

Активация воды, охлаждающей узлы синхроциклотрона

М. М. КОМОЧКОВ, Ю. Г. ТЕТЕРЕВ

УДК 539.16.04:621.384.67

Усовершенствование синхроциклотрона ($E_p = 680$ Мэв) Лаборатории ядерных проблем ОИЯИ с целью увеличения интенсивности пучка протонов и вторичных частиц в несколько десятков раз потребовало более точного установления степени радиационной опасности, вызванной активацией воды, охлаждающей детали и узлы ускорителя. При этом важно знать закономерности накопления и изменения радиоактивности воды. Для получения такой информации было изучено содержание γ -радиоактивных изотопов с временем жизни более 20 мин в воде, охлаждающей узлы синхроциклотрона, которые подвергаются наиболее интенсивному облучению, а также измерено поле γ -излучения вблизи труб системы охлаждения. Исследования, наиболее близкие нашим, были выполнены на линейном ускорителе электронов [1].

Система охлаждения

Система охлаждения синхроциклотрона представляет собой замкнутый контур, имеющий сообщение с атмосферой. Объем контура составляет ~ 36 м³. Ускоритель и система водоснабжения охлаждающего контура размещены в разных зданиях. Нагретая вода из здания ускорителя поступает в здание, где находится теплообменник и рециркуляционный насос, по шести трубам диаметром 130 мм, которые служат одновременно резервным объемом.

Трубы системы охлаждения выполнены из меди, а рециркуляционный насос, компенсаторы длины труб и некоторые вентили — из нержавеющей стали. Внутренняя поверхность медных труб составляет ~ 700 м², поверхность стальных частей ~ 3 м².

Система заполняется дистиллированной водой. Для компенсации испаряющейся воды и незначительной утечки система раз в месяц пополняется дистиллированной водой в объеме 12 м³. Дистиллированную воду получают конденсацией пара. Минимальное удельное сопротивление охлаждающей воды 25 ком/см³.

Спектральный состав и мощности доз γ -излучения вблизи системы охлаждения

Спектрометром с кристаллом NaI(Tl) был измерен энергетический спектр γ -квантов, возникающих в трубах охлаждающего контура во время работы ускорителя и после его выключения. Спектр измерялся на расстоянии 200 м

от здания ускорителя, что позволило избежать влияния фона мгновенных γ -квантов из помещения синхроциклотрона и уменьшить загрузки спектрометра. От места облучения до места измерения вода движется 30 мин. При работающем ускорителе в измеренном спектре виден только пик 511 кэв. Через 3,5 ч после выключения ускорителя удалось четко обнаружить только пик 480 кэв, который соответствует Be⁷.

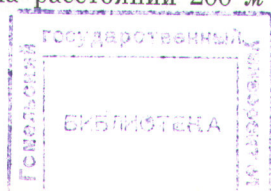
С помощью стандартных дозиметров было измерено распределение мощности дозы γ -излучения вдоль труб контура охлаждения (рис. 1). Погрешность измерения приборов 20%. Чтобы исключить влияние фоновых мгновенных γ -квантов, мощность дозы, соответствующая работающему ускорителю, измерялась сразу после его выключения. Интересующее нас поле можно измерить, перемещая датчик от точки на выходе воды из зоны облучения со скоростью, превышающей скорость прокачки воды (8 м/мин).

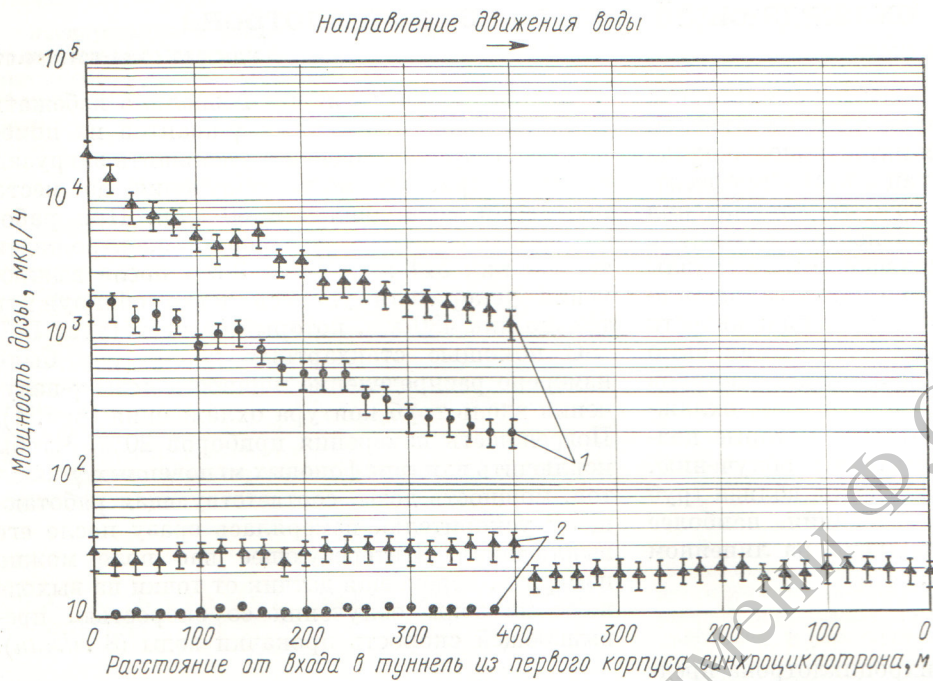
Определение γ -активных изотопов в воде охлаждающего контура

Для определения изотопного состава продуктов активации было взято несколько проб воды охлаждающего контура и осадка со стенок труб системы. Пробы воды выпаривались в стеклянном стакане с добавлением нескольких капель соляной кислоты, сухой остаток наносился на подложку. В специальном опыте установлено, что изотопный состав пробы при таком способе ее приготовления не меняется, а потери активности при этом не превышают 20%.

Для идентификации γ -радиоактивных изотопов и определения их активности γ -излучение проб воды и осадка регистрировалось на спектрометрах, один из которых имел детектор NaI(Tl), другой — Ge(Li). Разрешение спектрометра с кристаллом NaI(Tl) составляет 16%, а спектрометра с кристаллом Ge(Li) равно 0,5% при энергии γ -квантов 511 кэв.

С помощью данных, полученных на Ge(Li)-детекторе, идентифицированы [2] все те изотопы, поток γ -излучения которых составляет не менее 1/50 потока γ -излучения наиболее активного изотопа пробы. Эта особенность детектора обусловлена комптоновским эффектом, быстротой действия анализатора и длительностью измерения. Таким образом, были обнаружены все γ -активные изотопы в воде и осадке, вносящие существенный вклад в дозу излучения. Результаты





Р и с. 1. Распределение мощности дозы вдоль труб контура охлаждения:
 ▲ — вплотную к трубе;
 ● — на расстоянии 90 см от первой трубы; 1 — при работающем ускорителе; 2 — после остановки ускорителя (через 3,5 ч).

измерений спектра, полученные с помощью Ge(Li)-детектора, приведены на рис. 2.

Состав и активность изотопов в воде и осадке контура охлаждения синхроциклотрона представлены в табл. 1. Приведенная (измеренная) активность изотопов — среднее арифметическое измеренных величин.

Изоотопы, обнаруженные в контуре охлаждения, и их активность (измеренная и рассчитанная) Таблица 1

Изотоп	Активность воды контура, расп/сек·л		Активность осадка, расп/сек × ×/проба
	Измеренная	Рассчитанная	
Co ⁶⁰	17 (7) *	73	< 2
Co ⁵⁸	150 (60)	218	< 2
Co ⁵⁷	100 (40)	133	< 2
Co ⁵⁶	35 (14)	50	< 1
Mn ⁵⁶	< 4	1	< 2
Mn ⁵⁴	32 (12)	42	< 3
Mn ⁵²	31 (12)	33	< 1
Cr ⁵¹	< 30	—	50
V ⁴⁸	< 4	—	9
Be ⁷	300 (120)	—	1454
C ¹¹ **	(3,5 ± 0,3) · 10 ⁵	—	—

* В скобках указано отклонение от среднего (по всем пробам) значения активности в воде контура.
 ** Активность углерода на выходе из зоны облучения.

Содержание химических элементов в пробах из контура охлаждения Таблица 2

Проба	Состав, г/л *			
	Медь	Цинк	Железо	Натрий
Вода из контура	2,4 · 10 ⁻³	2,4 · 10 ⁻³	< 5 · 10 ⁻⁵	3,8 · 10 ⁻³
Осадок со стенок контура	7,6 · 10 ⁻³	1,9 · 10 ⁻³	14,8 · 10 ⁻³	< 1 · 10 ⁻⁵
Дистиллированная вода, заливаемая в контур	< 1 · 10 ⁻⁵	3,1 · 10 ⁻⁴	< 5 · 10 ⁻⁵	1,4 · 10 ⁻³

* Для осадка со стенок контура в г/проба.

Наличие в пробах воды радиоактивных изотопов кобальта, марганца, хрома и других (помимо Be⁷ и C¹¹, образующихся из кислорода воды) побудило выяснить возможные пути загрязнения ими воды. Активационным методом был установлен состав элементов в пробах (табл. 2).

Обсуждение результатов измерений

Изоотопы кобальта, марганца, хрома, ванадия в контуре системы охлаждения, а также соотношения между активностями изотопов кобаль-

та дают основание предположить, что эти изотопы образовались в основном в результате протонной активации меди.

Возможность возникновения указанных изотопов в установленном количестве из цинка исключается, так как Zn^{65} с периодом полураспада 245 дней практически отсутствует в пробах. Верхний предел активности Zn^{65} , установленный в измерениях, составляет 30 *расп/сек·л.*, в то время как по соотношению сечений образования различных изотопов на цинке [3] активность Zn^{65} должна была бы равняться 300 *расп/сек·л.* Этот факт с учетом того, что меди в воде контура столько же, сколько и цинка (см. табл. 2), а сечения образования наблюдаемых изотопов из меди и цинка соизмеримы, указывает на возможность образования радиоактивных изотопов из конструкционной меди, находящейся под облучением, а не только из меди, растворенной в воде. Обнаруженные изотопы кобальта, марганца, хрома, ванадия и другие радиоактивные и стабильные изотопы переходят в воду в результате коррозии внутренней поверхности активированных медных

трубок. Процесс коррозии меди под воздействием излучения проходит более интенсивно и подробно описан в работе [4].

Измеренная зависимость величин отношения активностей изотопов марганца и кобальта от времени облучения показала, что накопление активности после смены воды в контуре практически прекращается через несколько дней и не зависит от периода полураспада для одного и того же элемента. Это свидетельствует не только о процессе перехода радиоактивных изотопов в воду, но и об обратном процессе — сорбции радиоактивных изотопов на стенках труб и емкостей системы охлаждения. Таким образом, при смене воды в системе вода может загрязняться радиоактивными изотопами как за счет радиоактивности, наведенной в частях труб, так и за счет процесса десорбции.

Важным аргументом, подтверждающим указанный путь загрязнения воды радиоактивными изотопами, образующимися из меди, является то, что активность воды спустя 47 дней после полной ее смены при неработающем ускорителе оказалась соизмеримой с активностью проб,

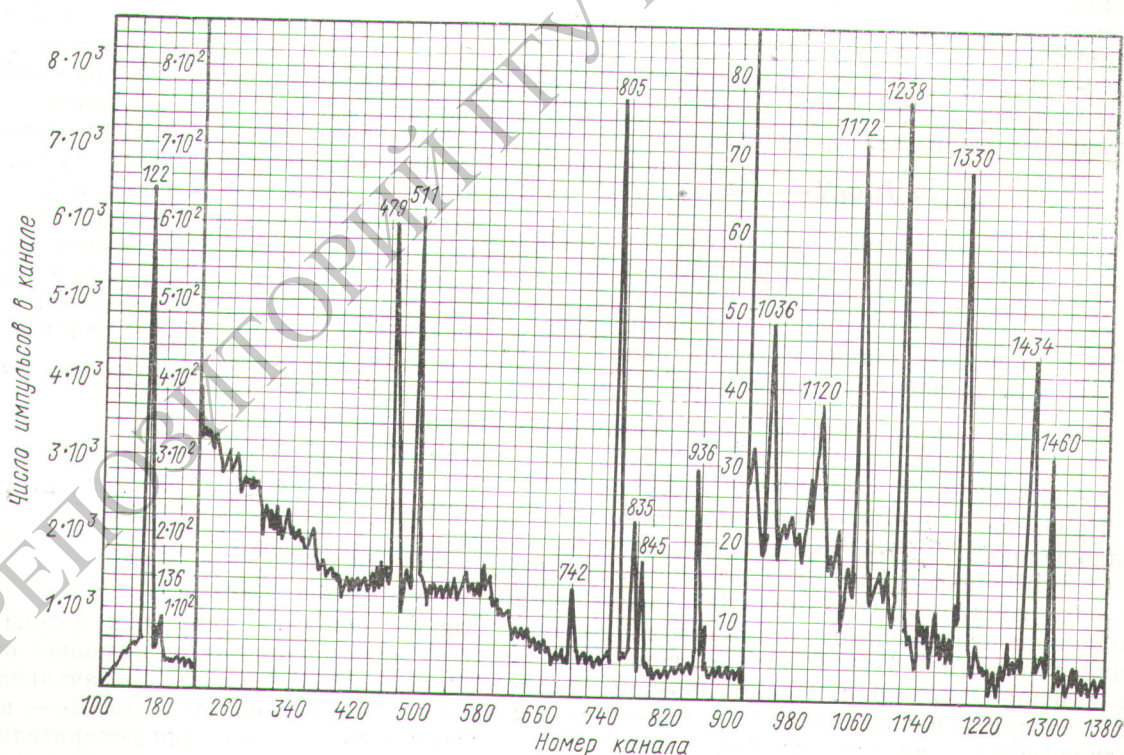


Рис. 2. Гамма-спектр сухого остатка воды из контура охлаждения синхроциклотрона, измеренный Ge(Li)-детектором (цифры у пиков — энергия γ -квантов в килоэлектронвольтах).

взятых после продолжительной работы ускорителя. На основании результатов измерений можно описать накопление радиоактивных изотопов в воде контура охлаждения в аналитической форме.

Образование радиоактивных изотопов из кислорода воды. Можно показать, что удельная активность i -го изотопа j -го элемента $A_{i,j}$ в воде контура охлаждения на выходе из зоны облучения через ν периодов обращения воды в контуре составит

$$A_{i,j} = I\sigma_i N \frac{\lambda_i}{\lambda_i + \alpha_j} \times \frac{[1 - e^{-(\lambda_i + \alpha_j)t_0}][1 - e^{-(\lambda_i + \alpha_j)Tv}]}{[1 - e^{-(\lambda_i + \alpha_j)T}]}, \quad (1)$$

где I — средняя плотность потока протонов в зоне активации; σ_i — сечение образования i -го изотопа; N — число ядер элемента, вступающего в ядерную реакцию, в 1 л (в расчет принимаем только один изотоп кислорода O^{16}); t_0 — время прохождения водой зоны облучения; λ_i — постоянная распада i -го изотопа; α_j — постоянная выведения из воды j -го элемента, образовавшегося за счет сорбции, осаждения, испарения и т. д.; T — период обращения воды (в нашем случае $T = 90$ мин). Формула (1) справедлива при условии $(\lambda_i + \alpha_j)t_0 < 1$. Для долгоживущих изотопов, для которых $\lambda_i < \alpha_j$ и $(\lambda_i + \alpha_j)T \ll 1$, формула (1) приобретает следующий вид:

$$A_{i,j} = It_0\sigma_i N \frac{\lambda_i}{(\lambda_i + \alpha_j)T}. \quad (2)$$

Значение величины It_0 определим, зная активность C^{II} . Полагая коэффициент α малым по сравнению с постоянной распада и имея в виду, что время облучения t_0 мало по сравнению с периодом полураспада, получим выражение для равновесной активности C^{II} :

$$A_c = \frac{It_0\lambda_c\sigma_c N}{0,95}, \quad (3)$$

где $0,95 = [1 - e^{-(\lambda_c + \alpha_c)T}]$.

Измерение активности C^{II} в нашем случае дало величину $3,48 \cdot 10^5$ расп/сек \cdot л, откуда $It_0 = 1,8 \cdot 10^9$ протон/см². Зная активность Be^7 в воде контура, по формуле (2) легко найти коэффициент выведения бериллия α , оказавшийся равным $3,4 \cdot 10^{-5}$ сек⁻¹, а период полувыведения $T_{1/2} = 6$ ч. Таким образом, менее чем за сутки в воде контура устанавливается равновесная концентрация Be^7 .

С помощью формулы (2) можно определить активность трития в воде контура. Коэффици-

циент выведения трития рассчитали, исходя из того, что каждый месяц из системы объемом 36 м³ испаряется 12 м³ воды, а вместе с водой улетучивается и тритий в составе H_2O или H_2 . Из расчета получаем $\alpha = 0,9 \cdot 10^{-7}$ сек⁻¹, или период полувыведения $T_{1/2} = 63$ дня. Равновесная величина активности трития составила $1,8 \cdot 10^{-7}$ кюри/л.

С помощью формулы (2) можно рассчитать наведенную активность, обусловленную веществами, содержащимися в воде. Оценки показывают, что если даже пренебречь сорбцией образующихся изотопов, то рассчитанная величина активности будет в 500 раз меньше наблюдаемой.

Загрязнение воды радиоактивными изотопами вследствие коррозии. При коррозии вместе с медью в воду переходят изотопы, которые образуются в ядерных реакциях, в основном вызванных протонами. Дифференциальное уравнение, описывающее накопление радиоактивных ядер в воде, в этом случае можно записать в следующем виде:

$$\frac{dn_{i,j}}{dt} = c_i\beta + c'_i\beta'_j - (\lambda_i + \alpha_j)n_{i,j}, \quad (4)$$

где $n_{i,j}$ — число ядер i -го изотопа j -го элемента, находящегося в воде контура; t — время, прошедшее с момента заполнения системы водой; c_i — концентрация i -го изотопа в объеме вещества трубок, которые подвергаются коррозии; β — скорость перехода в воду вещества стенок трубок, находящихся под облучением, вследствие коррозии; c'_i — концентрация i -го изотопа в веществе, сорбированном на поверхности труб системы; β'_j — скорость перехода вещества j -го элемента с поверхности труб системы в результате десорбции.

Решение уравнения (4) запишется в виде

$$n_{i,j} = e^{-(\lambda_i + \alpha_j)t} \left[\int (c_i\beta + c'_i\beta'_j) e^{(\lambda_i + \alpha_j)t'} dt' + B \right]. \quad (5)$$

При работающем ускорителе

$$c_i = c_{0i}e^{-\lambda_i t_1} + \frac{I\sigma_i}{\lambda_i}(1 - e^{-\lambda_i t_1}),$$

при неработающем

$$c_i = c_{0i}e^{-\lambda_i t_2},$$

где I — средняя плотность потока протонов; σ_i — микроскопическое сечение образования i -го изотопа из меди; c_{0i} — начальная концентрация i -го изотопа в меди; t_1 — время, прошедшее после включения ускорителя; t_2 — время, прошедшее после выключения ускорителя. Значение коэффициента β можно получить

с помощью данных работы [4], в которой экспериментально определялось изменение концентрации ионов меди в макете контура при облучении его протонами. Изменение концентрации ионов меди в воде в зависимости от времени можно рассматривать как следствие двух процессов: коррозии и сорбции. Рост концентрации ионов меди q в начальный момент после заливки воды в макет обусловлен только процессом коррозии, поэтому $\left. \frac{dq}{dt} \right|_{t \rightarrow 0} = \beta_1$ для макета, описанного в работе [4]. Можно предположить, что для контуров охлаждения ускорителей из одного материала справедливо соотношение

$$\beta = \beta_1 \frac{S}{S_1} \frac{V_1}{V}, \quad (6)$$

где S_1 и V_1 — соответственно поверхность макета в зоне облучения, омываемая водой, и его объем, указанные в работе [4]; S и V — поверхность трубок в зоне облучения, омываемая водой, и объем всего контура охлаждения. Значение β , как следует из данных работы [4], может отличаться примерно в три раза в зависимости от того, находится корродирующая поверхность под облучением или нет. Поэтому необходимо различать скорости перехода в воду вещества стенок трубок при работающем (β_2) и неработающем (β_3) ускорителе.

По десорбции нет достаточных данных, чтобы записать произведение $\alpha_j \beta_j$ в аналитическом виде в зависимости от времени. Кроме того, нет никаких количественных сведений о процессе десорбции в рассмотренном выше контуре охлаждения. Поэтому ограничимся только рассмотрением процесса коррозии как источника загрязнения воды.

Изменение активности долгоживущих изотопов в зависимости от времени после включения или выключения ускорителя, как следует из формулы (5), обусловлено только выведением радиоактивных изотопов из воды (так как $\lambda_i \ll \alpha_j$). Коэффициенты выведения α_j были экспериментально оценены по скорости накопления активности изотопов в воде после включения ускорителя. Коэффициент выведения для кобальта составляет $\sim 4 \cdot 10^{-6} \text{ сек}^{-1}$, для марганца $\sim 1,2 \cdot 10^{-5} \text{ сек}^{-1}$. Период полувыведения для кобальта равен ~ 2 суток, для марганца ~ 17 ч.

Поток протонов в местах размещения трубок и омываемую поверхность определим косвенно по активности C^{II} в воде на выходе из зоны

облучения. Согласно (3) можно записать

$$A_c = \frac{I t_0 \lambda_c N \sigma_c}{0,95} = \frac{I V_{\text{обл}} \lambda_c N \sigma_c}{Q \cdot 0,95} = \frac{IS r \lambda_c \sigma_c NT}{V \cdot 2 \cdot 0,95}, \quad (7)$$

где $V_{\text{обл}} = \frac{Sr}{2}$ — объем воды во всех медных трубках, подвергающихся облучению; $Q = \frac{V}{T}$ — расход воды в системе; r — радиус трубок. Из формулы (7) легко определить $\frac{IS}{V}$.

Таким образом, параметры выражения (5) определены, и можно в явном виде записать формулу для равновесной активности в воде контура при включенном ускорителе:

$$A_{i,j} = 1,9 A_c \frac{1}{\lambda_c T} \frac{\sigma_i}{\sigma_c} \frac{\beta_1}{N (\lambda_i + \alpha_j)} \frac{V_1}{r S_1}.$$

Значения равновесных активностей для изотопов кобальта и марганца, вычисленные по формуле (8), приведены в табл. 1.

Изотопы хрома и ванадия, имеющие большое сечение образования из меди, не удается наблюдать в воде, вероятно, из-за большого коэффициента выведения.

Активность пробы, взятой через 47 дней после задоления контура водой, при выключенном ускорителе должна определяться коэффициентом β_3 . Хотя его значение в три раза меньше значения β_2 , счет в пике первой пробы отличается не более чем в два раза от счета в пике при наибольшей активности воды в контуре. Это можно объяснить вкладом десорбции радиоактивных изотопов со стенок охлаждающего контура. Количественное соответствие расчетных и экспериментальных результатов указывает на правильное описание процесса накопления активности в воде системы охлаждения.

В результате исследования радиоактивности воды, охлаждающей узлы синхроциклотрона ОИЯИ, установлено, что в настоящее время удельная радиоактивность в воде, подлежащей сбросу в дренажную систему без предварительного отстоя или очистки, не превышает предельно допустимых концентраций. Активность γ -радиоактивных изотопов достигает равновесной величины не позднее чем через шесть дней. Мощность дозы γ -излучения от воды в трубах системы охлаждения соизмерима с предельно допустимыми величинами или же превышает их на расстояниях < 200 м от синхроциклотрона. При увеличении интенсивности внутреннего пучка ускорителя в 25—30 раз требуется сооружение специальной системы охлаждения, работающей без сброса радиоактивной

воды в открытый водоем, как это предусмотрено проектом [5].

Пользуемся случаем выразить признательность за полезные советы В. П. Дзелепову и за оказанную помощь в работе Р. Арльту, Т. И. Каплинской и Е. Л. Журавлевой.

Поступила в Редакцию 21/III 1972 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. G. Warren et al. Radioactivity produced and released from water at high energies. Second Inter-

national Conference on Accelerator Dosimetry and Experience. USAEC. 1969, p. 99.

2. Б. С. Дзелепов, Л. К. Пекер. Схемы распада радиоактивных ядер. М.—Л., «Наука», 1966.
3. Nuclear Data Tables. Section A. Vol. 7, No. 1—2, 1969, p. 1.
4. F. Hofer et al. Radiolytic corrosion and related problems in the cooling water circuits of high-energy particle accelerators. CERN, 68-2, DI-HP/MS, 1968.
5. А. А. Глазов и др. Фазотрон с вариацией магнитного поля (установка «Ф»). Препринт ОИЯИ 9-3211, Дубна, 1967.

Рефераты статей, опубликованных в настоящем выпуске

УДК 550.42:553.495

О некоторых особенностях связи гидротермального уран-молибденового оруднения с вулканогенными образованиями, В. М. Константинов, Д. И. Якунин. «Атомная энергия», 34, 3 (1973).

Приведены данные об особенностях геологического развития двух районов, характеризующихся наличием месторождений уран-молибденовой формации. В первом районе магматогенная деятельность заканчивается формированием вулканических аппаратов, с которыми пространственно и генетически связывается урановое оруднение. Во втором районе после вулканической деятельности происходит формирование гранитоидных интрузий, а уже после них — уран-молибденовых руд. В этом районе пространственная приуроченность уран-молибденовых руд к вулканическому аппарату рассматривается как частный случай структурного контроля. (1 рис., 2 библиографических ссылки).

УДК 539.12.08

Дозиметрия γ -нейтронного излучения сцинтилляционным спектрометром. В. П. Ковалев, С. П. Капчигашев, Л. П. Павлов. «Атомная энергия», 34, 7 (1973).

Исследована возможность применения сцинтилляционного спектрометра с кристаллом стибьена для дозиметрии смешанного γ -нейтронного излучения. Проведены измерения дозиметрических характеристик (Pu — Be)-источника нейтронов, а также источника смешанного излучения на базе линейного ускорителя электронов. Показано, что использование экрана из железа толщиной 50 см приводит к созданию поля излучения, в котором нейтронная компонента дозы вдвое превышает γ -компоненту. (4 рис., 2 табл., 7 библиографических ссылок.)

УДК 539.12.08

Характеристики индивидуального трекового дозиметра нейтронов ДИНА. И. Б. Кейрим-Маркус, Т. В. Королева, С. Н. Крайтор, Л. Н. Успенский. «Атомная энергия», 34, 11 (1973).

Исследованы характеристики индивидуального дозиметра нейтронов ДИНА, состоящего из трековых детекторов осколков деления изотопов Np^{237} за фильтром из V^{10} ($0,1 \text{ г/см}^2$) и U^{235} . Рассчитана цена трека дозиметра, оценена зависимость его показаний от расстояний до поверхности тела человека и угла облучения. Приведены результаты облучения нейтронами с разным спектром и показано, что разброс цены трека не превышает 10%. Результаты экспериментов согласуются с расчетными данными. (4 рис., 2 табл., 14 библиографических ссылок.)

УДК 539.16.04:621.384.67

Активация воды, охлаждающей узлы синхротрона. М. М. Кольцов, Ю. Г. Тетерев. «Атомная энергия», 34, 17 (1973).

Изучено содержание γ -радиоактивных изотопов в воде, охлаждающей узлы синхротрона, а также измерены уровни γ -излучения вблизи труб системы охлаждения. Активность γ -радиоактивных изотопов измеряли на спектрометрах с детекторами NaI(Tl) и Ge(Li).

В воде системы охлаждения установлено присутствие долгоживущих изотопов, являющихся продуктами коррозии материала охлаждающего контура. Их активность соизмерима с активностью Be^7 , который образуется из кислорода воды. Концентрация радиоактивных изотопов в воде определяется не только интенсивностью ускоренных протонов и периодами полураспада, но и процессами сорбции и десорбции на стенках охлаждающей системы. Поэтому равновесная γ -активность долгоживущих изотопов ($T > 6$ дней) независимо от их периодов полураспада достигается в течение 6 дней.

Приведены формулы для расчета наведенной активности, полученные на основании изученных закономерностей накопления радиоактивных изотопов в воде охлаждающей системы. (2 рис., 2 табл., 5 библиографических ссылок.)

УДК 539.125.5

Моделирование ядерных реакций в изотропно облучаемой толстой мишени. А. К. Лаврухина, Г. К. Устинова, В. В. Малайшев, Л. М. Сатарова. «Атомная энергия», 34, 23 (1973).

Железный шар радиусом 10 см, вращающийся в двух перпендикулярных плоскостях, облучался пучком протонов с энергией 660 Мэв. В результате вращения поверхности шара облучается изотропно. Измерена активность Na^{24} в алюминиевых пластинках и Mn^{54} , V^{48} , Sc^{44m} , Sc^{47} и Ca^{47} в железных пластинках, располагавшихся на разной глубине вдоль диаметра шара. Результаты эксперимента сравниваются с расчетными кривыми, полученными аналитическим методом, который применяется для анализа активности в метеоритах и лунных породах. Показано, что на глубине ~ 2 см от поверхности расчета активности аналитическим методом находятся в количественном соответствии с экспериментом.

Анализируются закономерности распределения космогенных изотопов в железных метеоритах разных размеров. Проводится сравнение с расчетом по методу Монте-Карло. (5 рис., 40 библиографических ссылок.)