the plastic track detector's method. This method was adapted to liquid waste with high salt concentration. The contribution of ^{239}Pu was determined using radiochemical method. The developed methods were used for the solution of nuclear safety problem at output of nuclear reactors after exploitation.

АЭС в процессе эксплуатации накапливают в своих хранилищах значительные количества жидких радиоактивных отходов (ЖРО), сотни кубических метров на энергоблок. При снятии АЭС с эксплуатации актуальной становятся задача утилизации ЖРО. Важной проблемой при этом является их ядерная безопасность. Необходим контроль содержания основных делящихся материалов (ДМ) в водной фракции и донных осадках ЖРО. Предложено решать эти задачи с использованием метода пластиковых трековых детекторов (ПТД) в сочетании с радиохимическим выделением урана и плутония.

Высокий солевой фон и сложный нуклидный состав ЖРО требуют применения радиохимических методов выделения актиноидов для определения их концентраций. Основным методом идентификации актиноидов является α -спектрометрический метод, по результатам которого надежно определяется концентрация

^{239}Pu в ЖРО. Однако на α -спектрах, как правило, отсутствуют пики ^{235}U из-за малой концентрации и низкой удельной активности ^{235}U . Например, при концентрации ^{235}U в осадке $1 \cdot 10^{-6}$ г/г и массе твердого образца 0,1 г α -активность ^{235}U в пробе составляет всего $8 \cdot 10^{-3}$ Бк. Это обуславливает неприемлемость α -спектрометрического определения ^{235}U в пробах донных осадков. Концентрация ^{235}U в водной фракции ЖРО еще меньше (около 10^{-8} г/л). Этой концентрации соответствует удельная активность ^{235}U в воде (10^{-3} Бк/л), что делает α -спектрометрическое определение ^{235}U невозможным. Для определения концентрации ДМ в ЖРО требуется метод с пределом обнаружения меньшим 10^{-8} г/л. Этому требованию удовлетворяет «влажный» вариант метода ПТД [2]. Суть «влажного» метода заключается в регистрации осколков деления ^{235}U и ^{239}Pu в растворе, который облучается нейтронами вместе с находящимися в этом растворе ПТД.

Связь плотности разрядных пятен d (число разрядных пятен на квадратный сантиметр) и концентрации ДМ в растворе C описывается уравнением [3]

$$d = e\alpha K_{wet} CN_A \sigma_f \Phi t / A,$$

где e – эффективность счета разрядных пятен, отн. ед.; α – эффективность электрохимического травления, отн. ед.; K_{wet} – эффективность регистрации осколков деления в воде, $K_{wet} = 8,9 \cdot 10^{-4} \text{ см}^5$; N_A – число Авогадро; σ_f – сечение деления ДМ (^{235}U или ^{239}Pu), см^2 ; Φ – плотность потока тепловых нейтронов, $\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$; t – время облучения, с; A – атомная масса ДМ, г/моль.

Опыт применения метода ПТД в реакторных исследованиях показывает, что при ручном счете разрядных пятен произведение $e\alpha = 0,54 \pm 0,15$. Из уравнения следует, что при флюенсе тепловых нейтронов $\Phi t = 1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ и концентрации ДМ в растворе $1 \cdot 10^{-11} \text{ г/см}^3$ ($1 \cdot 10^{-8} \text{ г/л}$) плотность разрядных пятен на детекторах составляет приблизительно 70 см^{-2} . ДМ ^{235}U и ^{239}Pu имеют высокие и сравнимые сечения деления на тепловых нейтронах. Остальные актиноиды имеют либо малые сечения деления, либо характеризуются малыми концентрациями (на два-три порядка меньше, чем ^{235}U и ^{239}Pu). Именно поэтому при наличии источника тепловых нейтронов метод ПТД обеспечивает требуемые высокие чувствительность и селективность определения ^{235}U и ^{239}Pu .

Метод анализа ДМ заключается в следующем. Проба воды или растворенного осадка объемом 30 см^3 заливается в полиэтиленовую капсулу. В пробу помещаются трековые детекторы, по два на капсулу. Размер детекторов $30 \times 40 \text{ мм}$, толщина 180 мкм , материал – полиэтилентерефталат (ПЭТФ). Контейнер, содержащий четыре капсулы, облучается тепловыми нейтронами до флюенса от $2 \cdot 10^{14}$ до $2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$. В каждом контейнере имеется капсула с раствором урана известной концентрации. Облучение проводится в вертикальном активационном канале реактора ИВВ-2М, в котором отношение плотности тепловых и быстрых

нейтронов (с энергией более $1,15 \text{ МэВ}$) составляет $40 : 1$. Канал экранирован свинцовыми блоками, поэтому гамма-разогрев проб незначителен и вода из капсул не испаряется.

После облучения все восемь детекторов из контейнера подвергались одновременному электрохимическому травлению в специально сконструированной установке. На протравленных детекторах наблюдались контрастные разрядные пятна со средним диаметром около 100 мкм , плотность которых оценивали на площади 3 см^2 . Разрядные пятна подсчитывались как вручную, так и автоматически. Параметры электрохимического травления были оптимизированы [1].

Неизвестная концентрация урана определялась относительным методом, путем сравнения плотности разрядных пятен на детекторе в исследуемом растворе и в стандарте с поправкой на неравномерность флюенса нейтронов по высоте контейнера.

Основные характеристики аналитического метода – точность, чувствительность, предел обнаружения. Точность связана с ошибками, систематическими и случайными, и определяет правильность и воспроизводимость метода. Для проверки правильности метода использована калибровка ПТД в стандартных растворах, аттестованных α -спектрометрическим методом. «Калибровочные» ПТД размещались непосредственно в составе рабочих контейнеров с пробами вскрышных растворов. Это позволило ограничить систематическую ошибку уровнем не более 10% . При малых флюенсах нейтронов (до $1 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$) основными источниками случайной погрешности являются статистическая погрешность и ошибка в счете разрядных пятен. Зависимость плотности разрядных пятен от концентрации ДМ в диапазоне от 30 до 3000 см^{-2} была линейной. Рабочий диапазон плотности был ограничен: от 50 до 2000 см^{-2} . В каждой пробе облучалось по два детектора, поэтому статистическая погрешность не превышала 10% . Разрядные пятна на ПТД контрастны, хорошо различимы глазом. Ошибка при «ручном» счете

разрядных пятен не превышала 15 %. Таким образом, общая ошибка определения концентрации ДМ в растворе при выполнении ограничительных условий описанного метода ПТД не превышала 20 %.

Если для измерения концентрации суммы основных ДМ ($^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu}$) в качестве стандарта используется раствор урана, то имеет место еще одна ошибка, связанная с разными сечениями деления на тепловых нейтронах ^{235}U и ^{239}Pu : $(582 \pm 4) \cdot 10^{-28}$ и $(742 \pm 4) \cdot 10^{-28}$ м соответственно [4]. Расчет показывает, что присвоение сумме ДМ сечения деления ^{235}U приводит к незначительному завышению оценки суммы ДМ: менее 2,7 % в наиболее вероятном для ЖРО АЭС случае, когда доля ^{239}Pu не превышает 10 % в сумме ДМ и на 14 % для маловероятного случая, когда доля ^{239}Pu составляет 50 % в сумме ДМ. Учитывая это, расчет суммы ДМ в пробах ЖРО с использованием метода ПТД проводился без поправки на разницу в сечениях деления, т.е. в перерасчете на ^{235}U . Поскольку концентрация ^{239}Pu надежно определялась радиохимическим методом с α -спектрометрическим окончанием, то истинная концентрация ^{235}U во вскрышных растворах осадков и водах определялась вычитанием концентрации ^{239}Pu из концентрации суммы $^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu}$.

Чувствительность метода ПТД весьма высока, зависимость плотности разрядных пятен от концентрации ^{235}U в растворе линейна и близка к теоретической зависимости. Предел обнаружения ДМ с использованием метода ПТД связан с фоновыми явлениями, прежде всего, с собственным загрязнением ПЭТФ ураном. Для флюенса тепловых нейтронов $1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-2}$ линейный диапазон зависимости плотности разрядных пятен от концентрации ^{235}U был ограничен снизу плотностью $d \approx 20 \text{ см}^{-2}$. Соответствующий предел обнаружения ^{235}U в растворе не превышал $3 \cdot 10^{-9} \text{ г/л}$. Что касается флюенса нейтронов менее $1 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}$, то фоновая плотность разрядных пятен в этом случае составила несколько единиц на 1 см^2 и ограничение снизу измеряемой концентрации ^{235}U определялось приемлемой статистической ошибкой.

Первый и второй блоки Белоярской АЭС, первой энергетической атомной станции России, находятся в стадии снятия с эксплуатации. Эти блоки были остановлены в 1983 и 1989 г. соответственно. Блоки проработали приблизительно по 20 лет каждый и накопили значительное количество ЖРО, в том числе в двух емкостях хранилища жидких отходов БКО-Е и БКО-Ж. Кроме того, имеются два бассейна выдержки отработавшего ядерного топлива БВ-1 и БВ-2. С использованием описанного выше метода определены концентрации основных ДМ в водах и донных осадках. Результаты представлены в таблице.

Концентрация ^{235}U и ^{239}Pu в водах (в числителе) и донных осадках (в знаменателе) в емкостях с ЖРО (Белоярская АЭС)

Емкость	Концентрация ^{235}U	Концентрация ^{239}Pu
БВ-1	$\frac{(1,4 \pm 0,7)10^{-8}}{(2,8 \pm 1,6)10^{-3}}$	$\frac{\geq 4,8 \cdot 10^{-10}}{(2,3 \pm 0,9)10^{-4}}$
БВ-2	$\frac{(4,1 \pm 1,0)10^{-8}}{(3,5 \pm 1,4)10^{-3}}$	$\frac{\leq 4,3 \cdot 10^{-10}}{(2,8 \pm 1,1)10^{-4}}$
БКО-Е	$\frac{(7,3 \pm 1,4)10^{-6}}{(6,1 \pm 1,6)10^{-3}}$	$\frac{(1,8 \pm 0,4)10^{-8}}{(7,4 \pm 3,3)10^{-4}}$
БКО-Ж	$\frac{(5,6 \pm 1,2)10^{-6}}{(1,2 \pm 0,1)10^{-3}}$	$\frac{(6,2 \pm 1,3)10^{-10}}{(3,1 \pm 0,1)10^{-4}}$

Примечание. В числителе и знаменателе – в граммах на литр и килограмм соответственно.

Данные по донным осадкам в БВ-1 усреднены по шести пробам, в БВ-2 – по четырем пробам. Для донных осадков в БКО-Е данные усреднены по трем пробам, а в БКО-Ж получено по одной пробе. Анализировалось от двух до четырех образцов (параллелей) из каждой пробы осадков. При определении концентрации ^{239}Pu в водах всех емкостей, а также в донных осадках БКО-Е и БКО-Ж принято, что в α -спектрах пик с энергией 5,15 МэВ обусловлен исключительно нуклидом ^{239}Pu .

На основании данных о количестве ДМ Белоярская АЭС получила заключение о ядерной безопасности вод и донных осадков в бассейнах выдержки отработавшего ядерного топлива БВ-1 и БВ-2, а также ЖРО в емкостях хранилища жидких

отходов БКО-Е и БКО-Ж. Метод ПТД для определения суммы ДМ в комбинации с радиохимическим определением плутония позволяет успешно решать проблемы ядерной безопасности ЖРО АЭС.

ЛИТЕРАТУРА

1. Дьяков А.А. Метод электрохимического травления пластиковых трековых детекторов (Обзор) // Приборы и техника эксперимента. 1984. № 2.

2. Дьяков А.А. Определение содержания делящихся материалов в растворах с использованием пластиковых трековых детекторов (Обзор) / А.А.Дьяков, К.Н.Панков // Радиохимия. 1987. № 4.

3. Дьяков А.А. Определение концентрации ^{235}U в водном теплоносителе первого контура ядерного реактора / А.А.Дьяков, Л.И.Менькин, С.Г.Карпечко // Атомная энергия. 1986. Т.61. Вып.5.

4. Колобашкин В.М. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива: Справочник / В.М.Колобашкин, П.М.Рубцов. М.: Энергоатомиздат, 1983.