УДК 621.039.573

РАСЧЕТНО-ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ВОЗМОЖНОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ИМПУЛЬСНОГО РЕАКТОРА ДЛЯ ПРОВЕДЕНИЯ НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА ПРОБ ГЕОЛОГИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ

В.И. Бойко*, М.Е. Силаев**, Ю.С. Черепнин***, И.В. Шаманин*

- *Томский политехнический университет, г. Томск
- * * Национальный ядерный центр Республики Казахстан, г. Курчатов
- * * * Научно-исследовательский и конструкторский институт энерготехники;
- г. Москва



Рассмотрены возможности использования импульсного графитового реактора (ИГР) для проведения нейтронно-активационного анализа (НАА) проб геологических материалов. Проанализированы технические, нейтронно-физические и теплофизические параметры реактора, влияющие на процесс облучения и анализа исследуемых материалов. Выполнено сравнение возможностей проведения НАА в промышленных масштабах на ИГР и других исследовательских реакторах. Приведены некоторые результаты анализов.

ВВЕДЕНИЕ

При выполнении геолого-разведочных работ, а также во всех видах производства, связанных с добычей и переработкой полезных ископаемых, необходимо проводить большой объем аналитических исследований, связанных с определением элементного состава геологических материалов. Наиболее общие требования к выполнению подобного рода анализов: оперативность, высокая чувствительность, большая производительность при сохранении высокого качества и минимальных затратах. НАА является одним из основных методов элементного анализа проб. Он относится к числу наиболее универсальных (по перечню определяемых элементов) и чувствительных методов анализа (предел обнаружения для большинства элементов находится в интервале $10^{-11} \div 10^{-7}\%$). Кроме того, у него нет каких-либо существенных концентрационных ограничений, т.е. он пригоден для определения как высоких, так и низких концентраций элементов в пробах. Универсальность НАА делает возможным его широкое использование для анализа геологических материалов, а высокая чувствительность ставит в разряд арбитражных методов.

Как и любой другой метод, НАА характеризуется своими возможностями и ограничениями, которые связаны не только с ядерно-физическими свойствами элементов. В значительной степени они определяются экспериментальной базой, исполь-

[©] В.И. Бойко, М.Е. Силаев, Ю.С. Черепнин, И.В. Шаманин, 2006

зуемой для проведения анализов. Основными составляющими экспериментальной базы являются источник излучения и измерительная аппаратура. Измерительная часть может быть развита и приспособлена к проведению анализов с заданными параметрами и в необходимом объеме. Гораздо большие ограничения возникают в использовании источника излучения. Для целей НАА пригодны любые источники нейтронного излучения, однако их характеристики имеют ключевую роль, определяя практически все значимые параметры метода — перечень определяемых элементов, чувствительность анализов и производительность работ. Наиболее широкие возможности для анализа реализуются при использовании в качестве источника нейтронов ядерного реактора.

Режим облучения проб в реакторе может быть различным. Импульсный режим имеет неоспоримое преимущество для использовании его в целях НАА. Он позволяет в максимально короткий срок добиться наибольшего уровня активации материала пробы, что является особенно важным для элементного анализа с помощью короткоживущих продуктов активации. Эффективность активации образцов в импульсном и стационарном режимах работы реактора может отличаться в 100 ÷ 1000 раз [1]. Поэтому многие серийные исследовательские реакторы, в перечень предназначения которых входит проведение нейтронно-активационного анализа, имеют возможность работы в импульсном режиме (например, ИИН [1], TRIGA [2]). Импульсный графитовый реактор ИГР первоначально не предполагалось использовать для целей облучения геологических проб. Однако в последнее время были проведены исследования для изучения возможности его применения в целях облучения проб для НАА.

Основной целью работы являлось достижение промышленных масштабов использования реактора ИГР для проведения нейтронно-активационного анализа геологических материалов.

Основные решаемые задачи:

- определение возможностей использования ИГР для облучения проб;
- разработка и отработка технологии облучения и анализов проб;
- разработка и отработка промышленной технологии облучения проб.

Основными условиями и характеристиками, влияющими на облучение проб геологических материалов в реакторе являются:

- наличие специальных сооружений и систем, обеспечивающих возможность проведения облучения и последующих анализов;
- наличие и геометрические параметры доступных для облучения проб экспериментальных каналов реактора;
 - нейтронно-физические параметры реактора;
 - термодинамические параметры облучения.

КОНСТРУКТИВНЫЕ ОСОБЕННОСТИ И ПАРАМЕТРЫ ИГР

Реакторный комплекс ИГР обладает необходимым для проведения НАА набором сооружений и систем. Помимо прочих, к разряду имеющихся относятся принципиально необходимые для реализации технологии НАА: системы газового и водяного охлаждения экспериментальных каналов; система загрузки-выгрузки экспериментальных устройств; хранилища РАО [4].

Реактор ИГР оснащен двумя экспериментальными каналами вертикального расположения. Оба могут использоваться для облучения проб геологических материалов. Геометрические параметры каналов приведены в табл. 1.

Традиционной для реактора, работающего в стационарном режиме мощности, является схема поведения НАА с последовательным перемещением проб в экспериментальном канале с помощью пневмо- или гидропочты. При такой схеме производитель-

Таблица 1

Каналы ИГР, пригодные для облучения геологических проб

Канал	Диаметр, мм	Высота (по активной зоне), см
Центральный экспериментальный канал (ЦЭК)	228	140
Боковой экспериментальный канал (БЭК)	82	140

ность процесса облучения проб определяется геометрическими размерами канала, длительностью процесса облучения и возможностями реактора в поддержании стационарного уровня мощности. Обычно производительность не превышает нескольких сот проб/сутки, а размер пробы — нескольких грамм. Для импульсного режима облучения использование последовательной схемы перемещения проб является бессмысленным в силу кратковременности самого процесса облучения. Поэтому производительность облучения определяется загрузкой канала исследуемым материалом во время пуска реактора. Геометрические параметры экспериментальных каналов ИГР (особенно ЦЭК) превосходят параметры каналов других исследовательских реакторных установок различного типа (ВВР [1], ИИН [1], СМ-2 [1], ИРТ-2000 [3]). Таким образом, реактор ИГР предоставляет более широкие возможности в облучении проб.

Реактор ИГР работает в двух основных режимах [4]:

«вспышки» — нерегулируемый нейтронный импульс, амплитуда и длительность которого определяются величиной начальной реактивности;

«импульса» – регулируемый (в том числе стационарный) режим, при котором мощность реактора изменяется по заранее заданному закону.

Основные технические характеристики реактора:

• максимальное энерговыделение, ГДж	5.2:
• температура топлива, К	≤1400;
 плотность потока тепловых нейтронов, см⁻²с⁻¹: 	,
- в импульсном режиме	$0,7 \cdot 10^{17};$
- в стационарном режиме	$0.7 \cdot 10^{16}$;
• максимальный флюенс тепловых нейтронов, см-2	$3,7\cdot10^{16}$.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ В ОБОСНОВАНИЕ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ ИГР ДЛЯ НАА

При проведении нейтронно-активационного анализа основными значимыми параметрами нейтронного поля в месте облучения проб являются: плотность потока, флюенс, энергия, а также коэффициенты анизотропии и асимметрии [5].

Значение плотности потока нейтронов реактора ИГР является практически предельным для большинства материалов. Именно этот факт позволил, в частности, использовать реактор для изучения аварий реактивностного типа с плавлением и разрушением элементов активной зоны ядерных реакторов.

Достижимый диапазон значений интегрального флюенса ИГР соответствует потребностям нейтронно-активационного анализа, для проведения которого в большинстве случаев, необходимое значение указанной величины составляет 10^{15} см⁻².

Цикл работ по исследованию спектрального состава нейтронного излучения в реакторе ИГР был проведен совместно с РФЯЦ-ВНИИТФ [6, 7]. Было проведено расчетное и экспериментальное определение спектральных характеристик поля нейтронов в экспериментальных каналах реактора. Расчетное моделирование спектра поля нейтронов в экспериментальных каналах ИГР выполнено с помощью двух расчетных кодов — ПРИЗМА.Д и МСNР-4В. Для экспериментального определения параметров спектра нейтронов реактора ИГР были использованы стандартные наборы активаци-

онных детекторов и детекторов, изготовленных на основе делящихся материалов. Детекторы облучали в открытом виде, в кадмиевых экранах (1 мм Cd) и в составных экранах из кадмия и бора (1 мм Cd + 1 г/см 2 10 B). Для восстановления энергетических спектров нейтронов в диапазоне энергий от 0,5 эВ до 18 МэВ был использован алгоритм, разработанный на основе программы МНР [8]. В этом алгоритме используются активационные резонансные детекторы, облученные в кадмиевых и борных экранах, детекторы на основе делящихся материалов и активационные пороговые детекторы быстрых нейтронов. В качестве начальных приближений были взяты спектры из библиотеки классифицированных нейтронных спектров БКС-2. Такими спектрами, наиболее близкими по условиям их формирования к спектрам реактора ИГР, являются спектр в центре активной зоны графитового реактора в Хэнфорде (средняя энергия надтепловых нейтронов 0,214 МэВ) и спектр в графитовом отражателе реактора ИР-100 (средняя энергия надтепловых нейтронов 0,323 МэВ).

Некоторые характерные результаты расчетов и экспериментов представлены на рис. 1, 2.

Анализ спектрального состава нейтронов позволил установить следующие важные аспекты, имеющие значение для проведения облучения и анализа проб геологических материалов с помощью реактора ИГР:

• тепловая составляющая спектра нейтронов в экспериментальных каналах реактора ИГР не превышает 50%; наличие существенной надтепловой и быстрой составляющих спектра с энергией нейтронов свыше 3 МэВ указывает на возможность их эффективного использования для активации материалов проб, при этом может быть получена дополнительная информация об элементном составе исследуемых матери-

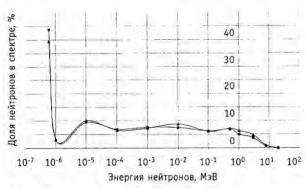


Рис. 1. Спектральный состав нейтронов в центре и на краю активной зоны ЦЭК реактора ИГР (МНР):

■ – край активной зоны; ▲ – центр активной зоны

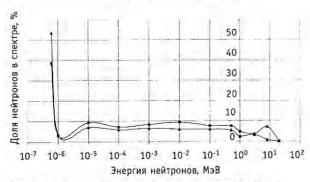


Рис. 2. Спектральный состав нейтронов в центре БЭК (О см) реактора ИГР: ■ – МСNР; ▲ — эксперимент

алов, что в дальнейшем нашло свое подтверждение в экспериментальных работах;

• отличия спектров в центре и на периферии активной зоны реактора незначительны; этот факт позволяет существенно снизить объемы работ, связанных с определением спектральных характеристик поля нейтронов во время облучения проб; уменьшение объема работ достигается путем замены полномасштабных исследований спектра нейтронов по всему объему канала определением относительного распределении флюенса нейтронов по его высоте и спектральных характеристик в какой-либо одной контрольной точке.

В экспериментах по определению относительных величин распределения нейтронных потоков на реакторе ИГР использовались проволоки из химически чистой меди толщиной 1 мм и нихрома толщиной 1,1 мм. Для этих же

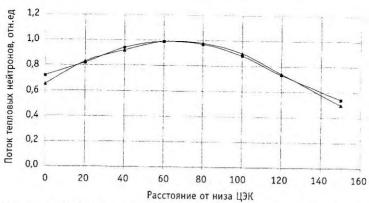


Рис. 3. Распределение нейтронов по высоте экспериментальных каналов ИГР: ■ – ЦЭК; ▲ – БЭК

целей из медной фольги толщиной 0,1 мм изготавливались образцы в форме дисков диаметром 1 см. Характерные результаты экспериментов по определению распределения нейтронного потока по высоте ЦЭК и БЭК ИГР представлены на рис. 3.

Отличия в значениях нейтронных потоков в центре и на периферии реактора ИГР не превышают 35%.

Распределение нейтронного потока по радиусу экспериментальных каналов является равномерным с точностью до величины погрешности измерений (3%).

Отсутствие значительных неравномерностей в нейтронном потоке внутри экспериментальных каналов реактора ИГР является еще одной отличительной особенностью, упрощающей проведение НАА. Равномерность потока значительно сокращает объем работ, связанных с определением спектра и флюенса, упрощает и делает более точной всю процедуру активационного анализа.

Термодинамические параметры облучения материалов являются одним из основных факторов, ограничивающим использование импульсного реактора ИГР для нейтронно-активационного анализа. Проблемы связаны с кратковременностью и большой интенсивностью радиационного разогрева материалов, а также трудностью отвода большого количества тепла за короткое время. Радиационному разогреву подвергаются все конструкции и материалы, задействованные в процессе облучения: реактор, экспериментальные устройства, пробы.

Система охлаждения реактора является пассивной. Разогрев зоны ограничен температурой 1400 К. Однако при полном интеграле мощности реактора радиационный разогрев активной зоны настолько велик, что не позволяет производить свыше одного реакторного пуска за сутки.

Радиационный разогрев ограничивает также возможности использование материалов для изготовления экспериментальных устройств, предназначенных для облучения проб. Они выполняются из материалов, имеющих небольшое значение сечения захвата нейтронов — полиэтилен, алюминий, графит. Плавление полиэтилена в реакторе ИГР наблюдается при интегральном флюенсе $(0,6 \div 0,7) \cdot 10^{16}$ см⁻². Ядерночистый алюминий слишком дорог. Попытка использовать обычный технический алюминий оказалась неудачной. Извлечение и разборка экспериментального устройства с пробами после облучения в реакторе вызвали большие затруднения, т.к. уровень мощности эквивалентной дозы вблизи устройства превышал 1 3в/ч. Поэтому устройства для облучения проб в промышленных масштабах изготавливались из ядерночистого графита марки ГМЗ.

Принудительное охлаждение экспериментального канала и расположенных в нем экспериментальных устройств, предназначенных для облучения проб в реакторе ИГР, не используется. Основными причинами для этого являются: необходимость в сни-

жении затрат, связанных с облучением; теплофизические свойства материала экспериментальных устройств (графит, полиэтилен), имеющих низкую теплоотдачу; сложность организации теплосъема с устройства для облучения проб, почти полностью занимающего объем экспериментального канала при проведении НАА в промышленных масштабах.

Использование материалов — индикаторов нейтронного потока на ИГР также ограничено радиационным разогревом. При отсутствии принудительного охлаждения и полном интеграле мощности реактора происходит не только плавление, но и испарение индикаторов, выполненных на основе особо чистого золота. Этот факт является одной из причин, по которой для нейтронно-физических исследований в качестве нейтронных индикаторов были использованы такие материалы как медь, цинк и нихром, которые в силу своих ядерно-физических свойств гораздо менее подвержены радиационному разогреву. Кроме того, при флюенсе нейтронов 0,5·10¹⁶ см⁻² и более происходит плавление кадмиевой фольги. Таким образом, имеется ограничение по использованию метода «кадмиевой разности» для определения активации проб по трем группам нейтронов (тепловой, эпитепловой и быстрой).

НЕКОТОРЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ОБЛУЧЕНИЯ ПРОБ В РЕАКТОРЕ

На реакторе ИГР была разработана и внедрена технология облучения геологических проб, содержащих самородное золото.

На процедуру определения золота в геологических материалах оказывают существенное влияние ряд природных факторов, делающих эту задачу самостоятельной и достаточно сложной. К таким факторам относятся:

- низкая относительная концентрация золота в исследуемом материале;
- негомогенность исследуемых материалов, в том числе возможность нахождения в нем самородных частиц золота;
 - разнообразие геологических основ исследуемого материала.

Перечисленные факторы определяют следующие особенности в подготовке и проведении анализов:

- для выполнения анализов требуется специальная пробоподготовка, требующая, как правило, измельчение исследуемого материала до 200 меш. с последующим уменьшением количества исследуемого материала методом его квартования по конусу или каким-либо другим методом [9];
- представительность пробы считается обеспеченной при использовании в анализах значительного количества материала, прошедшего пробоподготовку, от 50 до 100 г [9].

Для облучения объемных проб геологических материалов в ИГР было разработано и паспортизовано облучательное устройство, представляющее собой «колонну» из ядерно-чистого графита, содержащую ниши для проб. Размеры колонны соответствуют габаритным параметрам ЦЭК реактора. С помощью ЦЭК ИГР были проделаны эксперименты по одновременному облучению до 100 проб геологического материала массой от 50 до 80г в разработанном устройстве. Исходя из того, что в течение суток может быть проведено несколько пусков реактора, был сделан вывод о том, что производительность реактора ИГР в облучении геологических материалов с использованием разработанного устройства не только не уступает, но значительно превосходит производительность большинства исследовательских реакторных установок.

Качество проведения анализов было проверено в серии тестовых экспериментов. Серия состояла из двух реакторных пусков. Во время первого эксперимента в реакторе были облучены дубликаты проб, концентрация в которых золота была ранее определена в центральной заводской лаборатории г. Караганды пробирным методом.

Результаты анализов показали хорошую сходимость значений концентраций, полученные различными методами (свыше 80% анализов имеют различия, не превышающие 20%). Для второго облучения использовались пробы, предоставленные ТОО «ФМЛ Казахстан», представляющие собой образцы стандартного содержания (ОСС), концентрация в которых определяемого элемента (золота) не была заранее известна. Результаты анализов показали, что полученные значения концентраций отличаются от паспортных не более чем на 10% [10] (табл. 2).

Анализ образцовых проб с облучением на ИГР

Таблица 2

№ пробы	1	2	3	4	5
Содержание золота в пробе согласно результатам анализов, г/т	0,98	6,84	0,36	0,91	0,38
Содержание золота в пробе согласно паспортным данным на ОСС, г/т	1,007	6,662	0,389	1,007	0,389

Помимо анализа содержания золота в геологических материалах с помощью реактора ИГР исследовалось содержание в пробах других элементов. Анализ несамородных материалов с помощью реактора ИГР обычно являлся многоэлементным. Масса пробы для выполнения представительного анализа несамородных материалов не превышает 5 г [9]. Полное использование объема каналов реактора ИГР позволяет одновременно проводить облучение нескольких тысяч таких проб. Такие возможности в облучении практически снимают ограничения в промышленном проведении анализов. Производительность их выполнения ограничивается уже не процессом облучения, а процессом анализа облученного материала.

В экспериментах на реакторе ИГР исследовались не только геологические материалы, но и экологические пробы (например, пробы грунта) и др. Так, в ходе проведения рекультивации территории шахтных пусковых комплексов (ШПУ) было выполнено экологическое обследование, включающее определение содержания в почве основных тяжелых металлов и токсичных элементов. Некоторые результаты анализов, полученных с помощью облучения проб почвы на реакторе ИГР представлены в табл. 3. Значения содержаний определяемых элементов соответствует естественному (кларковому) уровню с незначительными вариациями, характерными для верхних слоев грунта.

Чувствительность анализов в таких исследованиях обычно является задаваемой величиной. Ее порядок обеспечивается степенью активации проб и формой выполнения последующего анализа (инструментальный или с химическим выделением). В большинстве случаев облучение проб на реакторе ИГР обеспечивает возможность последующего выполнения многоэлементных анализов инструментальным методом, т.к. степень облучения материала является достаточно высокой.

Многоэлементный анализ проб ШПУ

Таблица 3

№ площадки	Содержание элементов в пробах до и после рекультивационных работ, г/г							
	Sb, до	Sb, после	As, до	As, после	Сг, до	Сг, после		
373	1,32·10 ⁻⁷	2,03·10 ⁻⁷	6,97·10 ⁻⁷	9,40-10-7	6,28·10 ⁻⁶	9,07·10 ⁻⁶		
374	1,63·10 ⁻⁷	8,23·10 ⁻⁷	9,36·10 ⁻⁷	1,56·10 ⁻⁶	8,41.10-6	6,30·10 ⁻⁶		
375	1,68·10 ⁻⁷	1,33.10-7	5,09·10 ⁻⁷	3,82·10 ⁻⁷	6,81·10 ⁻⁶	5,99·10 ⁻⁶		
376	1,42·10 ⁻⁷	1,85·10 ⁻⁶	5,64·10 ⁻⁷	9,76·10 ⁻⁷	5,87·10 ⁻⁶	7,77·10 ⁻⁶		
377	1,64·10 ⁻⁷	1,48·10-7	5,11·10 ⁻⁷	5,33·10 ⁻⁷	6,74·10 ⁻⁶	6,17·10 ⁻⁶		

выводы

Исходя из результатов проведенных расчетно-экспериментальных работ, в отношении реактора ИГР были сформулированы следующие выводы:

- 1. На реакторе существуют все необходимые возможности для облучения проб геологических материалов в целях определения их элементного состава нейтронно-активационным методом.
- 2. Возможности ИГР в облучении проб, по сравнению с другими исследовательскими реакторами (ВВР, ИНН, TRIGA и т.п.), являются более широкими практически по всем аспектам технологии выполнения нейтронно-активационного анализа. Технические и нейтронно-физические параметры реактора предоставляют уникальные возможности для облучения и последующего анализа геологических проб с минимальными затратами и максимальным качеством.
- 3. Преимущества реактора могут быть реализованы наилучшим образом для анализа проб неоднородных материалов, имеющих большой объем (например, самородное золото), а также для определения элементного состава материалов по короткоживущим нуклидам и при проведении многоэлементных анализов. Степень облучения материалов в реакторе достаточно высока для использования инструментального метода анализа в большинстве случаев.
- 4. Ограничения в использовании реактора ИГР для проведения НАА в промышленных масштабах вызваны, в основном, проблемой организации принудительного охлаждения экспериментальных устройств при облучении.
- 5. Разработаны и реализованы технологии для проведения нейтронно-активационного анализа геологических материалов на ИГР в промышленных масштабах. Имеется положительный опыт использования разработанных технологий.

Литература

- 1. $\it Eamb$ $\it \Gamma.A.$, $\it Kovehos$ $\it A.C.$, $\it Kaбahos$ $\it J.\Pi.$ Исследовательские ядерные реакторы. $\it M.$: Атомиздат, 1992. 271 с.
- 2. Научно-экспериментальная база атомной промышленности зарубежных стран. Справочник/Под ред. А.К. Круглова, Ю.В. Смирнова. М.: Энергоатомиздат, 1987. 408 с.
- **3.** *Крамер-Агеев Е.А., Трошин В.С., Тихонов Е.Г.* Активационные методы спектрометрии нейтронов. M: Aтомиздат, 1976. 232 c.
- 4. Pakhnitz V.A., Pavshook V.A., Cherepnin Yu.S., Talyzin V.M. Impulse Graphite Reaktor IGR: Proc. of International Embedded Topical Meeting Physics, Safety, and Applications of Pulse Reactors. Washington, 1994. P. 123-125.
- **5.** *Кузнецов Р.А.* Активационный анализ. М.: Атомиздат, 1967 323 с.
- **6.** Горин Н.В., Кандиев Я.З., Литвин В.И. и др. Расчетно-экспериментальное исследование особенностей спектра нейтронов ИГР// Атомная энергия. -2000.-T.89.-Bып. 3.-C.233-237.
- 7. Горин Н.В., Кандиев Я.З., Кашаева Е.А. и др. Особенности поля тепловых нейтронов в экспериментальном канале ИГР// Атомная энергия. 2001. Т.90. Вып. 4. С. 251-256.
- 8. *Брискман Б.А., Генералов В.В., Крамер-Агеев Е.А., Трошин В.С.*Внутриреакторная дозиметрия. М.: Энергоатомиздат, 1985. 200с.
- 9. Производственное геологическое объединение «Восток Казгеология». Центральная лаборатория. Справочные данные о лабораторной службе (утверждены Министерством геологии СССР). Усть-Каменогорск, 1988. 47 с.
- 10. Недбаев И.Н., Пивоваров О.С., Колодешников А.А., Силаев М.Е. и др. Акт о проведении нейтронно-активационного анализа проб геологических материалов с использованием реактора ИГР. № 240-01/137 от 11.11.99. Дочернее государственное предприятие Институт атомной энергии Республиканского государственного предприятия Национальный ядерный центр Республики Казахстан. 1 с.

УДК 621.039.573

The Calculation-Experimental Analysis of the Impulsed Graphite Reactor (IGR) Ability for the Neutron-Activation Analysis of Geological Materials Use\V.I. Boiko, M.E. Silaev, Y.S. Cherepnin, I.V. Shamanin; Editorial board of journal «Izvestia vissikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetica» (Communications of Higher School. Nuclear Power Engineering). — Obninsk, 2006. — 8 pages, 3 illustrations, 3 tables. — References, 10 titles.

It was examine advantages and disadvantages of the pulse reactor IGR using for geological samples NAA goals. Technical, neutron and cooling characteristics of the reactor were analyzed. The comparison between different reactors was made for NAA on an commercial scale. Some NAA results are represented.