

А.Ю. ЛОНИН, канд. фарм. наук, научн. сотр., ННЦ ХФТИ,
В.В. ЛЕВЕНЕЦ, д-р физ.-мат. наук, нач. отдела, ННЦ ХФТИ,
А.П. ОМЕЛЬНИК, научн. сотр., ННЦ ХФТИ,
А.А. ЩУР, канд. физ.-мат. наук, нач. лаборатории, ННЦ ХФТИ,
И.В. ШЕВЧЕНКО, инж.-электроник, 2 кат., ННЦ ХФТИ

ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОЛИЧЕСТВЕННОГО СОДЕРЖАНИЯ ЦЕЗИЯ В ПРОБАХ ВОДНЫХ РАСТВОРОВ

Изучена возможность количественного определения цезия при энергии активации меньше 2,0 МэВ. Разработан способ подготовки мишеней пригодных для анализа на ядерно-физических комплексах с энергией до 2,0 МэВ. Получена линейная зависимость между количественным содержанием цезия и интенсивностью рентгеновского излучения L-серии цезия.

Ключевые слова: цезий, жидкие радиоактивные отходы, интенсивностью рентгеновского излучения L-серии цезия, ядерно-физический комплекс, детектор, мишень.

Вступление. Эксплуатация ядерных объектов связана с образованием радиоактивных отходов разной физической формы (жидкие, твердые, газообразные) и разной радиационной активности (низкоактивные отходы, высокоактивные отходы). Радиоактивные отходы имеют сложный изотопный состав, который для операций по последующей утилизации требует полной идентификации изотопов веществ.

Из общего объема радиоактивных отходов (РАО), 85 % составляют жидкие радиоактивные отходы (ЖРАО) [1]. ЖРАО имеют сложный изотопный состав, в который входят: ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{90}Sr и ^{60}Co . Значительную угрозу для организмов обслуживающего персонала и гражданских лиц представляют изотопы ^{137}Cs , ^{134}Cs . Особое внимание необходимо уделить долгоживущему изотопу ^{137}Cs – обладающему высокой миграционной способностью в организме человека [2, 3].

Поэтому моделирование обработки ЖРАО представляет наибольший интерес для последующего эффективного функционирования предприятий ядерной энергетики. Для упрощенного моделирования ЖРАО может проводиться определение одного радионуклида – цезия. Одним из вариантов позволяющим создавать такие модели и проводить количественное определение содержания цезия, является использование растворов содержащих ^{137}Cs

© О.Ю. Лонін, В.В. Левенец, О.П. Омельник, А.О. Щур, І.В. Шевченко, 2013

с низкой активностью [4]. Определение ^{137}Cs проводят путем альфа-спектрометрии. При этом сохраняется потенциальная угроза жизни и здоровью работающего персонала. Другим вариантом моделирования является использование растворов стабильного цезия, с последующим проведением количественного определения содержания цезия в подготовленных пробах с помощью γ -активационного анализа. Для активации используется ядерная реакция $^{133}\text{Cs} (\gamma, n) ^{132}\text{Cs}$ (порог реакции 9,1 МэВ) измерение активности ^{132}Cs ($T_{1/2} = 6,47$ дней) по γ -линии с энергией 668 кэВ [5]. При этом происходит большой нагрев мишеней, что требует использования теплозащиты – слой алюминия 6 см, а также использования в качестве подложки алюминиевой фольги стойкой к нагреву [6, 7]. Полученные после активации мишени сохраняют длительное время высокий уровень наведенной активности, что создает дополнительную опасность для работающего с мишенями персонала. Использование таких энергетических мощностей приводит к снижению экономической эффективности данного метода.

Постановка задачи. Целью исследований – разработка методики определения цезия, выделенного из водного раствора на углеродную подложку, с использованием мгновенного ядерно-физического метода активации мишени пучком протонов с энергией 1,6 МэВ и регистрацией характеристического рентгеновского излучения L-серии.

Основным отличием разработанной методики является использование протонного пучка для активации цезия не создающего наведенной активности и способа приготовления мишеней, заключающегося в получении сухого остатка раствора содержащего цезий, нанесенного на подложку. Обычно в качестве подложки используется алюминий. В ходе работ была использована подложка из чистого углерода. Это позволило увеличить срок сохранности мишени и дало возможность ее многократного использования.

Методы и объекты исследований. Для моделирования ЖРАО использовался водный раствор азотнокислого цезия – CsNO_3 . Готовились пробы с различными содержаниями цезия.

При приготовлении мишеней использовалась углеродная подложка (углерод ОСЧ). Раствор, содержащий цезий точно дозированного объёма наносился на углеродную подложку и высушивался, при нагреве до 35 °С.

Аналитическая часть работы выполнялась на аналитическом ядерно-физическом комплексе «Сокол» [8]. Для измерений использовались мишени из сухого остатка раствора на углеродной подложке. Активация цезия прово-

дидась пучком протонов с энергией $E_p \approx 1600$ кэВ, среднем токе $I_p \approx 150$ нА. Регистрация возбуждаемого характеристического рентгеновского излучения L-серии атомов цезия осуществлялась с помощью Si-pin детектора с разрешением 155 эВ по линии 6.4 кэВ. Детектор был размещен на расстоянии 7 см от мишени, под углом 45° к пучку. На рис. 1 показана схема камеры облучения.

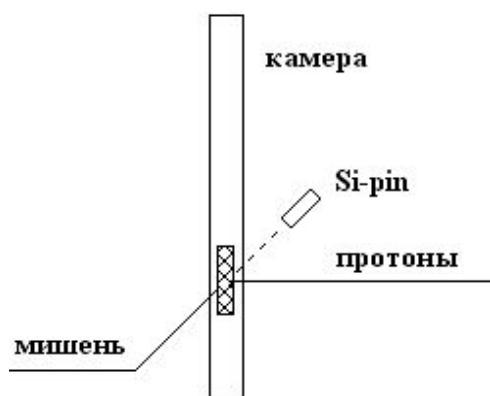


Рис.1 – Расположение Si-pin детектора относительно пучка протонов и камеры с образцами

Si-pin детектор был снабжен коллиматором $\varnothing 2,5$ мм и полихлорвиниловым поглотителем толщиной 150 мкм.

Относительная погрешность измерений не превышала 5 %.

Необходимо учитывать, что в отличие от методов, где активация цезия проводится при больших энергиях, есть возможность расположение детектора вблизи мишени и снятие спектров возбужденного цезия во время облучения. Отпадает необходимость дополнительной транспортировки мишеней, что позволяет повысить безопасность работающего персонала и населения, а также повышает надежность измерений.

Результаты и обсуждение. По результатам измерений спектров образцов с различными величинами содержания цезия был построен график зависимости содержания цезия (0 мг – 0,080 мг) от интенсивности рентгеновского излучения L-серии цезия (рис. 2).

Из графика видна хорошая линейная зависимость концентрации цезия от интенсивности рентгеновского излучения во всем диапазоне концентраций.

В ходе исследований были определено влияние радиационного и теплового воздействия пучка протонов на изменение содержания цезия в мишени, приготовленной на углеродной подложке. Для чего мишень с содержанием цезия 0,0682 мг была подвергнута длительному облучению на пучке протонов с энергией 1600 кэВ с периодическими измерениями выхода характеристического рентгеновского излучения L-серии цезия.

Полученные данные (таблица) свидетельствуют о том, что мишени из сухого остатка раствора солей цезия на углеродной подложке выдерживают такое воздействие пучка протонов с сохранением удельного выхода аналитического излучения.

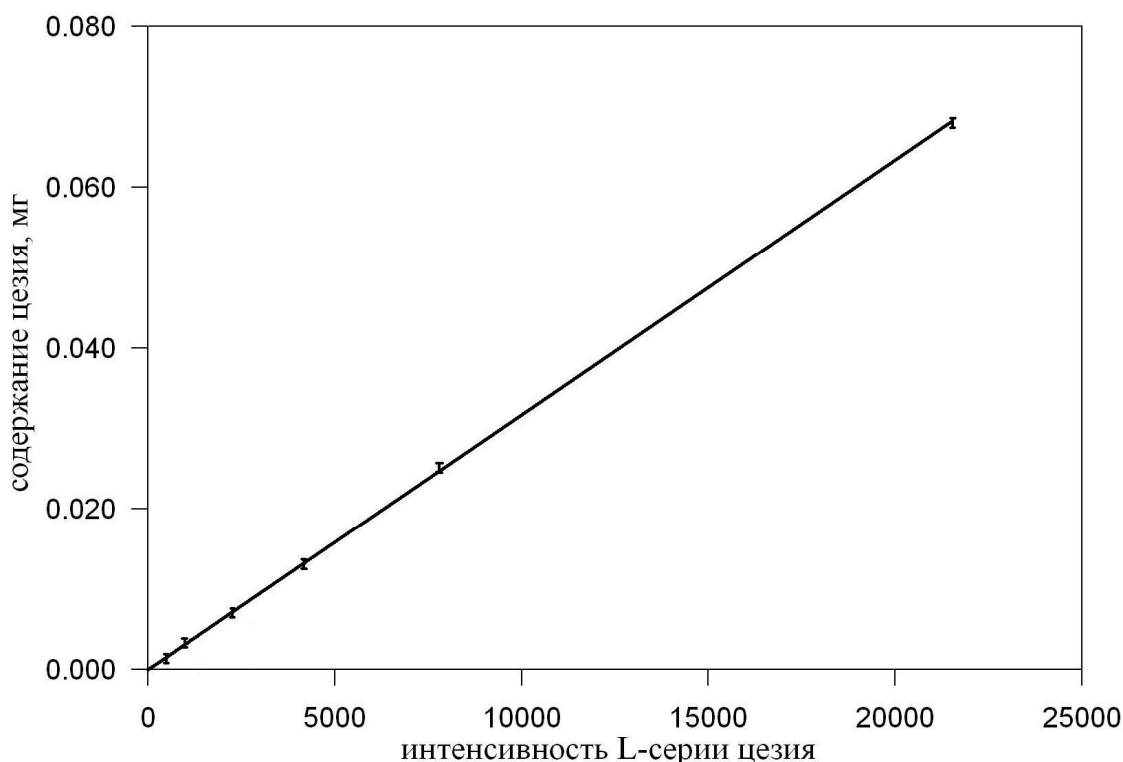


Рис. 2 – Зависимость содержания цезия от интенсивности рентгеновского излучения L-серии цезия

Таблица – Влияние воздействия пучка протонов на интенсивность рентгеновского излучения L-серии цезия

№ п/п	Ток, нА	Заряд, мк.Кл.	J, интенсивность рентгеновского излучения L-серии цезия	J _{ср} , среднее значение	S _r
1	150	45	19518	20532.0	593.97
2	150	45	20315		
3	150	45	20713		
4	150	45	21293		
5	150	45	20544		
6	150	45	20809		

Типичный вид спектра х.р.и. исследуемой мишени, измеренный при указанных выше экспериментальных условиях приведен на рис. 3.

Кроме этого, это указывает на то, что использование углеродной подложки, для приготовления мишеней, дает более прочную связь сухого остатка опытного раствора с подложкой. Это осуществляется за счет сорбционного взаимодействия опытного раствора и подложки, которое происходит во время нанесения раствора на углеродную поверхность и в процессе сушки мишени.

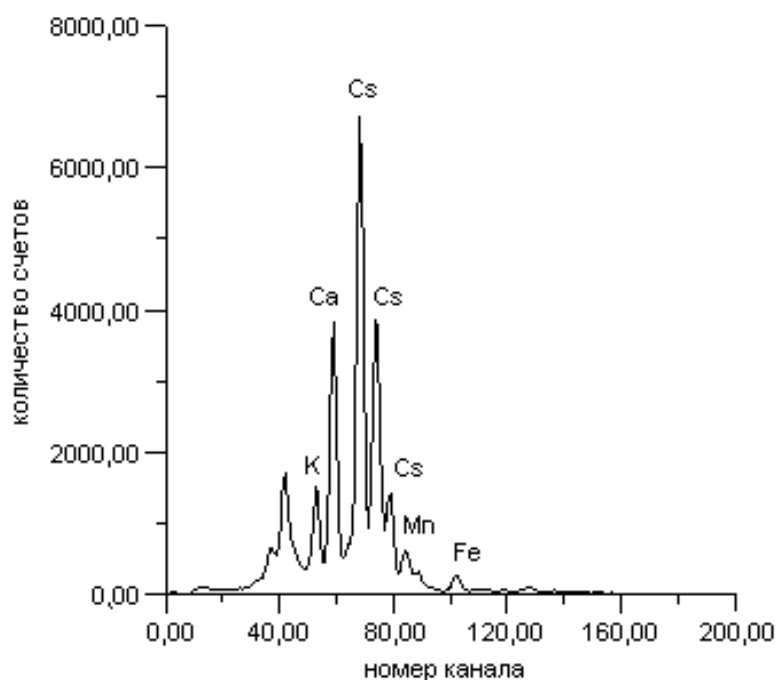


Рис. 3 – Спектр характеристического рентгеновского излучения углеродной мишени содержащей сухой остаток водного раствора цезия

В отличие от этого, применение алюминиевой подложки при приготовлении мишеней может привести к расслоению мишени при температурном воздействии, что обусловлено большой разницей коэффициентов теплопроводности алюминия и сухого остатка раствора содержащего цезий.

Выводы. Был исследован новый способ приготовления мишеней на основе углеродной подложки. Полученные мишени пригодны для длительного хранения и могут подвергаться длительному воздействию пучка протонов с сохранением удельного выхода характеристического излучения цезия.

Использование для активации цезия пучка протонов с энергией 1,6 МэВ позволяет проводить работы по спектрометрии непосредственно во время активации. Это значительно повышает точность измерений, уменьшает временные затраты на выполнение аналитической части, снижает дополнительные риски связанные с транспортировкой и хранением «горячих» образцов.

Предложенная методика может быть использована в модельных экспериментах для оценки производственных отходов предприятий задействованных в ядерном цикле, а также сточных и канализационных вод предприятий Украины различной направленности. Методика позволяет дать оценку эффективности работы очистных сооружений используемых для очистки вод от ионов цезия.

Список литературы: 1. Герасимова Л.Г. Разработка технологии получения и применения сорбентов радионуклидов на основе техногенных отходов обогащения апатито-нефелиновых руд / [Л.Г. Герасимова, Д.В. Майоров, М.В. Маслова и др.] // Альтернативная энергетика и экология. – 2005. – № 2 (22). – С. 39 – 41. 2. Пантелеев Ю.А. Аналитические методы определения компонентов жидких радиоактивных отходов / [Ю.А. Пантелеев, А.М. Александрук, С.А. Никитина и др.] // Труды Радиового института им. В. Г. Хлопина. – 2007. – Т. XII. – С. 123 – 147. 3. Маслов А.А. Очистка жидких радиоактивных отходов сорбентами на основе минерального сырья Кольского региона в статических условиях / А.А. Маслов, Х.Б. Авсарагов // Вестник МГТУ. – 2007. – Том 10, № 4. – С. 621 – 623. 4. Lonin A. Yu. Investigation of radionuclide ¹³⁷Cs sorption by natural and synthetic zeolites / A.Yu. Lonin, A.P. Krasnopyorova // Problems of Atomic Science and Technology. – 2004. – № 5. – (Series: Nuclear Physics Investigations (44)). – P. 82 – 84. 5. Ажажа Ж.С. Методика определения эффективных коэффициентов диффузии радионуклидов в стеклокерамическом материале для изоляции высокоактивных отходов / [Ж.С. Ажажа, С.В. Габелков, Н.П. Дикий и др.] // Вопросы атомной науки и техники. – 2005. – № 5. – (Серия: Физика радиоактивных повреждений и радиоактивное материаловедение (88)). – С. 128 – 132. 6. Лонин А.Ю. Влияние степени измельчения клиноптилолита на его сорбционные свойства в отношении радионуклида цезия / А.Ю. Лонин // Новости научной мысли: науч.-практ. конф., 27 окт.-05 нояб. 2009 г.: тезисы докл. – Прага (Чехия), 2009. – С. 42 – 44. 7. Dikiy N.P. Nanostructural deactivating agents selective to caesium / [N.P. Dikiy, A.N. Dovbnya, Yu.V. Lyashko at all] // Problems of Atomic Science and Technology. – 2011. – № 3. – (Series: Nuclear Physics Investigations (55)). – P. 35 – 41. 8. Бондаренко В.Н. Аналитический ядерно-физический комплекс ННЦ ХФТИ “Сокол” / [В.Н. Бондаренко, Л.С. Глазунов, А.В. Гончаров и др.] // Current Problems in Nuclear Physics and Atomic Energy: international conf., 29 may-03 june, 2006 y.: abstracts. – Kyiv (Ukraine), 2006. – P. 852 – 857.

Поступила в редколлегию 05.06.13

УДК 539.172.12

Визначення кількісного змісту цезію в пробах водних розчинів / О.Ю. ЛОНИН, В.В. ЛЕВЕНЕЦ, О.П. ОМЕЛЬНИК, А.О. ЩУР, І.В. ШЕВЧЕНКО // Вісник НТУ «ХП». – 2013. – № 47 (1020). – (Серія: Хімія, хімічна технологія та екологія). – С. 82 – 87. – Бібліогр.: 8 назв.

Вивчена можливість кількісного визначення цезію при енергії активації менше 2,0 МэВ. Розроблен спосіб підготовки мішеней придатних для аналізу на ядерно-физических комплексах з енергією до 2,0 МэВ. Одержана лінійна залежність між вмістом цезію та інтенсивністю рентгенівського випромінювання L-серії цезію.

Ключові слова: цезій, рідкі радиоактивні відходи, інтенсивністю рентгенівського випромінювання L-серії цезію, ядерно-физический комплекс, детектор, мішень.

Is studied the possibility quantitative determination of cesium in the targets for the activation energy of the cesium is less than 2.0 MeV. Has been provide the method of preparation of the targets are suitable for analysis by nuclear-physical complexes with energies up to 2.0 MeV. Derive linear dependence of between the quantitative content of cesium and intensity of X-ray radiation of cesium L-series.

Keywords: cesium, radioactive effluent, X-ray intensity cesium, nuclear-physical complex, detector, target.