

# Образование $\gamma$ -радиоактивных изотопов в грунте под действием нейтронов с энергией до 1 Гэв

А. А. АЛЕКСАНДРОВ, Е. К. ГЕЛЬФАНД, Б. В. МАНЬКО, Ю. Т. МИРОНОВ,  
Б. С. СЫЧЕВ, С. И. УШАКОВ

УДК 551.510.72:614.876

Проблема наведенной радиоактивности характерна для сильноточных ускорителей. В ускорителях размером несколько сот метров и более в качестве материала защиты часто используется грунт. Наведенная в грунте радиоактивность требует особенно тщательного изучения, так как заранее нельзя определить, какая часть этой активности останется локализованной в месте расположения ускорителя, а какая будет вымываться атмосферными осадками и грунтовыми водами, вызывая потенциальную опасность загрязнения источников водоснабжения.

В настоящей работе исследовалась активация образцов грунта, облученных в потоке нейтронов, генерируемых на синхротронном ускорителе ДИЯФ АН СССР с энергией протонов 1 Гэв. Были измерены коэффициенты вымывания различных радиоактивных изотопов из облученного грунта.

## Проведение эксперимента

Образцы грунта облучались в течение 49 суток. Контейнер с образцами помещался между вакуумной камерой ускорителя и трактом выведенного пучка протонов. Основным источником нейтронов являлась первая секция выводного канала. Угол между пучком протонов и направлением на контейнер (из эффективного источника) составлял приблизительно  $5^\circ$ . Спектр нейтронов высокой энергии для близких геометрических условий приведен в работе [1]. Контейнер размером  $20 \times 40 \times 40$  см представлял собой коробку из жести толщиной 0,5 мм. Образцы грунта весом 2–3 кг каждый помещались в отдельные полиэтиленовые пакеты. Таким образом, грунт занимал около 80% объема контейнера. Кроме нейтронов в зоне облучения присутствовали также протоны и  $\pi$ -мезоны. Поток адронов высокой энергии контролировался с помощью широко используемой [2] реакции  $Al^{27}(x, x_2p, 3n)Na^{22}$  с порогом  $\sim 25$  Мэв. В соответствии с данными работы [3] сечение реакции считалось слабо зависящим от вида первичных частиц. Поток тепловых нейтронов контролировался с помощью реакции  $Co^{59}(n, \gamma)Co^{60}$ . Плотности потоков, усред-

ненные по времени и по объему контейнеров, для частиц высокой энергии оказались равными  $(1,15 \pm 0,28) \cdot 10^6$  частиц/см<sup>2</sup>·сек, а для тепловых нейтронов —  $(5,2 \pm 0,9) \cdot 10^5$  нейтр/см<sup>2</sup> × сек.

После облучения образцы грунта выдерживались в течение двух месяцев. За это время короткоживущие изотопы ( $T_{1/2} \ll 1$  месяца) практически распались. Их изучение не представляло особого интереса, так как по оценкам, учитывающим возможные скорости движения грунтовых вод [4], за время, меньшее одного месяца, активность, вымытая из грунта, не распространится на значительное расстояние от ускорителя.

Измерения активности проводились на сцинтилляционном  $\gamma$ -спектрометре с кристаллом NaI(Tl) размером  $40 \times 40$  мм и на полупроводниковом спектрометре с Ge — Li-детектором объемом 20 см<sup>3</sup>.

Гамма-спектры снимались для 17 образцов грунта. В табл. 1 представлены результаты измерений  $\gamma$ -спектра одной из проб, полученные через два месяца после облучения. В  $\gamma$ -спектрах было четко выделено шесть линий, соответствующих изотомам  $Be^7$ ,  $Na^{22}$ ,  $Sc^{46}$ ,  $Mn^{54}$ .

Кроме экспериментальных данных в табл. 1 приведены рассчитанные значения выхода  $\gamma$ -квантов. Расчет проводился по известной формуле

$$q_{kj} = E \varepsilon_{kj} \left( 1 - \exp \left[ - \frac{\tau \ln 2}{T_k} \right] \right) \times \exp \left[ - \frac{t \ln 2}{T_k} \right] \sum_{(i)} \frac{\sigma_{ik} \cdot 6,02 \cdot 10^{23}}{A_i} \eta_i,$$

где  $q_{kj}$  ( $\gamma$ -квант/г·сек<sup>-1</sup>) — выход  $\gamma$ -кванта  $j$ -й энергии при распаде  $k$ -го изотопа в 1 г грунта за 1 сек;  $F$  (частиц/см<sup>2</sup>·сек) — плотность потока частиц, вызывающих рассматриваемую ядерную реакцию;  $\varepsilon_{kj}$  — число  $\gamma$ -квантов  $j$ -й энергии на один распад  $k$ -го изотопа;  $\tau$  — время облучения;  $T_k$  — период полураспада  $k$ -го изотопа;  $t$  — время после окончания облучения;  $\sigma_{ik}$  (см<sup>2</sup>) — усредненное по спектру первичных частиц сечение образования  $k$ -го изотопа из  $i$ -го изотопа;  $A_i$  — атомный вес  $i$ -го изотопа;  $\eta_i$  — весовая доля  $i$ -го изотопа в грунте.

Удельный выход  $\gamma$ -квантов различных изотопов, образовавшихся в грунте

Таблица 1

Исходный изотоп	Сечение реакции, мбарн	Радиоактивный изотоп	Период полураспада, сутки	Энергия $\gamma$ -квантов, Мэв	Число $\gamma$ -квантов на распад	Удельный выход $\gamma$ -квантов, квант/г·сек		Удельный выход $\gamma$ -квантов в насыщении *, квант/г·сек
						расчет	эксперимент	
C <sup>12</sup> O <sup>16</sup> Al <sup>27</sup> Si <sup>28</sup>	10 7 9,1 9,1	Be <sup>7</sup>	53,6	0,477	0,123	6,2	6,2±0,1	29
Na <sup>23</sup> Mg <sup>24</sup> Al <sup>27</sup> Si <sup>28</sup>	36,6 28,2 14,5 14,5	Na <sup>22</sup>	950	0,511 1,275	1,80 1,00	8,7 4,8	7,6±0,2 4,3±1,6	260 144
Fe <sup>56</sup>	27,6	Cr <sup>51</sup>	27,8	0,325	0,09	0,29	**	1,82
Fe <sup>56</sup>	6,84	Sc <sup>46</sup>	84	0,887 1,119	1,00 1,00	1,05 1,05	1,3±0,1 1,4±0,1	5,2 5,2
Fe <sup>56</sup>	54,1	Mn <sup>54</sup>	291	0,835	1,00	4,00	4,8±0,1	41
Fe <sup>58</sup>	1 барн	Fe <sup>56</sup>	45	1,098 1,289	0,56 0,44	0,115 0,091	<0,2 <0,2	0,55 0,43

\* Расчет по формуле (1),  $t = 0$ ,  $\tau \rightarrow \infty$ .  
\*\* Надежно не идентифицирован.

Изменение спектра частиц высокой энергии, падающих на контейнер, в самом объеме контейнера при расчете не учитывалось. Величины сечений реакций были взяты из работ [2, 3, 5—9].

Химический состав грунта, усредненный по всем образцам, а также химический состав пробы № 10 приведены в табл. 2.

Экспериментальные значения выхода изотопов для различных образцов изменяются в пределах, соответствующих изменению химического состава грунта.

Химический состав грунтов (вес.%) Таблица 2

Проба	H	C	O	Na	Mg	Al	Si	S	K	Ca	Fe
Грунт *	0,98	0,89	50,7	**	1,23	16,3	20,5	0,5	**	3,95	4,95
Образец № 10	0,40	0,80	50,0	**	1,46	12,0	24,8	0,44	**	4,0	6,1

\* Усреднено по 17 образцам.  
\*\* В пределах точности химического анализа элемента не обнаружено.

Кроме удельной активности грунта была экспериментально найдена степень вымывания различных изотопов водой, определяемая как отношение удельной активности расматриваемого изотопа, вымытого в воду, к его удельной активности в грунте при равенстве смешиваемых масс грунта и воды. Измерения проводились следующим образом. Равные массы грунта и воды тщательно перемешивались, смесь отстаивалась. В емкость, предназначенную для помещения на детектор, сливался верхний отстой, совершенно прозрачный при визуальном наблюдении. Затем измерялась удельная активность веществ, растворившихся в воде спустя одни сутки, два и четыре месяца после смешивания. В табл. 3 приведены отношения выхода  $\gamma$ -квантов радиоактивных изотопов, растворившихся в воде, к удельному выходу  $\gamma$ -квантов радиоактивных изотопов в облученном грунте. Эти отношения, выраженные в процентах, названы коэффициентами вымывания. Из табл. 3 видно, что изотоп Na<sup>22</sup> подвержен наибольшему вымыванию, причем максимальная концентрация изотопа в воде достигается, по-видимому, через несколько дней. С помощью полупровод-

никового детектора обнаружено также незначительное вымывание изотопа  $Mn^{52}$ . Вымывание остальных изотопов не замечено. Очень близкие результаты по степени вымывания радиоактивных изотопов получены в работе [10].

Кроме изотопов, испускающих  $\gamma$ -кванты, в грунте будут образовываться также и чистые  $\beta$ -излучатели. Оценки показывают, что из всего класса таких изотопов наибольшую активность будет иметь  $Ca^{45}$ . Оцененное значение удельной активности  $Ca^{45}$  (при насыщении) применительно к условиям эксперимента (см. табл. 1) составляет 4,2 *расп/г.сек.* Эта величина приблизительно в 40 раз меньше удельной активности  $Na^{22}$ .

На основании проведенных исследований можно сделать следующие выводы.

1. Измеренные значения выхода  $\gamma$ -квантов различных изотопов в грунте удовлетворительно согласуются с вычисленными значениями, если принять во внимание погрешность в величинах сечений реакций глубокого расщепления, составляющую, по-видимому, не меньше 15%.

2. Наибольшая удельная активность в насыщении соответствует изотопу  $Na^{22}$ , который подвержен наибольшему вымыванию из грунта в воду (до 20 вес. %).

3. Изотопы, испускающие только  $\beta$ -частицы, не вносят существенный вклад в общую удельную активность, образующуюся в грунтовой защите ускорителей протонов на высокие энергии.

Авторы выражают благодарность И. Р. Золотых и В. С. Фролову за помощь при отборе проб грунта, Д. И. Бережнову и А. Г. Храпцову за проведение химического анализа грунта, П. П. Вайшнису за предоставление для измерений  $Ge - Li$ -детектора.

Значения коэффициентов вымывания Таблица 3 радиоактивных изотопов

Изотоп	Время, прошедшее после смешивания		
	24 ч	2 месяца	4 месяца
$Be^7$	< 1	< 1	< 1
$Na^{22}$	$12 \pm 3$	$17 \pm 2$	$18 \pm 3$
$Sc^{46}$	< 7	< 10	< 7
$Mn^{54}$	< 5	$5 \pm 3$	< 5

Поступила в Редакцию 17/IV 1972 г.  
В окончательной редакции 27/VII 1972 г.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Б. В. Манько, Б. С. Сычев. Труды Радиотехнического института. Вып. 9. М., Изд. РТИ, 1971, стр. 117.
2. Н. А. Церфилов, О. В. Ложкин, В. И. Остроумов. Ядерные реакции под действием частиц высоких энергий. М.-Л., Изд.-во АН СССР, 1962.
3. G. Rudstam. Z. Naturf., 21A, 1027 (1966).
4. G. Higgins. J. Geophys. Res., 64, 1509 (1959).
5. E. Bruninx. High-Energy Nuclear Reaction Cross-section, CERN 61-1 (1961); CERN 62-9 (1964).
6. S. Charalambus, A. Rindi. Nucl. Instrum. Methods, 56, 125 (1967).
7. J. Cline. Nucl. Phys., A-169, 437 (1971).
8. И. В. Гордеев, Д. А. Кардашев, А. В. Малышев. Ядерно-физические константы. М., Госатомиздат, 1963.
9. D. Hughes, R. Schwartz. Neutron Cross-section. Second Edition, BNL, N.Y., 1958.
10. M. Awshalom et al. IEEE Trans. Nucl. Sci., Ns 18, 739 (1971).

## Рефераты статей, опубликованных в настоящем выпуске

УДК 621.039.54

Разработка тепловыделяющих элементов для энергетических реакторов на быстрых нейтронах. И. С. Головин, Ю. К. Библишвили, Т. С. Меньшикова. «Атомная энергия», 34, 147 (1973).

Сложность проблемы создания твэлов для быстрых энергетических реакторов заключается в необходимости сочетания высокой энерговыработки со значительным накоплением вторичного ядерного горючего при напряженных условиях эксплуатации.

Исследования ядерно-физических, химико-металлургических, механических и технологических характеристик целого ряда топливных и конструкционных материалов позволили определить направление разработок твэлов для активной зоны и зоны воспроизводства быстрых энергетических реакторов.

Наиболее подходящим материалом для оболочек твэлов является нержавеющая сталь аустенитного класса, которая в ближайшем десятилетии будет основным конструкционным материалом.

В качестве топливного материала активной зоны в первых загрузках энергетических реакторов на быстрых нейтронах БН-350 и БН-600 будет использоваться двуокись урана, а в дальнейшем намечается переход на окисное смешанное горючее ( $UO_2 - PuO_2$ ). Для изготовления сердечников твэлов этого типа предполагается применить метод прессования таблеток. В нашем представлении разумное сочетание механизации и автоматизации технологических процессов позволит исключить ручной труд, допустив кратковременные ручные операции при устранении неисправностей или замене оборудования. (4 рис., 1 табл., 11 библиографических ссылок.)

УДК 548.736

Система  $MoO_3 - UO_3$ . О. А. Устинов, М. А. Андрианов, Н. Т. Чеботарев, Г. П. Новоселов. «Атомная энергия», 34, 155 (1973).

Термографическим и рентгенографическим методами изучено взаимодействие окислов  $MoO_3$  и  $U_3O_8$  на воздухе в интервале